

УДК [551.35:546.798.22](262.5.04)

ИЗМЕНЕНИЕ СЕДИМЕНТАЦИОННЫХ ПОТОКОВ ПЛУТОНИЯ В ДОННЫЕ ОТЛОЖЕНИЯ БУХТЫ СЕВАСТОПОЛЬСКАЯ В ПЕРИОД ДО И ПОСЛЕ АВАРИИ НА ЧАЭС

© 2021 г. А. А. Параскив, Н. Н. Терещенко,
В. Ю. Проскурнин, О. Д. Чужикова-Проскурнина

ФГБУН ФИЦ «Институт биологии южных морей имени А. О. Ковалевского РАН»,
Севастополь, Российская Федерация
E-mail: paraskiv@ibss-ras.ru

Поступила в редакцию 20.09.2020; после доработки 01.10.2020;
принята к публикации 04.06.2021; опубликована онлайн 16.06.2021.

Бухта Севастопольская, расположенная в северной акватории Чёрного моря, подвергалась радиоактивному загрязнению техногенными радионуклидами, включая $^{238,239+240}\text{Pu}$, и испытывала другие виды техногенной нагрузки. Одним из них явилось строительство заградительных молв на входе в бухту в 1975–1986 гг., которое привело к изменению её гидрологического режима. Целью данной работы было оценить изменение седиментационных потоков ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ в донные отложения устьевой части бухты Севастопольская в период до и после аварии на Чернобыльской АЭС (1962–1986 и 1986–2013 соответственно). Плутоний в осадках определяли радиохимическим методом, с последующим измерением активности радиоизотопов на альфа-спектрометре. Скорость осадконакопления определяли с помощью геохронологической датировки слоёв осадка по изменению отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в керне донных отложений. Затем рассчитывали скорость седиментации осадочного вещества в донные осадки. Установлено, что в период после 1986 г. среднегодовая скорость осадконакопления и скорость седиментации осадочного вещества в устье бухты увеличились на 63 и 70 % соответственно. Оценка седиментационных потоков $^{238,239+240}\text{Pu}$ за два исследуемых периода показала, что поток ^{238}Pu в донные отложения увеличился после 1986 г. на 150 %, а поток $^{239+240}\text{Pu}$ — на 49 %. Повышенная процентная доля ^{238}Pu в седиментационном потоке плутония после 1986 г. указывает на чернобыльское происхождение плутония в слоях донных отложений выше 11 см. Суммарный эффект увеличения седиментационных потоков $^{238,239+240}\text{Pu}$ в устье бухты в постчернобыльский период обусловлен ростом интенсивности радиоактивных выпадений после аварии на ЧАЭС и влиянием гидротехнических сооружений на режим седиментационных процессов в акватории (увеличением скорости седиментации осадочного вещества).

Ключевые слова: плутоний, Чёрное море, бухта Севастопольская, седиментационные потоки, донные отложения, авария на ЧАЭС

В радиозоологических исследованиях Мирового океана в последние десятилетия преобладает региональная направленность: они ориентированы на изучение конкретных районов, оказавшихся в зоне поступления техногенных радионуклидов. Одним из них является Черноморский регион (Еремеев и др., 2004 ; Радиозоологический отклик, 2008 ; Трапезников и др., 2018 ; Lukšienė et al., 2014 ; Tereshchenko et al., 2018 ; Zheng et al., 2008).

Чёрное море представляет собой замкнутый водоём с узкими проливами и ограниченным водообменом с Мировым океаном (Иванов и Белокопытов, 2011). В водосборном бассейне моря находятся 54 ядерных объекта, являющихся потенциальными источниками поступления искусственных радионуклидов (Gulin et al., 2019). Прибрежные акватории Чёрного моря, представленные закрытыми и полузакрытыми бухтами, — естественные депо для радионуклидов, ограничивающие их дальнейший перенос (Терещенко и др., 2012).

В черте г. Севастополя самой большой и широко используемой является бухта Севастопольская. Она относится к акваториям повышенного экологического риска, который обусловлен рядом факторов: сбросами значительного количества сточных вод, техногенной деятельностью, стоком реки Чёрная, а также ограничением водообмена бухты с открытой частью моря в результате строительства защитных молов (Егоров и др., 2018a ; Овсяный и др., 2001).

К числу техногенных радиоактивных изотопов, поступивших в Чёрное море, относятся альфа-излучающие изотопы плутония $^{238,239,240}\text{Pu}$; они по характеру поведения в водной экосистеме являются консервативными веществами, то есть их концентрация в воде уменьшается лишь посредством процессов перераспределения между компонентами экосистемы (Радиоэкологический отклик, 2008). Одним из основных путей самоочищения водной среды от консервативных сорбционно-активных веществ является их элиминация с седиментационным потоком осадочного вещества в донные отложения (Егоров и др., 2018a ; Egorov et al., 2018b).

Основные характеристические параметры седиментационных процессов в водных экосистемах — это скорость осадконакопления (sedimentation rate, SR) и скорость седиментации осадочного вещества (mass accumulation rate, MAR). Их можно оценивать различными способами, например посредством изучения послойных отложений створок одноклеточных водорослей в донных отложениях (Hay et al., 1991) либо использования в качестве хронологических маркеров аэрозольных частиц, образовавшихся в результате массового сжигания углеводородного топлива (Rose, 1998), или стабильных изотопов свинца (Ritson et al., 1999) и др.

Между тем включение техногенных радионуклидов в круговорот вещества позволяет проводить фундаментальные исследования процессов, происходящих в экосистемах в естественных условиях, используя данные радионуклиды в качестве радиотрассеров, то есть не как объект, а как инструмент исследования.

Радиотрассерный метод применяют при исследовании седиментационных процессов, используя радиоизотопы как природного, так и антропогенного происхождения (Проскурнин и др., 2018 ; Радиоэкологический отклик, 2008 ; Appleby, 1998 ; Gulin et al., 2003). Он основывается, как правило, на изучении вертикального распределения одного или нескольких радиоизотопов в донных отложениях, а также характера распределения соотношения отдельных изотопов.

Применение радиоизотопов плутония для изучения седиментационных процессов в экосистемах Чёрного моря стало возможным благодаря разобщённости во времени максимумов радиоактивных выпадений от двух основных источников его поступления, а также разной величине отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в них. Так, на 1962–1963 гг. приходился максимум глобальных радиоактивных выпадений (это последствие испытаний ядерного оружия в открытых средах). При этом для широтного пояса, в котором расположено Чёрное море, отношение активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ на 1971 г. составляло 0,036 (Hardy et al., 1973). В свою очередь, в аварийном выбросе после аварии на Чернобыльской АЭС в 1986 г. отношение активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ было равно 0,47, то есть на порядок больше, чем в глобальных радиоактивных выпадениях (Aarkrog, 1988). Это позволяет определять современные среднегодовые скорости седиментационных процессов в море на масштабе последних десятилетий. Именно поэтому для изучения процессов седиментационного очищения морских вод прибрежной акватории г. Севастополя были использованы техногенные долгоживущие радионуклиды плутония.

