

РЕТРОСПЕКТИВНЫЙ МОНИТОРИНГ ПОСТУПЛЕНИЯ И ОЦЕНКА САМООЧИЩЕНИЯ ВОД ОТ РАДИОИЗОТОПОВ ПЛУТОНИЯ В ЧЕРНОМОРСКИХ ПРИБРЕЖНЫХ АКВАТОРИЯХ *

Терещенко Н. Н., Параскив А. А., Проскурнин В. Ю.

ФГБУН ФИЦ «Институт биологии южных морей имени А. О. Ковалевского РАН»,

г. Севастополь, Российская Федерация,

e-mail: ntereshchenko@yandex.ru

Аннотация: Проведён ретроспективный многолетний мониторинг поступления в донные отложения прибрежной акватории (Севастопольская бухта, Чёрное море) антропогенных радиоизотопов плутония на основе изучения вертикального распределения плутония в донных отложениях в вершине и устьевом районе бухты. Показана применимость метода радиоактивных трассеров с использованием антропогенных радиоизотопов $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{238}Pu для геохронологии донных отложений в прибрежных морских акваториях. По результатам радиотрассерной геохронологии определены среднегодовые скорости осадконакопления и абсолютные массы донных осадков в до- и постчернобыльский периоды в исследованных районах бухты. Проведена количественная оценка самоочистительной способности вод от содержащихся в них радиоизотопов плутония в двух районах бухты в период с 1962 по 2016–2019 гг. посредством определения потоков биогеохимической седиментации плутония со взвешенным веществом в донные отложения.

Ключевые слова: Севастопольская бухта (Чёрное море), донные отложения, вертикальный профиль радиоизотопов плутония, радиоизотопная геохронология донных отложений, скорость осадконакопления, самоочистительная способность вод.

Введение

Количественная оценка биогеохимической седиментации взвеси и депонирования осадочного вещества в донные отложения позволяет определять значимость вклада процесса осадкообразования для самоочистительной способности морских вод [Егоров и др., 2013; Терещенко, Гулин, Проскурнин, 2016; Терещенко, Проскурнин, Параскив, 2019]. В современный период усиленного индустриального развития и урбанизации приморских регионов проблема изучения самоочистительной способности вод и механизмов её реализации отличается особой актуальностью для прибрежных акваторий, в частности для бухт и заливов, глубоко врезающихся в сушу. Они имеют ограниченный водообмен с водами открытых районов моря, вследствие чего снижается роль водообменных процессов в уменьшении концентрации техногенных веществ в их водах. К такому типу акваторий относится Севастопольская бухта [Гидролого-гидрохимический ... , 2006], которая подвержена усиленному техногенному влиянию и служит важным природным (хозяйственным и рекреационным) ресурсом как природная прибрежная морская экосистема. Чистота водной среды важна для нормального развития гидробионтов и сохранения качества природных ресурсов бухты, поэтому изучение процессов, обеспечивающих самоочищение вод прибрежных акваторий, и факторов, её формирующих, — актуальная научная и практическая задача прикладной гидробиологии.

Для оценки интенсивности самоочищения вод за счёт процессов осадконакопления наряду с другими методами используется метод радиоактивных трассеров [Егоров и др., 2013; Egorov et al., 2018; Терещенко, Проскурнин, Параскив, 2019]. В черноморском регионе, который вследствие антропогенной деятельности подвергался загрязнению радиоактивными изотопами

* Работа выполнена при финансовой поддержке гранта РФФИ «Аспиранты» № 20-35-900041 и в рамках темы госзадания ФИЦ ИнБЮМ «Молисмологические и биогеохимические основы гомеостаза морских экосистем», номер гос. регистрации 121031500515-8.

(в результате испытания ядерного оружия и аварии на Чернобыльской АЭС), стало возможным использование для этих целей техногенных радионуклидов [Buessler, Benitez, 1994; Радиоэкологический отклик ... , 2008; Isotopes in Hydrology ... , 2013; Gulin, Egorov, 2016]. Одним из самых информативных методов в последние десятилетия считается метод радиоактивных трассеров на основе альфа-излучающих техногенных радионуклидов плутония ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ [Yücel et al., 2012; Терещенко, Гулин, Проскурнин, 2016; Терещенко, Проскурнин, Параскив, 2019]. Задача изучения радиоэкологии радионуклидов плутония актуальна сама по себе, так как радионуклиды плутония имеют высокую радиотоксичность и широко используются в ядерных технологиях. Это увеличивает вероятность их попадания в природные экосистемы в результате плановых нормируемых сбросов, при работе объектов с ядерными технологиями и радиационных авариях [Плутоний ... , 2003; Worldwide Marine ... , 2005; Радиоэкологический отклик ... , 2008; Bossew, 2013]. В черноморских акваториях удельные активности ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ низкие и не оказывают негативного воздействия на биоту и функционирование морских экосистем в целом [Радиоэкологический отклик ... , 2008; Tereshchenko, Gulin, Proskurnin, 2018], но они, встраиваясь в малых количествах в биогеохимические циклы веществ в экосистеме, успешно используются в качестве радиотрассеров природных процессов в морских экосистемах Чёрного моря. В ранее проведённых исследованиях в Севастопольской бухте была изучена удельная активность донных отложений относительно радионуклидов плутония в верхнем слое осадка 0–5 см [Егоров и др., 2013; Терещенко и др., 2013; Терещенко, Гулин, Проскурнин, 2016]. На основе этих исследований было показано, что плутоний в черноморских водах проявляет педотропный тип поведения [Терещенко, Гулин, Проскурнин, 2016] и основным потоком самоочищения вод от радионуклидов плутония служит поток его биогеохимической седиментации со взвешенным веществом в донные осадки [Егоров и др., 2013; Egorov et al., 2018; Терещенко, Проскурнин, Параскив, 2019]. Поэтому скорость осадконакопления — важная характеристика водной экосистемы, в значительной степени определяющая скорость самоочищения вод от сорбционно-активных металлов, к которым принадлежит радиоактивный металл — плутоний.