Целью данной работы было оценить изменения седиментационных потоков ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ в донные отложения устьевой части бухты Севастопольская в период до (1962–1986) и после аварии на Чернобыльской АЭС (1986–2013).

МАТЕРИАЛ И МЕТОДЫ

В бухте Севастопольская выделяют четыре района, которые характеризуются разными гидролого-гидрохимическим режимом и степенью загрязнённости (Иванов и др., 2006). Согласно такому делению бухты на районы, ранее было изучено распределение $^{239+240}\text{Pu}$ в поверхностном (0–5 см) слое донных осадков (рис. 1) (Терещенко и др., 2013). Максимальная удельная активность $^{239+240}\text{Pu}$ обнаружена на станции 2а в устьевой части, что обусловило выбор именно этой части акватории для изучения вертикального распределения плутония в донных осадках бухты. Для проведения настоящего исследования был отобран керн донных отложений высотой 20 см в устьевой части бухты Севастопольская в 2013 г. (ст. 2а) на глубине 15 м (рис. 1).

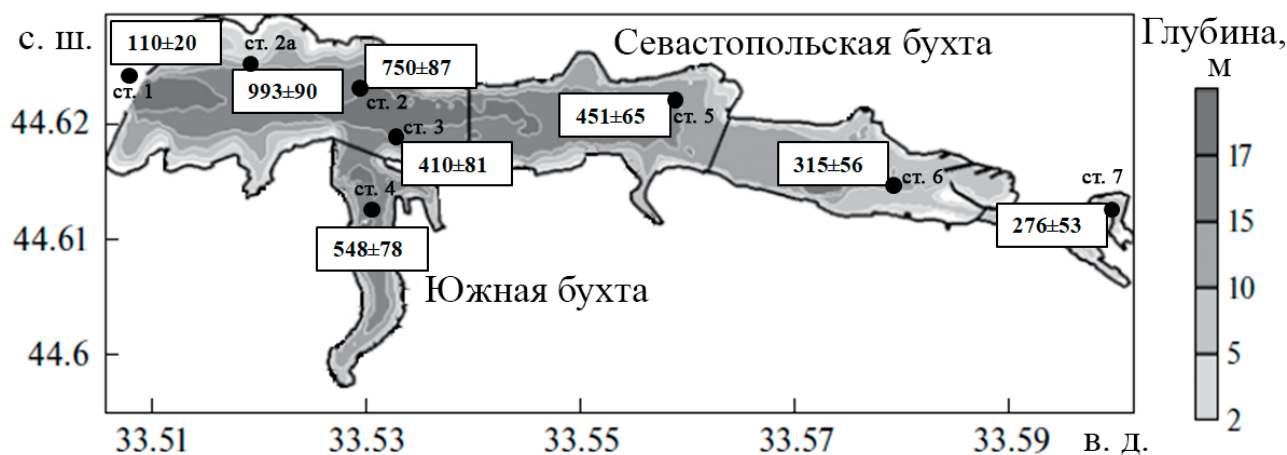


Рис. 1. Распределение удельной активности $^{239+240}\text{Pu}$ (мБк·кг⁻¹) в поверхностном (0–5 см) слое донных отложений бухты Севастопольская (Терещенко и др., 2013)

Fig. 1. Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ activity concentration (mBq·kg⁻¹) in a 0–5-cm layer of the bottom sediments of the Sevastopol Bay (Tereshchenko et al., 2013)

Отбор проб осуществляли акриловой трубкой диаметром 57 мм с вакуумным затвором. В дальнейшем керн нарезали на слои толщиной 1 см, каждую пробу подвергали комплексной радиохимической обработке (рис. 2) (Радиоэкологический отклик, 2008 ; Tereshchenko et al., 2018).

Измерения проводили на альфа-спектрометрическом комплексе фирмы ORTEC (США). На основании данных измерений определяли удельную активность альфа-излучающих радионуклидов плутония в каждом слое: ^{242}Pu (трассер химического выхода плутония), ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$. Удельную активность изотопов ^{239}Pu и ^{240}Pu определяли суммарно, так как данные нуклиды испускают альфа-частицы с очень близкими значениями энергий, в пределах 5,11–5,17 МэВ (Мефодьева и Крот, 1987), и их энергетические спектры перекрываются. Удельную активность радионуклидов плутония в донных отложениях выражали в Бк·кг⁻¹ сухой массы осадка. Химический выход плутония составлял 69–83 %, за исключением слоя 2–3 см, где он равнялся 20 %. Столь низкий химический выход в отдельно взятой пробе может объясняться вынужденным длительным перерывом во время проведения радиохимической обработки. Ошибка определения удельной активности $^{239+240}\text{Pu}$ не превышала 10 %, а для ^{238}Pu лежала в пределах 12–45 % из-за низких уровней их концентрации.