Цель данной работы состояла в ретроспективном многолетнем мониторинге поступления радионуклидов плутония в акваторию бухты на основе изучения вертикального распределения радионуклидов плутония в слое 0–31 см донных отложений, проведении радиотрассерной геохронологии донных осадков в до- и постчернобыльский периоды и оценке скорости осадконакопления и самоочистительной способности вод от содержащихся в них радионуклидов плутония в эти периоды за счёт процесса осадконакопления и депонирования радионуклидов в донные отложения в двух районах Севастопольской бухты.

Материалы и методы

Керны донных отложений высотой 31 см были отобраны на двух станциях, в верховье и устьевом районе Севастопольской бухты: ст. 1 в 2019 г. (глубина 9 м) и ст. 2 в 2016 г. (глубина 15 м) соответственно (рис. 1). Эти районы бухты были выбраны для исследований как её краевые участки, граничащие со смежными водными экосистемами: устьевой район — с открытой акваторией моря, верховье бухты — с устьем реки Чёрной. Керны отбирали акриловой трубкой с вакуумным затвором и с последующей их нарезкой с помощью винтового экструдера на слои с шагом 2 см. Полученные пробы-слои взвешивали, затем сушили до состояния постоянного веса сухой массы пробы и по этим данным определяли оводнённость каждого слоя осадка. После озонирования образцов при 550 °С в муфельной печи к пробам добавляли радионуклид ^{242}Pu (трассер химического выхода плутония) и проводили химическое разложение пробы кислотами. Далее следовала очистка и выделение плутония с помощью ионообменной хроматографии по известной

методике [Радиоэкологический отклик ... , 2008; Tereshchenko et al., 2018]. Выделенный плутоний осаждали электролитическим методом на стальные диски для получения сверхтонких образцов, по которым проводили измерения активности альфа-излучающих радиоизотопов плутония ^{242}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu спектрометрическим методом на альфа-спектрометре ORTEC с полупроводниковыми детекторами. Измерительные работы были выполнены в Центре коллективного пользования Института геологии и минералогии им. В. С. Соболева Сибирского отделения РАН.

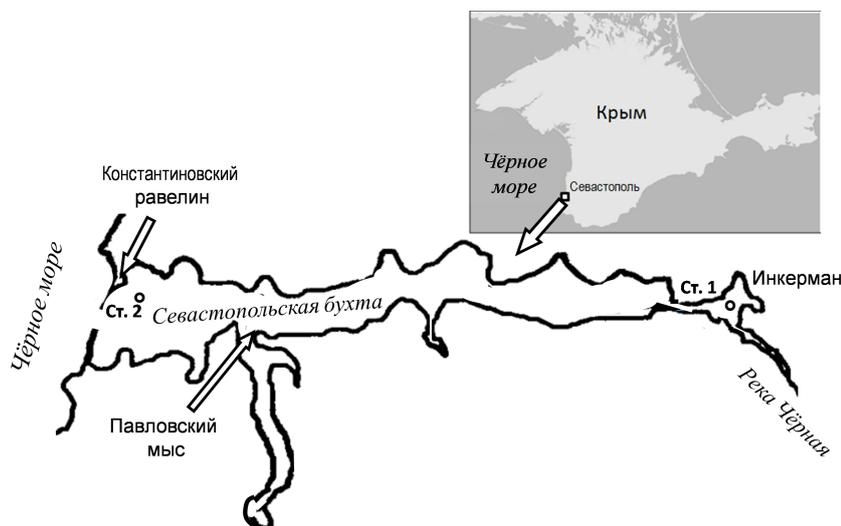


Рис. 1. Схема расположения станций отбора кернов донных отложений в Севастопольской бухте

На основе известных ядерно-физических свойств радиоизотопов плутония и истории их поступления в Чёрное море ранее описанным методом была выполнена радиотрассерная геохронология загрязнения донных осадков плутонием [Радиоэкологический отклик ... , 2008; Tereshchenko, Parkhomenko, 2021] и рассчитаны скорость осадконакопления (SR, мм/год), абсолютные массы донных отложений (MAR, г/(м²·год), седиментационные потоки плутония в донные отложения в процессе осадконакопления (P_{Pu} , Бк/(м²·год)) в вершине и устьевом районе Севастопольской бухты.

Результаты и обсуждение

Полученные результаты по вертикальному распределению удельной активности донных отложений по $^{239+240}\text{Pu}$ в керне из верховья Севастопольской бухты представлены на рисунке 2а. Вертикальный профиль $^{239+240}\text{Pu}$ характеризуется двумя хорошо выраженными максимумами, а профиль отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ — чётко выраженным одним максимумом, совпадающим с верхним максимумом $^{239+240}\text{Pu}$ (рис. 2б). Это расположение на профилях максимумов $^{239+240}\text{Pu}$ и отношения активностей изотопов плутония $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ объясняется наличием двух основных источников поступления изотопов плутония, которые на масштабе десятилетий рассматриваются как залповые поступления. Таких основных источников радиоактивных выпадений на акваторию Чёрного моря было два: глобальные радиоактивные выпадения и выпадения после аварии на Чернобыльской атомной электростанции (ЧАЭС). Нижний максимум (рис. 2а) соответствует времени максимальных глобальных радиоактивных выпадений (1962 г.), а верхний — максимуму радиоактивных выпадений радионуклидов чернобыльского происхождения в 1986 г. Это подтверждает профиль отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (рис. 2б).

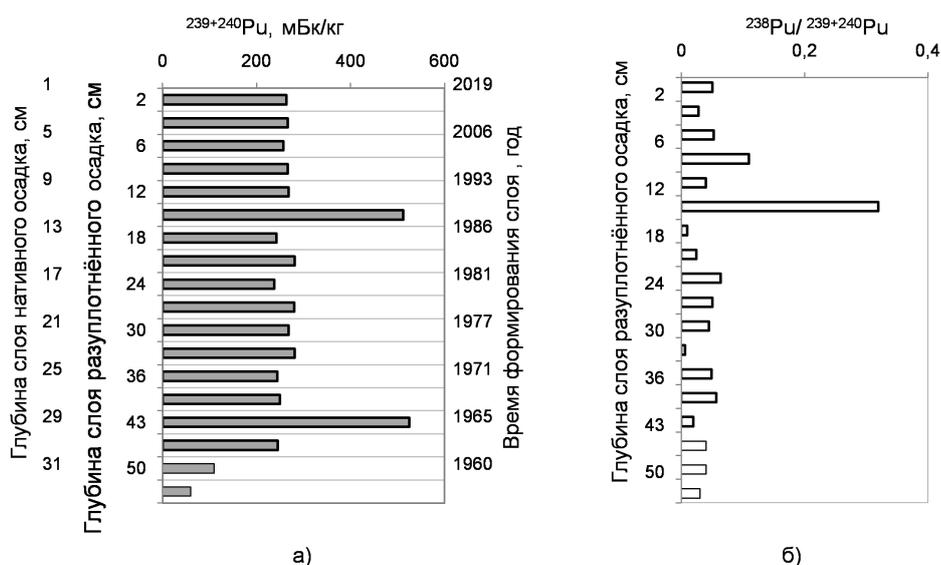


Рис. 2. Вертикальное распределение $^{239+240}\text{Pu}$ (а) и отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (б) в донных отложениях верховья бухты в 2019 г., датировка донных отложений (правая ось ординат на рис. 2а); относительная ошибка определения $^{239+240}\text{Pu}$ в донных отложениях не превышала 13 %, а для ^{238}Pu — 30 % (для активностей выше 15 мБк/кг)

Максимальные значения отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ отмечены в период радиоактивных выпадений чернобыльского происхождения, что связано с разницей изотопного состава плутония в радиоактивных выпадениях после аварии на ЧАЭС (1986 г.) и после испытания термоядерного оружия (1962 г.). Так, в глобальных выпадениях отношение было порядка 0,03, а в чернобыльских — 0,45 [Радиоэкологический отклик ..., 2008]. В черноморских акваториях отношение активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в период после аварии на ЧАЭС, согласно выполненным мониторинговым наблюдениям, изменялось в широких пределах от 0,1 до 0,5 в зависимости от доли плутония глобального и чернобыльского происхождения в природных объектах [Polikarpov et al., 1991; Buesseler, Benitez, 1994; Tereshchenko, Gulin, Proskurnin, 2018; Tereshchenko, Parkhomenko, 2021]. Поэтому совместный анализ профилей $^{239+240}\text{Pu}$ и отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ позволяет однозначно идентифицировать источник поступления плутония в Севастопольскую бухту и год формирования наблюдавшихся максимумов радиоактивных выпадений ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ в осадках от этих источников. На основании этих двух дат и года отбора проб проведены геохронология загрязнения донных отложений радиоизотопами плутония и датировка осадков (рис. 2а — правая ось на графике). Выполненная датировка осадков на ст. 1 позволила рассчитать среднегодовую скорость осадконакопления (SR) в акватории, которая составила в среднем за весь период датировки (с 1962 по 2019 г.) $5,1 \pm 0,8$ мм/год. Средняя абсолютная масса донных отложений (MAR) за этот период составила $0,264$ г/($\text{м}^2 \cdot \text{год}$). Анализ накопления кумулятивного веса донных отложений за каждый из исследованных периодов показал, что MAR в постчернобыльский период уменьшилась до $1,7$ кг/($\text{м}^2 \cdot \text{год}$) по сравнению с дочернобыльским периодом ($3,9$ кг/($\text{м}^2 \cdot \text{год}$)). Также, соответственно, уменьшилась и скорость осадконакопления. Среднегодовая SR составляла $5,2 \pm 0,5$ мм/год в расчёте на разуплотнённый осадок (осадок с исходной влажностью поверхностного слоя) в период с 1986 по 2019 г., а в период с 1962 по 1986 г. она была равна $11,8 \pm 1,2$ мм/год. Среднегодовая SR в расчёте на осадок нативной плотности достигала $3,6 \pm 0,4$ и $7,5 \pm 0,7$ мм/год соответственно. Такую разницу в скорости осадконакопления в эти два периода можно объяснить изменениями, произошедшими

в водосборном бассейне реки Чёрной, устье которой впадает в верховье бухты и сток реки служит основным источником поступления взвешенного вещества в этот район Севастопольской бухты. В первой половине 80-х годов XX века (к 1984 г.) завершилось наращивание высоты дамбы Чернореченского водохранилища, что привело к увеличению объёма водохранилища и его площади почти с 2,5 до 6 км² [Малахова и др., 2019]. Естественно полагать, что эти изменения повлекли за собой увеличение буферной ёмкости водохранилища как отстойника для взвешенного вещества речных вод. Это привело к уменьшению концентрации взвешенного вещества в речных водах и уменьшению твёрдого стока реки Чёрной в Севастопольскую бухту. Снижение поступления взвеси в бухту повлекло за собой снижение скорости осадконакопления в верховье бухты. В пользу этого предположения также свидетельствуют результаты ранее проведённого исследования по оценке доли биогенной части осадочного вещества в донных отложениях Севастопольской бухты [Gulin et al., 2014]. Было установлено, что биогенное осадочное вещество составляло порядка 32 % от общей массы осадочного вещества в верховье бухты. Следовательно, большая часть осадочного вещества (68 %) состояла из терригенной взвеси и уменьшение количества терригенного взвешенного вещества, привносимого в вершину бухты водами реки Чёрной, значимо влияет на суммарное количество взвешенного вещества и скорость осадконакопления в этой части бухты. В результате этих процессов, как показал ретроспективный анализ вертикального профиля загрязнения донных отложений радиоизотопами плутония и геохронологии осадков, произошло изменение SR (уменьшение на 44 %) в период с 1986 по 2019 г. по сравнению с таковой в период с 60-х до первой половины 80-х годов XX века в вершине Севастопольской бухты. Это повлекло за собой и аналогичное изменение MAR. На основе значения MAR были рассчитаны потоки биогеохимической седиментации плутония в донные осадки в результате процесса осадконакопления (P_{Pu}) как количественный показатель самоочистительной способности вод по отношению к содержащимся в них радиоизотопам плутония в верховье бухты. Эти потоки количественно характеризуют биогеохимический седиментационный вынос плутония со взвешенным веществом из водных масс в донные отложения с его последующим депонированием в осадках. Плутоний, как известно, сорбционно-активный тяжёлый металл [Buesseler, Benitez, 1994; Плутоний ... , 2003], поэтому он прочно связывается с частицами и выносится со взвесью в осадочное вещество донных отложений. Следовательно, количество взвешенного вещества, наряду с концентрацией плутония в воде, влияет на вынос плутония из водной среды. В период с 1962 до 1986 г. максимальный P_{Pu} составлял величины порядка 2,1 Бк/(м²·год) и был зафиксирован в период усиленных глобальных выпадений в 1962 г., а минимальные значения наблюдались в предчернобыльский период (0,4 Бк/(м²·год)). После атмосферных радиоактивных выпадений чернобыльского происхождения в мае — июне 1986 г. поток плутония увеличился до 0,9 Бк/(м²·год) за счёт увеличения удельной активности радиоизотопов в воде. В дальнейшем P_{Pu} в бухте снизился до 0,4 Бк/(м²·год), т. е. до уровня потоков в предчернобыльский период. Изменение потока биогеохимической седиментации плутония количественно характеризует изменение самоочистительной способности вод акватории относительно его радиоизотопов как ведущего процесса реализации самоочистительной способности вод по отношению к содержащимся в них радиоизотопам плутония [Терещенко, Проскурнин, Параскив, 2019].