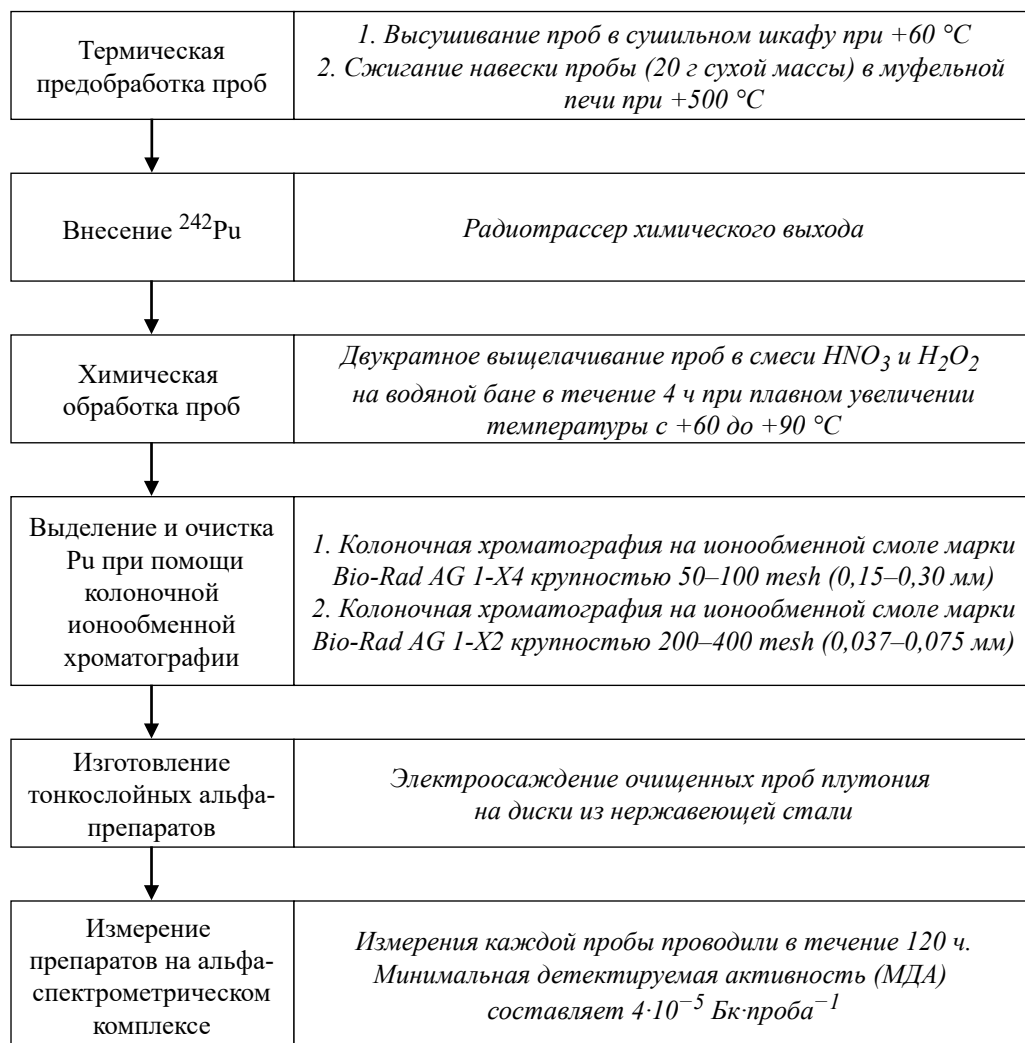


Рис. 2. Схема основных этапов определения альфа-радиоизотопов плутония в донных отложениях (Радиоэкологический отклик, 2008 ; Tereshchenko et al., 2018)

Fig. 2. Scheme of the main steps for determining plutonium alpha radioisotopes in bottom sediments (Radioekologicheskii otklik, 2008 ; Tereshchenko et al., 2018)

Изотопные соотношения и пики их активности после поступления искусственных радионуклидов в окружающую среду, наряду с природными изотопами, широко используются в рамках радиотрассерного метода для изучения как миграции самих радиоизотопов, так и разных природных процессов в экосистемах (Hong et al., 2011 ; Isotopes in Hydrology, 2013). С их помощью исследуют также процессы датировки загрязнения донных отложений радиоизотопами и процессы осадконакопления (Проскурнин и др., 2018 ; Радиоэкологический отклик, 2008 ; Baskaran et al., 1995 ; Isotopes in Hydrology, 2013 ; Zhang et al., 2018). Выбор необходимого соотношения радиоизотопов зависит от источника их поступления в изучаемом регионе и от метода их определения (Isotopes in Hydrology, 2013 ; Lindahl et al., 2010). Для радиоизотопов плутония используют соотношение $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ при масс-спектрометрии. Соотношение $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ применяют в случае определения радиоизотопов альфа-спектрометрическим методом при изучении их поступления от ядерных аварий, в частности на АЭС, и от ядерных испытаний, поскольку относительное количество ^{238}Pu в смеси реакторного плутония выше, чем в оружейном плутонии. Проведение геохронологической датировки донных отложений устьевой части бухты Севастопольская с использованием соотношения $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ стало возможным, так как нами был применён метод

альфа-спектрометрии, а также благодаря уникальной радиоэкологической ситуации, сложившейся в Чёрном море. Она заключается в наличии двух основных источников поступления плутония (глобальные радиоактивные выпадения и радиоактивные поступления после аварии на ЧАЭС), максимумы которых сильно разобщены во времени (1962 и 1986 гг. соответственно) и характеризуются разной изотопной композицией радионуклидов плутония: отношение активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ отличается на порядок.

Таким образом, на основании полученных данных о вертикальном распределении ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$, а также отношения $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ мы провели геохронологическую датировку донных отложений устьевой части бухты Севастопольская согласно описанному ранее подходу (Проскурнин и др., 2018 ; Радиоэкологический отклик, 2008). В дальнейшем определяли биогеохимические параметры седиментационных процессов — скорость осадконакопления (SR) и скорость седиментации осадочного вещества (MAR). Скорость осадконакопления рассчитывали по формуле (Радиоэкологический отклик, 2008):

$$SR = \frac{h_2 - h_1}{T_2 - T_1}, \quad (1)$$

где SR — скорость осадконакопления, мм·год⁻¹;

h_1 — верхняя граница исследуемого слоя, мм;

h_2 — нижняя граница исследуемого слоя, мм;

T_1 — начало исследуемого периода, год;

T_2 — конец исследуемого периода, год.

Расчёт скорости седиментации осадочного вещества в исследуемом районе проводили по формуле (Радиоэкологический отклик, 2008):

$$MAR = \frac{m_{\delta/c} \times SR}{S_{\delta} \times h}, \quad (2)$$

где MAR — скорость седиментации осадочного вещества, г·м⁻²·год⁻¹;

$m_{\delta/c}$ — масса столба осадка высотой h (мм) за вычетом солей, г;

SR — скорость осадконакопления, мм·год⁻¹;

S_{δ} — площадь поперечного сечения трубки для пробоотбора, м².

Эти данные позволили провести оценку седиментационных потоков плутония в донные отложения устьевой части бухты за два периода — до и после аварии на ЧАЭС.

Поток радиоизотопов плутония в осадки (П, Бк·м⁻²·год⁻¹) рассчитывали как произведение удельной активности ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ в слое донных отложений (A_i) и скорости седиментации осадочного вещества (MAR):

$$P_i = A_i \times MAR. \quad (3)$$

Запасы плутония в донных отложениях бухты определяли по формуле:

$$Z = \frac{\sum_{i=1}^n A_i \times m_{i\delta/c}}{S_{\delta}}, \quad (4)$$

где A_i — удельная активность ^{238}Pu или $^{239+240}\text{Pu}$ в i -м слое донных отложений, Бк·кг⁻¹;

$m_{i\delta/c}$ — масса i -го слоя обессоленной пробы донных отложений, кг;

S_{δ} — площадь поперечного сечения трубки для пробоотбора, м².

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В результате послойного изучения донных отложений устьевой части бухты Севастопольская получены данные о вертикальном распределении в них альфа-излучающих радиоизотопов плутония ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ (рис. 3А).

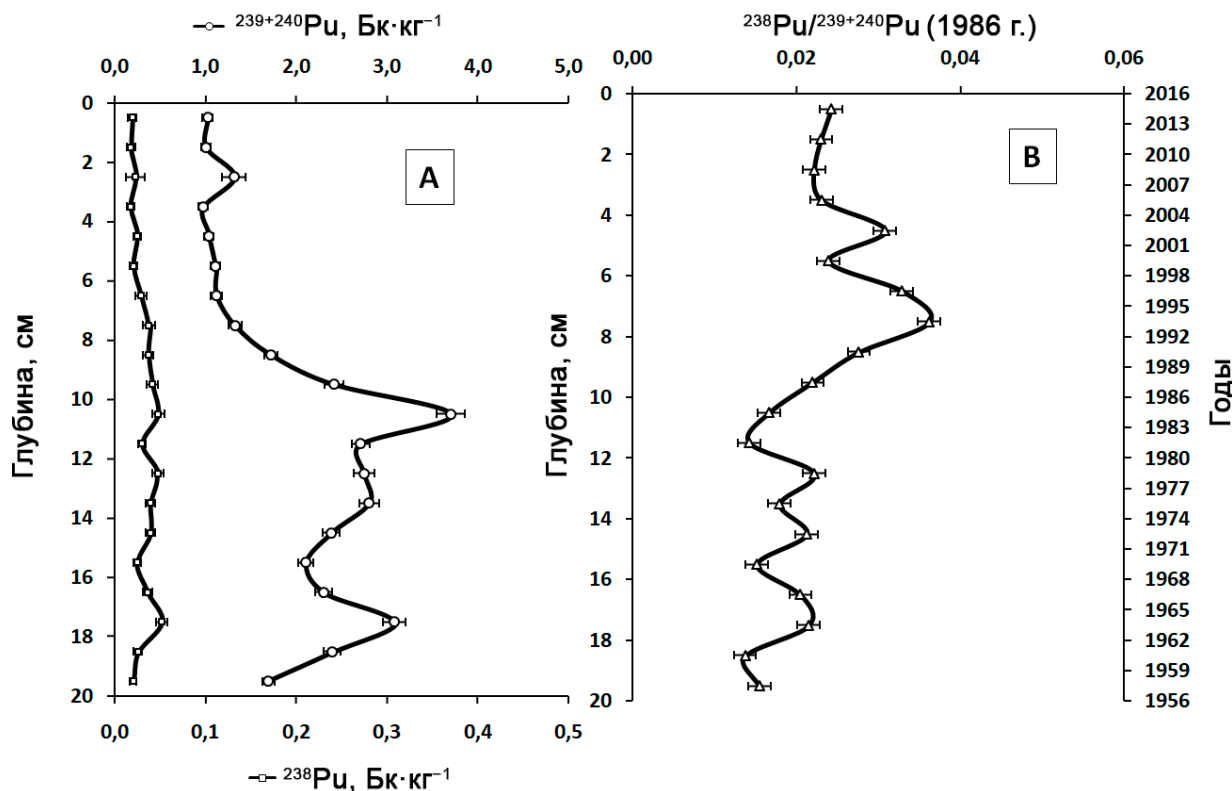


Рис. 3. Вертикальное распределение удельной активности ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ (А) и отношение активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (В) в донных отложениях устьевой части бухты Севастопольская

Fig. 3. Vertical distribution of ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ activity concentration (А) and $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ activity ratio (В) in the bottom sediments of the Sevastopol Bay mouth

Удельная активность ^{238}Pu в вертикальном керне была низкой по сравнению с удельной активностью $^{239+240}\text{Pu}$. Её значения составляли менее $0,1 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, отличаясь в разных слоях более чем в два раза (рис. 3А). Распределение суммы изотопов $^{239+240}\text{Pu}$ характеризовалось наличием двух достоверно выраженных максимумов — в слоях осадка 10–11 и 17–18 см. В последних двух слоях керна отмечена тенденция к снижению удельной активности $^{239+240}\text{Pu}$, что соответствует радиоактивным выпадениям от менее мощных взрывов при испытаниях ядерного оружия в открытых средах в 1950-е гг. (Трансурановые элементы, 1985).

Также в керне донных осадков было рассмотрено распределение отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (рис. 3В). Из данного графика видно, что от нижних слоёв и до слоя 10–11 см отношение активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ составляло величину порядка 0,02. Это согласуется с данными о том, что на 1971 г. такое отношение для 40–50° с. ш. было равно 0,036 (Hardy et al., 1973). За счёт радиоактивного распада ^{238}Pu (период полураспада — 87,7 года) к 1986 г. данное отношение уменьшилось до 0,02.

Выше слоя 10–11 см отмечено увеличение отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$; это вызвано, очевидно, началом поступления плутония чернобыльского происхождения, в котором доля ^{238}Pu была выше, чем в плутонии глобального происхождения (Aarkrog, 1988). Так как плутоний

от этих двух источников смешивался, в донных отложениях разных районов Чёрного моря отношение активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ повысилось после аварии на ЧАЭС. Однако данное отношение изменялось в пределах 0,05–0,36 в зависимости от места и даты отбора проб в связи с пятнистостью чернобыльских выпадений (Проскурнин и др., 2018 ; Радиоэкологический отклик, 2008).

Таким образом, с учётом данных о начале увеличения отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в слое 10–11 см, пик $^{239+240}\text{Pu}$, наблюдавшийся на этих глубинах, был отнесён к периоду начала чернобыльских выпадений (1986). Второй максимум $^{239+240}\text{Pu}$, в слое осадка 17–18 см, был отнесён к максимуму глобальных выпадений (1962), так как отношение активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в этом слое соответствовало изотопному составу плутония глобальных выпадений.

На основе этих двух дат, а также даты отбора кернa провели геохронологическую датировку донных отложений устьевой части бухты Севастопольская (рис. 3) и выполнили расчёт основных биогеохимических параметров седиментационных процессов в изучаемой части акватории (табл. 1).

Таблица 1. Сравнение скорости осадконакопления и скорости седиментации осадочного вещества в устьевой части бухты Севастопольская в период до и после аварии на Чернобыльской АЭС

Table 1. Comparison of sedimentation rate and mass accumulation rate at the Sevastopol Bay mouth before and after the Chernobyl NPP accident

Период	Глубина слоя осадков, см	Скорость осадконакопления		Скорость седиментации осадочного вещества	
		SR, мм·год ⁻¹	%	MAR, г·м ⁻² ·год ⁻¹	%
1986–2013	0–11	4,07	163	3012	170
1962–1986	11–18	2,50	100	1767	100

Полученные данные свидетельствуют о том, что в период после аварии на ЧАЭС скорость осадконакопления и скорость седиментации осадочного вещества в изучаемом районе бухты Севастопольская увеличились на 63 и 70 % соответственно.

Данные результаты согласуются с изменениями гидрологического режима, произошедшими вследствие строительства заградительных моловых сооружений на входе в бухту Севастопольская в 1975–1986 гг. Выход из бухты был сужен с 1235 до 415 м, что повлекло за собой уменьшение её водообмена с открытой частью моря на 40–70 % (Иванов и др., 2006). Это, по-видимому, привело к увеличению скорости седиментации осадочного вещества, то есть в данном районе бухты образовалась своего рода седиментационная ловушка.

Зная количественные показатели вертикального распределения радиоизотопов плутония в толще донных осадков, а также показатели основных биогеохимических процессов седиментации, мы провели геохронологическую реконструкцию седиментационных потоков плутония в донные отложения устьевой части бухты Севастопольская (рис. 4).

Небольшое увеличение седиментационного потока $^{239+240}\text{Pu}$ было отмечено ещё в конце 1970-х — начале 1980-х гг., когда на входе в бухту Севастопольская шло строительство моловых заграждений, что могло привести к взмучиванию и переосаждению донных отложений. В последующие годы, вероятно, столь сильное увеличение седиментационного потока $^{239+240}\text{Pu}$ было обусловлено суммарным эффектом от нового поступления плутония, после аварии на ЧАЭС, и от увеличения скорости седиментации осадочного вещества в результате строительства гидротехнических сооружений (рис. 4). Скорость седиментации осадочного вещества играет ведущую роль в перераспределении плутония в донные отложения, поскольку плутоний обладает повышенной сорбционной способностью в отношении частиц взвеси и характеризуется педотропным типом поведения. Ранее было показано, что более 98 % плутония, поступившего в водные массы, депонируется в донные отложения в Чёрном море (Терещенко и др., 2012).