Согласно значениям отношения активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в верхних слоях осадка на вертикальном профиле (рис. 2б), в настоящий период в донные отложения бухты продолжает поступать преимущественно плутоний глобального происхождения, рассеянный в водосборном бассейне бухты и реки Чёрной. В целом за период с 1962 по 1986 г. из водных масс бухты в донные отложения в этом районе перераспределилось до 27,1, а с 1986 по 2019 г. — 17,5 Бк $^{239+240}\text{Pu}/\text{м}^2$, что указывает на глобальное происхождение большей части радиоизотопов плутония, задепонированных в осадках бухты.

Удельная активность донных отложений в отношении ^{238}Pu была в 10–20 раз ниже, чем $^{239+240}\text{Pu}$, и его потоки составляли 5–10 % от потоков $^{239+240}\text{Pu}$. Общий запас $^{239+240}\text{Pu}$ в донных отложениях вершины Севастопольской бухты в 2019 г., в слое донных отложений 0–31 см, оценён в 47,1 Бк/м², а с учётом ^{238}Pu (2,4 Бк/м²) — 49,5 $^{238+239+240}\text{Pu}$ Бк/м².

Значимое влияние на величину потока плутония со взвешенным веществом в осадки оказывает аккумуляционная способность взвешенного вещества, которая зависит от гранулометрического состава взвешенного вещества — источника формирования осадочного вещества донных отложений. Как известно, вблизи впадения реки в море вначале оседают крупные частицы, а мелкие частицы взвеси мигрируют с водными массами на более значительные расстояния [Лисицын, 2003]. Это влияет на величину аккумуляционной способности осадков в отношении радиоизотопов плутония. Ранее было показано, что коэффициенты накопления плутония ($K_{\text{нPu}}$) в песчаных отложениях на порядок величин ниже, чем у иловых донных осадков [Tereshchenko, Gulin, Proskurnin, 2018]. Это подтверждает, что гранулометрический состав осадочного вещества оказывает влияние на величину потока плутония в донные отложения и его депонирование в них, так как количество выносимого со взвесью плутония тем меньше, чем больше размер частиц, о чём свидетельствует величина $K_{\text{нPu}}$. Для донных отложений одного и того же состава при концентрациях плутония в воде ниже $n \times 10^{-5}$ моль/л $K_{\text{н}}$ остаются постоянными [Трапезников, Трапезникова, 2006], поэтому при низких концентрациях плутония, наблюдавшихся в Севастопольской бухте, при изменении удельной активности радиоизотопов плутония в донных отложениях можно иметь представление об изменении их удельной активности в воде. Как было показано для глубоководного района Чёрного моря, интенсивность выноса плутония из поверхностных вод прямо пропорциональна удельной активности вод по плутонию. Поэтому с её уменьшением снижается интенсивность выведения плутония из воды и время пребывания плутония в поверхностном слое воды увеличивается [Tereshchenko, Gulin, Proskurnin, 2018].

Потоки самоочищения вод за счёт процесса осадкообразования в вершине бухты определялись, с одной стороны, уровнем удельной активности радиоизотопов плутония в воде, т. е. историей поступления техногенного плутония в бухту, с другой — высокой сорбционной способностью плутония на частицах взвеси и концентрацией взвешенного вещества в водах бухты, скоростью осадконакопления в акватории и величиной аккумуляционной способности донных отложений ($K_{\text{нPu}}$). Определённое влияние на скорость осадконакопления оказывает и продуктивность вод в верховье бухты, так как 32 % осадочного вещества составляло биогенное взвешенное вещество [Gulin et al., 2014], которое, помимо минерализованной составляющей биогенной взвеси, состоит из биотической части — взвешенного органического вещества (ВОВ). В целом воды Севастопольской бухты относятся к эвтрофным водам, так как уровень первичной продукции превышает 100 мг С/(м³·сут) [Терещенко, 2017], и поэтому ВОВ вносит свой вклад в процесс самоочищения вод. Все эти характеристики определяют величину концентрации взвеси в воде и в конечном итоге величину потока плутония в донные отложения и его депонирование в них, а также дают представление об индивидуальных особенностях и количественных показателях процесса самоочищения вод в акватории в зависимости от конкретных условий в этой части водоёма.

Результаты определения вертикального распределения $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{238}Pu в керне донных отложений и отношение активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в устьевой части Севастопольской бухты представлены на рис. 3.