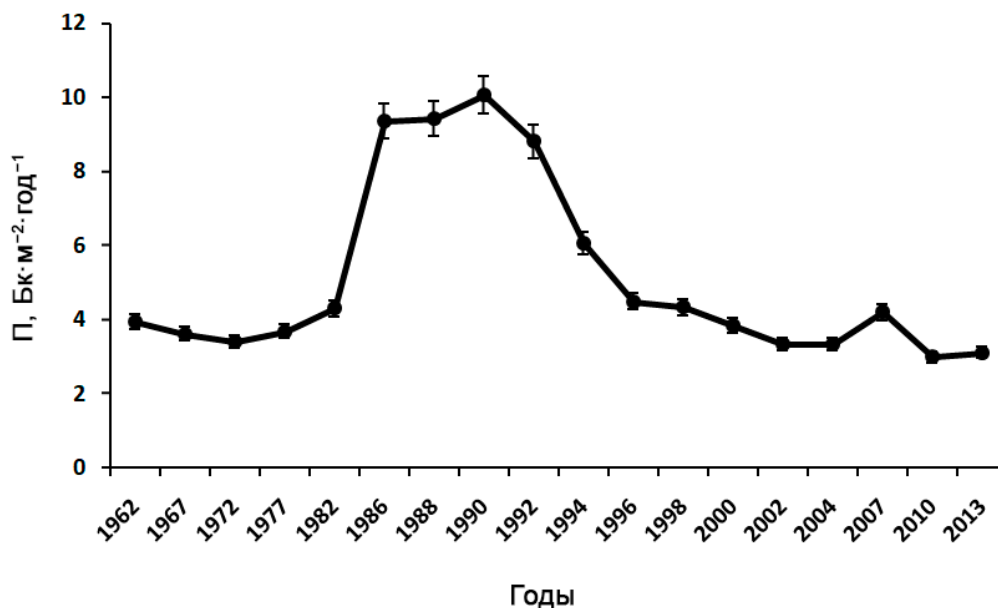


Рис. 4. Геохронологическая реконструкция седиментационных потоков $^{239+240}\text{Pu}$ в донные отложения устьевой части бухты Севастопольская

Fig. 4. Geochronological reconstruction of $^{239+240}\text{Pu}$ sedimentation flux into the bottom sediments of the Sevastopol Bay mouth

Также проанализированы средние величины седиментационных потоков и запасов плутония за два временных интервала — до (1962–1986) и после аварии на ЧАЭС (1986–2013) (табл. 2).

Таблица 2. Сравнение средних величин седиментационных потоков и запасов плутония в устьевой части бухты Севастопольская в период до и после аварии на Чернобыльской АЭС

Table 2. Comparison of the mean values of plutonium sedimentation flux and inventory at the Sevastopol Bay mouth before and after the Chernobyl NPP accident

Период	Седиментационный поток плутония				Запасы плутония			
	^{238}Pu		$^{239+240}\text{Pu}$		^{238}Pu		$^{239+240}\text{Pu}$	
	Бк·м ⁻² ·год ⁻¹	%	Бк·м ⁻² ·год ⁻¹	%	Бк·м ⁻²	%	Бк·м ⁻²	%
1986–2013	0,15	250	5,65	149	2,82	204	152,45	167
1962–1986	0,06	100	3,80	100	1,38	100	91,08	100

Установлено, что седиментационный поток ^{238}Pu в донные отложения устьевой части бухты Севастопольская увеличился на 150 % в период после 1986 г., а седиментационный поток $^{239+240}\text{Pu}$ — на 49 %. Прирост кумулятивных выпадений ^{238}Pu (104 %) также был выше, чем таковой $^{239+240}\text{Pu}$ (67 %). Увеличение доли ^{238}Pu в радиоизотопном составе плутония характерно для плутония чернобыльского происхождения, что подтверждает его наличие в потоке радиоизотопов плутония в донные отложения после 1986 г. Отметим, что в среднем по Чёрному морю чернобыльские радиоактивные выпадения составили около 10 % от величины глобальных выпадений. Именно поэтому наблюдавшееся увеличение седиментационных потоков не могло быть обеспечено только за счёт поступления плутония чернобыльского происхождения, а было связано с увеличением потока седиментации взвешенного вещества в этой акватории.

Рассмотрение двух периодов по отдельности показало, что каждый из них характеризуется собственной зависимостью изменения потока плутония во времени (рис. 5).

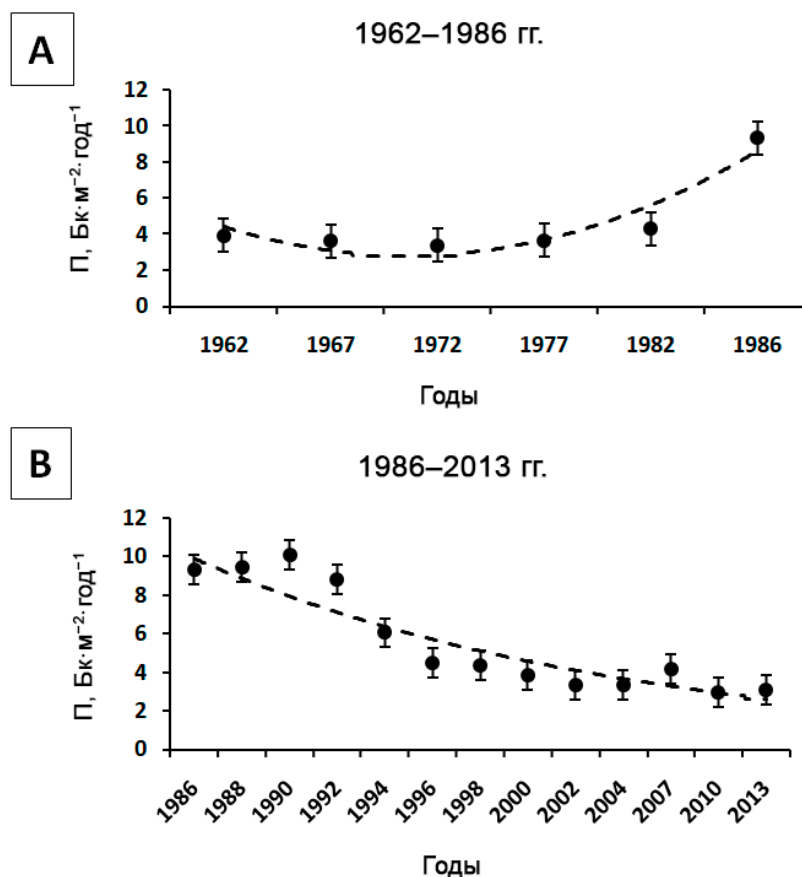


Рис. 5. Тренды изменения седиментационных потоков $^{239+240}\text{Pu}$ в донные отложения устьевой части бухты Севастопольская за два периода: 1962–1986 гг. (А) и 1986–2013 гг. (В)

Fig. 5. Trends in $^{239+240}\text{Pu}$ sedimentation flux into the bottom sediments of the Sevastopol Bay mouth during two periods: 1962–1986 (A) and 1986–2013 (B)

Тенденция изменения поступления потока $^{239+240}\text{Pu}$ в периоды до и после аварии на ЧАЭС с высокой достоверностью аппроксимируется кривыми, описываемыми полиномиальной ($R^2 = 0,84$) и экспоненциальной ($R^2 = 0,82$) функциями (5) и (6) соответственно:

$$\text{П}^{239+240}\text{Pu} = 0,0233 \times (t - 1962)^2 - 0,4419 \times (t - 1962) + 4,8727, \quad (5)$$

$$\text{П}^{239+240}\text{Pu} = 9,9192 \times e^{-0,05 \times (t - 1986)}, \quad (6)$$

где $\text{П}^{239+240}\text{Pu}$ — седиментационный поток $^{239+240}\text{Pu}$ в донные осадки;

t — год, для которого определяется седиментационный поток.