Полученные результаты показали, что за весь изученный период, с 1962 по 2019 г., самые высокие удельные активности $^{239+240}\text{Pu}$ как в верховье бухты (рис. 2), так и в устьевом районе были равны 0,52 и 1,1 Бк/кг соответственно и не представляли экологической опасности для биоты бухты. Согласно рекомендательным документам РФ контрольные уровни для $^{239+240}\text{Pu}$ ($K_{\text{УPu}}$) донных отложений водоёмов составляют 6,9 кБк/кг. С использованием

результатов природных наблюдений и согласно отечественным и международным рекомендательным документам [Environmental protection ... , 2008; Strand et al., 2009; Оценка ... , 2015] нами были рассчитаны также региональные KU_{Pu} для донных отложений Севастопольской бухты, они составили 5 кБк/кг. Таким образом, измеренные максимальные значения уровней удельных активностей $^{239+240}Pu$ на три порядка величин ниже KU_{Pu} для донных отложений, эти радионуклиды не оказывают отрицательного влияния на биотические компоненты экосистемы бухты и могут использоваться в качестве радиотрассеров для изучения разных процессов в бухте в природных условиях.

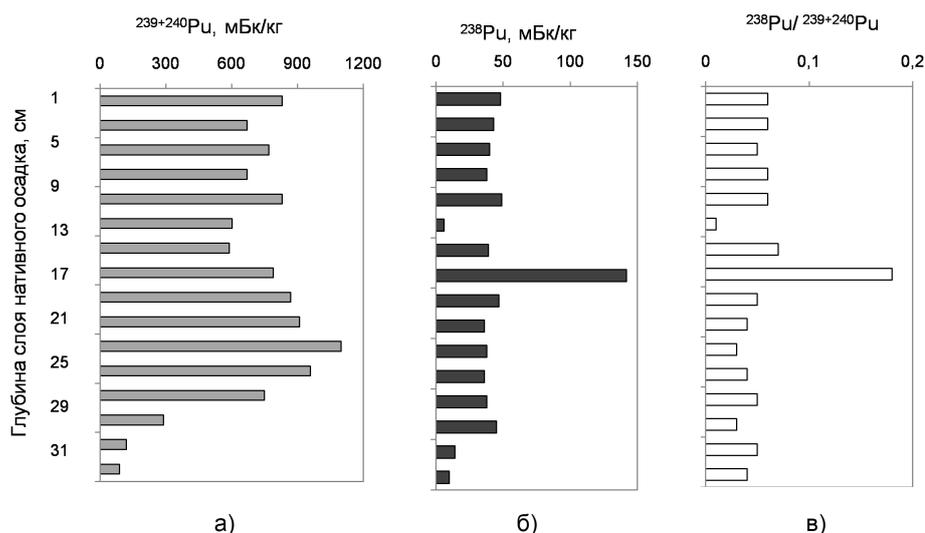


Рис. 3. Вертикальное распределение $^{239+240}Pu$ (а), ^{238}Pu (б) и отношения активностей $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ (в) в донных отложениях устьевой части бухты в 2016 г.; относительная ошибка определения удельной активности $^{239+240}Pu$ в донных отложениях не превышала 13 %, а для ^{238}Pu — 30 % (для активностей выше 15 МБк/кг)

Вертикальный профиль $^{239+240}Pu$ в устьевом районе бухты менее структурирован (рис. 3) по сравнению с таковым в верховье (рис. 2) и максимумы $^{239+240}Pu$ имеют размытую форму. Это, очевидно, связано с более сильным и частым волновым перемешиванием в данном районе, а также антропогенным влиянием — постановкой судов на якорные стоянки, что приводит к взмучиванию донных осадков, их последующему переосаждению и обуславливает степень размывания максимумов. Но на вертикальном профиле ^{238}Pu и отношения активностей $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ можно однозначно определить глубину залегания максимальных чернобыльских выпадений, так как доля ^{238}Pu в смеси изотопов плутония чернобыльского происхождения была на порядок выше, чем в глобальных выпадениях. По центральной точке размытого нижнего пика $^{239+240}Pu$ была определена точка максимальных глобальных выпадений, что дало возможность провести геохронологию донных осадков, а затем рассчитать SR и MAR в устьевой части бухты. На нативный осадок среднегодовая SR за 54 года составила $4,1 \pm 0,4$ мм/год, при этом в дочернобыльский период она была равна $2,50 \pm 0,05$, а в постчернобыльский — $5,3 \pm 0,9$ мм/год. В эти же периоды значения MAR составляли 2,2 и 3,9 кг/(м²·год) соответственно.

Следовательно, в устьевом районе произошло изменение скорости осадконакопления, но в противоположном направлении по сравнению с вершиной бухты: скорость осадконакопления в постчернобыльский период увеличилась более чем в 2 раза. Это изменение можно объяснить антропогенным вмешательством на линии выхода бухты в море. К 1986 г. там было завершено

строительство заградительного мола, который состоит из двух частей. Каждая из частей тянется от берега к середине выхода из бухты, сузив выход бухты с 1235 до 415 м, что повлекло за собой уменьшение водообмена бухты с открытой частью моря на 40–70 % [Гидролого-гидрохимический ... , 2006]. Таким образом, по обеим сторонам бухты в устьевом её районе образовалась застойная зона, где происходит усиленное оседание взвешенного вещества, и скорость осадконакопления увеличилась в этой зоне на 2,8 мм/год. Значение SR в дочернобыльский период в этих зонах устьевого района бухты (2,5 мм/год) совпадает с опубликованными данными по определению SR в противоположном конце устьевого района Севастопольской бухты, у Павловского мыса (рис. 1). Там её значение составляло 2,4 мм/год в конце 90-х годов прошлого века, и влияние постройки молв, очевидно, мало изменило условия процесса осадконакопления. Данные были получены радиотрассерным методом по колонкам донных отложений, но высотой 7–12 см, в качестве радиотрассеров использовали природный радиоизотоп ^{210}Pb и техногенный радиоизотоп ^{137}Cs [Радиоэкологический отклик ... , 2008]. Данные, полученные с помощью $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{238}Pu в 2016 г. ($\text{SR} = 5,3 \pm 0,9$ мм/год) по постчернобыльскому периоду (1986–2016 гг.), с учётом ошибки определения величин соответствуют данным у Константиновского равелина по результатам определения в 2009 г. с применением ^{210}Pb и ^{137}Cs ($\text{SR} = 4,6 \pm 1,0$ мм/год) [Егоров и др., 2013] и результатам, полученным в 2013 г. ($\text{SR} = 4,1 \pm 0,8$ мм/год). Также и по дочернобыльскому периоду — новые результаты по величине SR идентичны ранее опубликованным данным ($\text{SR} = 2,50 \pm 0,05$ мм/год) [Параскив и др., 2021].

Таким образом, величины скорости осадконакопления, полученные с использованием разных изотопов в качестве радиотрассеров и в разное время, совпадают со вновь полученными данными с учётом ошибки определения, которая для SR указанных временных периодов не превышала 20 %.

Результаты, свидетельствующие об изменении SR в устьевой части бухты в период после 1986 г., указывают на влияние гидротехнических сооружений на скорость осадконакопления в акватории, а следовательно, и на скорость самоочистительной способности вод этого района бухты. Так, рассчитанные потоки поступления плутония в процессе осадконакопления в донные отложения бухты показали, что они были более значительными в устьевом районе по сравнению с верховьем бухты и варьировали в пределах от 2,0 до 2,8 Бк $^{239+240}\text{Pu}/(\text{м}^2 \cdot \text{год})$, а в дочернобыльский период — от 0,1 Бк $^{239+240}\text{Pu}/(\text{м}^2 \cdot \text{год})$ ранее 1962 г. до максимальных потоков в 1962 г., которые составляли 3,1 Бк $^{239+240}\text{Pu}/(\text{м}^2 \cdot \text{год})$ с последующим уменьшением до 2,4 Бк $^{239+240}\text{Pu}/(\text{м}^2 \cdot \text{год})$ в предчернобыльские годы. Такие величины потоков плутония за счёт его биогеохимической седиментации из воды со взвесью в донные отложения привели к формированию в донных отложениях более значительных запасов плутония в устьевом районе. За весь исследованный период запасы плутония в этом районе бухты, в слое осадка 0–31 см, составили 193,3 Бк $^{239+240}\text{Pu}/\text{м}^2$ и 9,7 Бк $^{238}\text{Pu}/\text{м}^2$ или суммарно порядка 203 Бк $^{238+239+240}\text{Pu}/\text{м}^2$. Это связано как с увеличением MAR в постчернобыльский период, так и с более высокими концентрациями радиоизотопов плутония в донных отложениях в устьевом районе (рис. 3), которые являются отражением удельной концентрации радиоизотопов плутония в воде. Более высокие концентрации радиоизотопов плутония в воде устьевого района бухты могут указывать на преимущественное поступление плутония в бухту с морскими водами. В черноморские воды севастопольской морской акватории плутоний может поступать с водными массами из северо-западной части Чёрного моря, включая Каркинитский залив, при определённой розе ветров [Иванов, Белокопытов, 2011]. А именно в этот залив после прекращения подачи воды через Северо-Крымский канал в Крым стали сбрасывать воды реки Днепр, в которые из реки Припяти поступали в последние годы чернобыльские радионуклиды в результате сброса вод из пруда-охладителя ЧАЭС [Закон України ... , 2018]. Косвенным подтверждением того,

что часть поступающего в воды Севастопольской бухты плутония была чернобыльского происхождения, могут служить как более высокие удельные активности радионуклидов плутония в поверхностных слоях донных отложений, так и некоторое превышение в них значения отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ на 0,01–0,03 по сравнению с таковым, характерным для композиции радионуклидов плутония глобального происхождения. Вторичное загрязнение Чёрного моря радионуклидами (^{90}Sr и ^{137}Cs) чернобыльского происхождения было зафиксировано после 2010 г., когда начали спускать воду с радионуклидами из пруда-охладителя ЧАЭС в р. Припять, откуда она поступала в р. Днепр и Северо-Крымский канал (до 2014 г.), а затем в Чёрное море [Gulin et al., 2013]. Таким образом, при повышении удельной активности радионуклидов плутония в воде бухты и с увеличением скорости осадконакопления увеличивается скорость самоочищения вод от плутония, но при этом происходит увеличение их запасов в донных отложениях, которые служат многолетним депо плутония в бухте. В связи с длительными периодами полураспада $^{239, 240}\text{Pu}$ (тысячи лет) на масштабе сотен лет их активность значимо не уменьшается за счёт радиоактивного распада.

Заключение

Проведён ретроспективный мониторинг уровней техногенных изотопов плутония ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ в донных отложениях Севастопольской бухты, в вершине бухты и её устьевом районе, по вертикальным профилям распределения удельной активности радионуклидов плутония и геохронологии донных осадков.

Расчитаны региональные контрольные уровни $^{239+240}\text{Pu}$ для донных отложений Севастопольской бухты, они составили 5 кБк/кг. Измеренные максимальные значения уровней удельной активности $^{239+240}\text{Pu}$ в современный период на три порядка величин ниже региональных контрольных уровней $^{239+240}\text{Pu}$ для донных отложений. Следовательно, эти радионуклиды не оказывают отрицательного влияния на биотические компоненты экосистемы бухты и могут использоваться в качестве радиотрассеров для изучения разных процессов в бухте в природных условиях.

Полученные результаты послужили основой для проведения геохронологии загрязнения плутонием донных отложений радиотрассерным методом с использованием в качестве радиотрассеров ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ и последующего расчёта скорости осадконакопления в этих районах бухты, абсолютных масс донных осадков и потоков плутония из воды в донные отложения в результате процесса осадконакопления.

Изменение потоков биогеохимической седиментации плутония со взвесью из воды в донные отложения отражает изменение скорости самоочищения вод от плутония, которая изменялась в последние десятилетия в зависимости от ряда условий в изучаемых районах бухты. К ним в первую очередь относится, с одной стороны, уровень удельной активности радионуклидов плутония в воде, т. е. история поступления техногенного плутония в бухту, периоды действия источников радиоактивного загрязнения и величина аккумуляционной способности донных отложений, которая количественно характеризуется коэффициентами накопления плутония K_{Pu} осадками. K_{Pu} , в свою очередь, связаны с гранулометрическим составом осадочного вещества. С другой стороны, потоки плутония определялись количеством и размерным составом взвешенного вещества, удалённостью источников взвеси от изучаемой акватории, которые формируют скорость осадконакопления в акватории, оказывая решающее влияние на скорость самоочищения вод и перераспределение плутония в донные осадки. Определённое влияние на скорость осадконакопления оказывает и продуктивность вод, потому что часть осадочного вещества составляло биогенное взвешенное вещество — взвешенное органическое вещество (ВОВ). В связи с этим ВОВ вносит свой вклад в процесс самоочищения вод, являясь составной частью взвешенного вещества, а значит, и биогеохимического седиментационного потока плутония из воды в донные отложения.