Анализ тенденций изменения потоков плутония во времени указывает на то, что суммарный эффект от роста интенсивности выпадений и строительства гидротехнических сооружений привёл к увеличению седиментационного потока плутония из толщи вод фотического слоя бухты. При этом происходит самоочищение её вод, однако плутоний не выводится из экосистемы, а депонируется в донные отложения (Егоров и др., 2018а, 2013). При отсутствии дополнительных источников поступления плутония это приводит к уменьшению его удельной активности в воде и к снижению седиментационного потока самоочищения вод от плутония, и процесс седиментационного поступления плутония в осадки замедляется. Как показано ранее, при условии постоянства коэффициентов накопления (при концентрации элемента ниже $\text{п} \times 10^{-5}$ моль, что характерно для уровней содержания плутония в черноморских водах) седиментационный поток

выноса плутония из водных масс в донные отложения изменяется в зависимости от уровня его концентрации в воде по принципу обратной связи Ле Шателье — Брауна (Егоров и др., 2013). При этом с уменьшением удельной активности плутония в воде увеличивается его резидентное время пребывания в водных массах из-за снижения величины седиментационного потока плутония в осадки (Tereshchenko et al., 2018).

Таким образом, в современный период использование изотопов плутония в качестве радиотрассеров природных процессов седиментации консервативных веществ в донные отложения позволяет изучать как количественные характеристики этих процессов (скорость осадконакопления и скорость седиментации осадочного вещества), так и механизмы миграции и перераспределения самого плутония в морских экосистемах (седиментационные потоки плутония из водной толщи в донные отложения).

Выводы:

1. Изучено вертикальное распределение альфа-излучающих радиоизотопов плутония ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ в донных отложениях устьевой части бухты Севастопольская. Максимальные удельные активности $^{239+240}\text{Pu}$ определены в слоях 10–11 и 17–18 см. Проведён анализ профиля отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ как важного характеристического параметра источника поступления плутония.
2. Выполнена геохронологическая датировка донных отложений устьевой части бухты Севастопольская с использованием радиотрассерного метода.
3. Определены количественные характеристики основных биогеохимических параметров седиментационных процессов в изучаемой части акватории бухты (скорость осадконакопления и скорость седиментации осадочного вещества) в периоды до и после аварии на Чернобыльской АЭС.
4. Установлено, что в период после 1986 г. среднегодовая скорость осадконакопления и скорость седиментации осадочного вещества в исследуемом районе бухты увеличились на 63 и 70 % соответственно.
5. Проведена геохронологическая реконструкция седиментационных потоков плутония в донные отложения устьевой части бухты Севастопольская. Установлено, что после аварии на ЧАЭС седиментационный поток ^{238}Pu в донные отложения устьевой части бухты Севастопольская увеличился на 150 %, а $^{239+240}\text{Pu}$ — на 49 %. Как и повышенные значения отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в постчернобыльский период, повышенная процентная доля ^{238}Pu в седиментационном потоке плутония подтверждает увеличение содержания плутония в слоях осадка выше 11 см за счёт плутония чернобыльского происхождения.
6. Анализ тенденций изменения потоков $^{239+240}\text{Pu}$ в период до и после аварии на ЧАЭС указывает на то, что суммарный эффект от роста интенсивности выпадений и строительства гидротехнических сооружений привёл к увеличению седиментационного потока плутония из толщи вод фотического слоя бухты.

Исследование проведено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 20-35-90041 («Аспиранты»); полевые работы по отбору проб выполнены по теме государственного задания ФИЦ ИнБЮМ «Молекулярные и биогеохимические основы гомеостаза морских экосистем» (№ гос. регистрации 121031500515-8).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ / REFERENCES

- | | |
|--|---|
| <p>1. Егоров В. Н., Гулин С. Б., Малахова Л. В., Мирзоева Н. Ю., Поповичев В. Н., Терешенко Н. Н., Лазоренко Г. Е., Плотицына О. В., Малахова Т. В., Проскурнин В. Ю.,</p> | <p>Сидоров И. Г., Стецюк А. П., Гулина Л. В., Марченко Ю. Г. Биогеохимические характеристики седиментационного самоочищения Севастопольской бухты от радионуклидов,</p> |
|--|---|

- ртути и хлорорганических загрязнителей // *Морской биологический журнал*. 2018a. Т. 3, № 2. С. 40–52. [Egorov V. N., Gulin S. B., Malakhova L. V., Mirzoyeva N. Yu., Popovichev V. N., Tereshchenko N. N., Lazorenko G. E., Plotitsyna O. V., Malakhova T. V., Proskurnin V. Yu., Sidorov I. G., Stetsyuk A. P., Gulina L. V., Marchenko Yu. G. Biogeochemical characteristics of the Sevastopol Bay sedimentation self-purification from radionuclides, mercury and chlorogenic contaminants. *Morskoj biologicheskij zhurnal*, 2018a, vol. 3, no. 2, pp. 40–52. (in Russ.)]. <https://doi.org/10.21072/mbj.2018.03.2.03>
2. Егоров В. Н., Гулин С. Б., Поповичев В. Н., Мирзоева Н. Ю., Терещенко Н. Н., Лазоренко Г. Е., Малахова Л. В., Плотыцына 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. С. 5–26. [Egorov V. N., Gulin S. B., Popovichev V. N., Mirzoyeva 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 formation of critical zones concerning to pollutants in the Black Sea. *Morskoj ekologicheskij zhurnal*, 2013, vol. 12, no. 4, pp. 5–26. (in Russ.)]
 3. Еремеев В. Н., Демьшев С. Г., Чудиновских Т. В., Запечалов А. С. Исследование различных сценариев радиоактивного загрязнения вод Чёрного моря на основе методов имитационного моделирования // *Морской экологический журнал*. 2004. Т. 3, № 1. С. 23–38. [Eremeev V. N., Demyshev S. G., Chudinovskikh T. V., Zapevalov A. S. Investigation of different scenarios of radioactive pollution of the Black Sea waters on the base of imitation modelling. *Morskoj ekologicheskij zhurnal*, 2004, vol. 3, no. 1, pp. 23–38. (in Russ.)]
 4. Иванов В. А., Белокопытов В. Н. *Океанография Чёрного моря* / НАН Украины, Морской гидрофизический институт. Севастополь : ЭКОСИ-Гидрофизика, 2011. 212 с. [Ivanov V. A., Belokopytov V. N. *Okeanografiya Chernogo morya* / NAN Ukrainy, Morskoj gidrofizicheskii institut. Sevastopol : EKOSI-Gidrofizika, 2011, 212 p. (in Russ.)]
 5. Иванов В. А., Овсяный Е. И., Репетин Л. Н., Романо А. С., Игнатъева О. Г. *Гидролого-гидрохимический режим Севастопольской бухты и его изменения под воздействием климатических и антропогенных факторов* / НАН Украины, Морской гидрофизический институт. Севастополь : [б. и.], 2006. 90 с. [Ivanov V. A., Ovsyanyi E. I., Repetin L. N., Romanov A. S., Ignat'eva O. G. *Hydrological and Hydrochemical Regime of the Sevastopol Bay and Its Changing Under Influence of Climatic and Anthropogenic Factors* / NAN Ukrainy, Morskoj gidrofizicheskii institut. Sevastopol : [s. n.], 2006, 90 p. (in Russ.)]
 6. Мефодьева М. П., Крот Н. Н. *Соединения трансурановых элементов*. Москва : Наука, 1987. 302 с. [Mefod'eva M. P., Krot N. N. *Soedineniya transuranovykh elementov*. Moscow : Nauka, 1987, 302 p. (in Russ.)]
 7. Овсяный Е. И., Романов А. С., Миньковская Р. Я., Красновид И. И., Озюменко Б. А., Цымбал И. М. Основные источники загрязнения морской среды Севастопольского региона // *Экологическая безопасность прибрежной и шельфовой зон и комплексное использование ресурсов шельфа*. Севастополь : ЭКОСИ-Гидрофизика, 2001. Вып. 2. С. 138–152. [Ovsyanyi E. I., Romanov A. S., Min'kovskaya R. Ya., Krasnovid I. I., Ozyumenko B. A., Tsybmal I. M. Basic polluting sources of sea near Sevastopol. In: *Ekologicheskaya bezopasnost' pribrezhnoi i shel'fovoi zon i kompleksnoe ispol'zovanie resursov shel'fa*. Sevastopol : EKOSI-Gidrofizika, 2001, iss. 2, pp. 138–152. (in Russ.)]
 8. Проскурнин В. Ю., Терещенко Н. Н., Чужикова-Проскурнина О. Д., Гулин С. Б. Геохронологическая реконструкция депонирования плутония в глубоководных донных отложениях Чёрного моря // *Радиационная биология. Радиоэкология*. 2018. Т. 58, № 6. С. 664–670. [Proskurnin V. Yu., Tereshchenko N. N., Chuzhikova-Proskurnina O. D., Gulin S. B. Geochronological reconstruction of plutonium deposition into the deep Black Sea bottom sediments. *Radiatsionnaya biologiya. Radioekologiya*, 2018, vol. 58, no. 6, pp. 664–670. (in Russ.)]. <https://doi.org/10.1134/S0869803118060097>

9. Радиоэкологический отклик Чёрного моря на чернобыльскую аварию / под ред. Г. Г. Поликарпова, В. Н. Егорова. Севастополь : ЭКОСИ-Гидрофизика, 2008. 667 с. [*Radioekologicheskii otklik Chernogo morya na chernobyl'skiyu aviariyu* / G. G. Polikarpov, V. N. Egorov (Eds). Sevastopol : EKOSI-Gidrofizika, 2008, 667 p. (in Russ.)]
10. Терешенко Н. Н., Поликарпов Г. Г., Крылова Т. А. Барьерная роль Чёрного моря в отношении $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr – основных техногенных дозообразующих радионуклидов в постчернобыльский период // *Экосистемы, их оптимизация и охрана*. 2012. Вып. 7. С. 243–250. [Tereshchenko N. N., Polikarpov G. G., Krylova T. A. Barrier role of the Black Sea in regard to $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr – basic technogenic doseformative radionuclides in a post-Chernobyl period. *Ekosistemy, ikh optimizatsiya i okhrana*, 2012, iss. 7, pp. 243–250. (in Russ.)]
11. Терешенко Н. Н., Проскурнин В. Ю., Гулин С. Б., Крылова Т. А. Радиоэкологический мониторинг плутония в донных отложениях севавтопольских бухт // *Экологическая безопасность прибрежной и шельфовой зон и комплексное использование ресурсов шельфа*. 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. *Ekologicheskaya bezopasnost' pribrezhnoi i shel'fovoi zon i kompleksnoe ispol'zovanie resursov shel'fa*, 2013, iss. 27, pp. 289–293. (in Russ.)]
12. Трансурановые элементы в окружающей среде / под ред. Р. М. Алексахина. Москва : Энергоатомиздат, 1985. 344 с. [*Transuranovye elementy v okruzhayushchei srede* / R. M. Aleksakhin (Ed.). Moscow : Energoatomizdat, 1985, 344 p. (in Russ.)]
13. Трапезников А. В., Трапезникова В. Н., Коржавин А. В., Николкин В. Н. Радиоэкологический мониторинг пресноводных экосистем. Екатеринбург : АкадемНаука, 2018. Т. 3. 304 с. [Trapeznikov A. V., Trapeznikova V. N., Korzhavin A. V., Nikolkin V. N. *Radioekologicheskii monitoring presnovodnykh ekosistem*. Ekaterinburg : AkademNauka, 2018, vol. 3, 304 p. (in Russ.)]
14. Aarkrog A. The radiological impact of the Chernobyl debris compared with that from nuclear weapons fallout. *Journal of Environmental Radioactivity*, 1988, vol. 6, iss. 2, pp. 151–162. [https://doi.org/10.1016/0265-931X\(88\)90058-6](https://doi.org/10.1016/0265-931X(88)90058-6)
15. Appleby P. G. Dating recent sediments by ^{210}Pb : Problems and solutions. In: *Dating of Sediments and Determination of Sedimentation Rate* : proceedings of the seminar held in Helsinki 2–3 April 1997 / E. Ilus (Ed.). Helsinki : Radiation and Nuclear Safety Authority, 1998, pp. 7–24. (STUK-A145).
16. Baskaran M., Asbill S., Santschi P. H., Davis T., Brooks J. M., Champ M. A., Makeyev V., Khlebovich V. Distribution of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{238}Pu concentrations in sediments from the Ob and Yenisey rivers and the Kara Sea. *Applied Radiation and Isotopes*, 1995, vol. 46, iss. 11, pp. 1109–1119. [https://doi.org/10.1016/0969-8043\(95\)00154-6](https://doi.org/10.1016/0969-8043(95)00154-6)
17. Egorov V. N., Gulin S. B., Malakhova L. V., Mirzoeva N. Yu., Popovichev V. N., Tereshchenko N. N., Lazorenko G. E., Plotitsina O. V., Malakhova T. V., Proskurnin V. Yu., Sidorov I. G., Stetsyuk A. P., Gulina L. V. Rating water quality in Sevastopol Bay by the fluxes of pollutant deposition in bottom sediments. *Water Resources*, 2018b, vol. 45, no. 2, pp. 222–230. <https://doi.org/10.1134/S0097807818020069>
18. Gulin S. B., Proskurnin V. Yu., Sidorov I. G. Recent multi-tracer dating of the Black Sea sediments: Recovery of the late post-Chernobyl trends of radioactive contamination. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2019, vol. 203, pp. 154–162. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2019.03.016>
19. Gulin S. B., Polikarpov G. G., Martin J.-M. Geochronological reconstruction of ^{137}Cs transport from the Choruh River to the SE Black Sea: Comparative assessment of radionuclide retention in the mountainous catchment area. *Continental Shelf Research*, 2003, vol. 23, no. 17–19, pp. 1811–1819. <https://doi.org/10.1016/j.csr.2003.06.005>
20. Hardy E. P., Krey P. W., Nolchor H. L. Global inventory and distribution of fallout plutonium. *Nature*, 1973, vol. 241, no. 5390, pp. 444–445. <https://doi.org/10.1038/241444a0>
21. Hay J. B., Arthur M. A., Dean W. E., Neff E. D., Honjo S. Sediment deposition in the Late Holocene abyssal Black Sea with climatic and chronological implication. *Deep-Sea Research Part A. Oceanographic Research Papers*, 1991, vol. 38, suppl. 2, pp. S1211–S1235. [https://doi.org/10.1016/S0198-0149\(10\)80031-7](https://doi.org/10.1016/S0198-0149(10)80031-7)