Комплекс перечисленных характеристик различался в вершине и устьевом районе бухты. Это различие привело к разным величинам потока плутония в донные отложения и его депонирования в них. Величина и изменение потоков плутония связаны с индивидуальными особенностями функционирования морской экосистемы в каждом районе бухты и количественно определяли скорость процесса самоочищения вод в двух исследованных районах, что сказалось на величине запасов плутония в верховье и устьевом районе бухты.

Показано, что гидротехнические сооружения в водосборном бассейне бухты или на границе бухты и открытого района моря влияют не только на водообмен, но и затрагивают другие процессы функционирования экосистемы бухты. В частности, они влияют на количество взвешенного вещества в акватории, скорость осадконакопления, в конечном итоге на скорость самоочищения вод бухты от техногенных веществ и величину запасов техногенных веществ в донных отложениях бухты.

Список литературы

1. Гидролого-гидрохимический режим Севастопольской бухты и его изменения под воздействием климатических и антропогенных факторов / Иванов В. А., Овсяный Е. И., Репетин Л. Н. [и др.] ; Мор. гидрофиз. ин-т НАН Украины. – Севастополь : МГИ, 2006. – 90 с.
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 Черном море в отношении загрязняющих веществ // Морской экологический журнал. – 2013. – Т. 12, № 4. – С. 5–26.
3. Закон України «Про Загальнодержавну програму зняття з експлуатації Чорнобильської АЕС та перетворення об'єкта "Укриття" на екологічно безпечну систему» від 15.01.2009 № 886-VI : (додаток із змінами, внес. згідно із Законом України від 21.10.2011 р. N3960-VI : у ред. Закону України від 16.10.2018 р. № 2595-VIII) // Ліга:Закон : [офіц. сайт]. – 2018. – <https://ips.ligazakon.net/document/ГО90886> (дата обращения: 22.07.2022).
4. Иванов В. А., Белокопытов В. Н. Океанография Черного моря / Мор. гидрофиз. ин-т НАН Украины. – Севастополь : МГИ, 2011. – 212 с.
5. Лисицын А. П. Новые возможности четырехмерной океанологии второго поколения – опыт двухлетних исследований в Белом море // Актуальные проблемы океанологии / Рос. акад. наук, Ин-т океанологии им. П. П. Ширшова. – Москва : Наука, 2003. – С. 503–556.
6. Малахова Л. В., Егоров В. Н., Гулин С. Б., Малахова Т. В., Мосейченко И. Н. Многолетняя динамика содержания хлороорганических соединений и ртути в донных осадках Чернореченского водохранилища // Водные ресурсы. – 2019. – Т. 46, № 4. – С. 417–423. – <https://doi.org/10.31857/S0321-0596464417-423>
7. Оценка радиационно-экологического воздействия на объекты природной среды по данным мониторинга радиационной обстановки : Р 52.18.820-2015 / М-во природ. ресурсов и экологии Рос. Федерации, Федер. служба по гидрометеорологии и мониторингу окружающей среды. – Обнинск : Росгидромет, 2015. – 65 с.
8. Параскив А. А., Терещенко Н. Н., Проскурнин В. Ю., Чужикова-Проскурнина О. Д. Изменение седиментационных потоков плутония в донные отложения бухты Севастопольская в период до

- и после аварии на ЧАЭС // Морской биологический журнал. – 2021. – Т. 6, № 2. – С. 69–81. – <https://doi.org/10.21072/mbj.2021.06.2.05>
9. Плутоний. Фундаментальные проблемы / пер. с англ. под ред. Б. А. Надытко, А. Ф. Тимофеевой. – Саров : РФЯЦ – ВНИИЭФ, 2003. – 495 с.
 10. Радиоэкологический отклик Чёрного моря на чернобыльскую аварию / Поликарпов Г. Г., Егоров В. Н., Гулин С. Б. [и др.] ; под ред. Г. Г. Поликарпова и В. Н. Егорова. – Севастополь : ЭКОСИ-Гидрофизика, 2008. – 667 с.
 11. *Терещенко Н. Н.* Влияние трофности морских вод на миграцию и депонирование техногенных радионуклидов плутония // Журнал Сибирского федерального университета. Сер.: Биология. – 2017. – Т. 10, № 1. – С. 20–34.
 12. *Терещенко Н. Н., Гулин С. Б., Проскурнин В. Ю.* Радиоэкологические закономерности перераспределения альфа-радионуклидов плутония в экосистеме Черного моря // Морской биологический журнал. – 2016. – Т. 1, № 3. – С. 3–13. – <https://doi.org/10.21072/mbj.2016.01.3.01>
 13. *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 : сб. науч. тр. / Мор. гидрофиз. ин-т НАН Украины. – Севастополь : МГИ, 2013. – Вып. 27. – С. 289–293.
 14. *Терещенко Н. Н., Проскурнин В. Ю., Параскив А. А.* Комплексный подход в оценке экологического состояния акваторий // Радиационная биология. Радиоэкология. – 2019. – Т. 59, № 6. – С. 627–642. – <http://doi.org/10.1134/S0869803119060122>
 15. *Трапезников А. В., Трапезникова В. Н.* Радиоэкология пресноводных экосистем. – Екатеринбург : Изд-во Урал. гос. аграр. ун-та, 2006. – 390 с.
 16. *Bossey P.* Plutonium emission from the Fukushima accident // IX Latin American IRPA Regional Congress on Radiation Protection and Safety, Rio de Janeiro, April 15–19, 2013 : IRPA – 2013. – URL: https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/45/020/45020946.pdf?r=1
 17. *Buesseler K. O., Benitez C. R.* Determination of mass accumulation rates and sediment radionuclide inventories in the deep Black Sea // Deep Sea Research. Pt 1, Oceanographic Research Papers. – 1994. – Vol. 41, iss. 11/12. – P. 1605–1615. – [https://doi.org/10.1016/0967-0637\(94\)90064-7](https://doi.org/10.1016/0967-0637(94)90064-7)
 18. *Buesseler K. O., Livingston H. D.* Natural and man-made radionuclides in the Black Sea // Radionuclides in the Oceans. Input and Inventories / Inst. de protection et de sûreté nucléaire ; eds: P. Guéguéniat [et al.]. – Les Ulis : IPSN, 1996. – P. 201–217.
 19. *Egorov V. N., Gulina 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. – 2018. – Vol. 45, iss. 2. – P. 222–230. – <https://doi.org/10.1134/S0097807818020069>
 20. Environmental protection: the concept and use of reference animals and plants : ICRP publ. 108 // Annals of the ICRP. – 2008. – Vol. 38, iss. 4/6. – P. 1–242. – <https://doi.org/10.1016/j.icrp.2009.04.001>
 21. *Gulina S. B., Egorov V. N.* Radioactive tracers in the Black Sea: a tool for environmental assessment and ecological regulation // Genetics, Evolution and Radiation / eds: V. Korogodina [et al.]. – New York : Springer, 2016. – P. 303–313.