22. Hong G.-H., Hamilton T. F., Baskaran M., Kenna T. C. Applications of anthropogenic radionuclides as tracers to investigate marine environmental processes. In: *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry, Advances in Isotope Geochemistry* / M. Baskaran (Ed.). Berlin ; Heidelberg : Springer-Verlag, 2011, vol. 1, chap. 19, pp. 367–394. https://doi.org/10.1007/978-3-642-10637-8_19
23. *Isotopes in Hydrology, Marine Ecosystems and Climate Change Studies* : proceedings of the International Symposium held in Monaco, 27 March – 1 April 2011. In 2 vols. Vienna : IAEA, 2013, vol. 1 – 530 p., vol. 2 – 636 p.
24. Lindahl P., Lee S.-H., Worsfold P., Keith-Roach M. Plutonium isotopes as tracers for ocean processes: A review. *Marine Environmental Research*, 2010, vol. 69, iss. 2, pp. 73–84. <https://doi.org/10.1016/j.marenvres.2009.08.002>
25. Lukšienė B., Maceika E., Tarasiuk N., Koviazina E., Filistovič V., Buivydas Š., Puzas A. On peculiarities of vertical distribution of $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu and ^{137}Cs activity concentrations and their ratios in lake sediments and soils. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2014, vol. 300, iss. 1, pp. 277–286. <https://doi.org/10.1007/s10967-014-3026-0>
26. Ritson P. I., Bouse R. M., Flegal A. R., Luoma S. N. Stable lead isotopic analyses of historic and contemporary lead contamination of San Francisco Bay estuary. *Marine Chemistry*, 1999, vol. 64, iss. 1–2, pp. 71–83. [https://doi.org/10.1016/S0304-4203\(98\)00085-1](https://doi.org/10.1016/S0304-4203(98)00085-1)
27. Rose N. L. The use of fly-ash particles for dating lake sediments. In: *Dating of Sediments and Determination of Sedimentation Rate* : proceedings of the seminar held in Helsinki 2–3 April 1997 / E. Ilus (Ed.). Helsinki : Radiation and Nuclear Safety Authority, 1998, pp. 25–39. (STUK-A145).
29. Tereshchenko N. N., Gulín S. B., Proskurnin V. Yu. Distribution and migration of $^{239+240}\text{Pu}$ in abiotic components of the Black Sea ecosystems during the post-Chernobyl period. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2018, vol. 188, pp. 67–78. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.10.002>
29. Tereshchenko N. N., Proskurnin V. Yu., Paraskiv A. A., Chuzhikova-Proskurnina O. D. Man-made plutonium radioisotopes in the salt lakes of the Crimean Peninsula. *Journal of Oceanology and Limnology*, 2018, vol. 36, iss. 6, pp. 1917–1929. <https://doi.org/10.1007/s00343-018-7312-5>
30. Zhang K., Pan S., Liu Z., Li G., Xu Y., Hao Y. Vertical distributions and source identification of the radionuclides ^{239}Pu and ^{240}Pu in the sediments of the Liao River estuary, China. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2018, vol. 181, pp. 78–84. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.10.016>
31. Zheng J., Liao H., Wu F., Yamada M., Fu P., Liu Ch., Wan G. Vertical distributions of $^{239+240}\text{Pu}$ activity and $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio in sediment core of Lake Chenghai, SW China. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2008, vol. 275, iss. 1, pp. 37–42. <https://doi.org/10.1007/s10967-006-7001-2>

CHANGE IN PLUTONIUM SEDIMENTATION FLUXES INTO THE BOTTOM SEDIMENTS OF THE SEVASTOPOL BAY BEFORE AND AFTER THE CHERNOBYL NPP ACCIDENT

**A. A. Paraskiv, N. N. Tereshchenko,
V. Yu. Proskurnin, and O. D. Chuzhikova-Proskurnina**

A. O. Kovalevsky Institute of Biology of the Southern Seas of RAS, Sevastopol, Russian Federation
E-mail: paraskiv@ibss-ras.ru

The Sevastopol Bay located in the northern Black Sea was exposed to radioactive contamination by anthropogenic radionuclides, *inter alia* $^{238,239+240}\text{Pu}$, and to other types of anthropogenic load. One of them was the construction of breakwaters at the bay mouth in 1975–1986, which resulted in a change in the hydrological regime. The aim of this work was to assess the change in ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ sedimentation fluxes into the bottom sediments of the Sevastopol Bay mouth in the period before and after the Chernobyl NPP accident (1962–1986 and 1986–2013, respectively). Plutonium in sediments was determined by the radiochemical method, followed by measurement

of the activity of radioisotopes with an alpha spectrometer. The sedimentation rate was defined by geochronological dating of sediment layers, accessing the change in $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ activity ratio in the bottom sediment core. Then, the mass accumulation rate in the bottom sediments was calculated. As established, in the period after 1986, the mean annual sedimentation rate and mass accumulation rate in the bay mouth increased by 63 and 70 %, respectively. Assessment of $^{238,239+240}\text{Pu}$ sedimentation fluxes during two research periods showed as follows: after 1986, ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ fluxes into the bottom sediments increased by 150 and 49 %, respectively. The increased ^{238}Pu percentage in plutonium sedimentation flux after 1986 indicates Chernobyl origin of plutonium in the bottom sediment layers above 11 cm. In the post-Chernobyl period, the cumulative effect of an increase in $^{238,239+240}\text{Pu}$ sedimentation flux into the bay mouth results both from an increase in the radioactive fallout intensity after the Chernobyl NPP accident and an effect of breakwaters on the regime of sedimentation processes in the water area (an increase in the mass accumulation rate).

Keywords: plutonium, Black Sea, Sevastopol Bay, sedimentation fluxes, bottom sediments, Chernobyl NPP accident