22. Gulin S. B., Gulina L. V., Sidorov I. G., Proskurnin V. Yu., Duka M. S., Moseichenko I. N., Rodina E. A. ^{40}K in the Black Sea: a proxy to estimate biogenic sedimentation // Journal of Environmental Radioactivity. – 2014. – Vol. 134. – P. 21–26. – <http://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2014.02.011>
23. Gulin S. B., Mirzoyeva N. Yu., Egorov V. N., Polikarpov G. G., Sidorov I. G., Proskurnin V. Yu. Secondary radioactive contamination of the Black Sea after Chernobyl accident: recent levels, pathways and trends // Journal of Environmental Radioactivity. – 2013. – Vol. 124. – P. 50–56. – <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2013.04.001>
24. Isotopes in Hydrology, Marine Ecosystems and Climate Change Studies. Vol. 2. : proc. of the intern. symp., Monaco, 27 March – 1 April 2011 / Intern. Atomic Energy Agency. – Vienna : IAEA, 2013. – 636 p.
25. Polikarpov G. G., Kulebakina L. G., Timoschuk V. I., Stokozov N. A., Korotkov A. A. Radionuclides migration in the Dnieper river cascade, the Dnieper – Bug estuary and the Black Sea shallow waters // Biochemical Pathways of Artificial Radionuclides : SCOPE – RADPATH Meeting Materials, 12–20 April 1991 / Sci. Comm. on Problems of the Environment. – UK : Essex Univ., 1991. – 19 p.
26. Strand P., Beresford N., Coplestone D., Godoy J., Jianguo L., Saxen R., Yankovich T., Brown J. Environmental protection: transfer parameters for reference animals and plants : ICRP publ. 114 // Annals of the ICRP. – 2009. – Vol. 39, iss. 6. – P. 1–111. – <https://doi.org/10.1016/j.icrp.2011.08.009>
27. Tereshchenko N. N., Gulin 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. – P. 67–78. – <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.10.002>
28. Tereshchenko N. N., Parkhomenko A. V. Features of formation of the sedimentation and mass accumulation rate in Western Black Sea bottom sediments // Oceanology. – 2021. – Vol. 61, no. 4. – P. 499–510. – <https://doi.org/10.1134/S0001437021040147>
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. – P. 1917–1929. – <https://doi.org/10.1007/s00343-018-7312-5>
30. Worldwide Marine Radioactivity Studies (WOMARS). Radionuclide Levels in Oceans and Seas : final report of a coordinated research project / Intern. Atomic Energy Agency. – Vienna : IAEA, 2005. – 187 p.
31. Yüecel M., Moore W. S., Butler I. B., Boyce A., Luther G. W. Recent sedimentation in the Black Sea: New insights from radionuclide distributions and sulfur isotopes // Deep Sea Research. Pt I, Oceanographic Research Papers. – 2012. – Vol. 66. – P. 103–113. – <https://doi.org/10.1016/j.dsr.2012.04.007>

**RETROSPECTIVE MONITORING OF INPUT AND EVALUATION
OF SELF-PURIFICATION OF WATERS FROM PLUTONIUM RADIOISOTOPES
IN THE BLACK SEA COASTAL AREAS**

Tereshchenko N. N., Paraskiv A. A., Proskurnin V. Yu.

A. O. Kovalevsky Institute of Biology of the Southern Seas of RAS, Sevastopol, Russian Federation,

e-mail: ntereshchenko@yandex.ru

Abstract: A retrospective long-term monitoring of input to bottom sediments in the coastal areas (Sevastopol Bay, the Black Sea) with anthropogenic plutonium radioisotopes was carried out, which was based on the study of the vertical distribution of plutonium in bottom sediments in the top and mouth area of the bay. The applicability of the radioactive tracer method using anthropogenic radioisotopes $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{238}Pu for the geochronology of bottom sediments in coastal marine areas was shown. Based on the results of radiotracer geochronology, the average annual sedimentation rates and the mass accumulation rate of bottom sediments in the pre- and post-Chernobyl periods in the studied areas of the bay were determined. A quantitative assessment of the self-purification ability of the waters from plutonium radioisotopes in two areas of the bay in the period from 1962 to 2016–2019 was fulfilled by determining the fluxes of biogeochemical sedimentation of plutonium with suspended matter into bottom sediments.

Keywords: Sevastopol Bay (the Black Sea), bottom sediments, vertical profile of plutonium radioisotopes, radioisotope geochronology of bottom sediments, sedimentation rate, self-purification ability of waters.

Сведения об авторах

Терещенко Наталия Николаевна	кандидат биологических наук, ведущий научный сотрудник, ФГБУН ФИЦ «Институт биологии южных морей имени А. О. Ковалевского РАН», ntereshchenko@yandex.ru
Параскив Артём Алексеевич	младший научный сотрудник, ФГБУН ФИЦ «Институт биологии южных морей имени А. О. Ковалевского РАН», paraskiv@ibss.ras.ru
Проскурнин Владислав Юрьевич	младший научный сотрудник, ФГБУН ФИЦ «Институт биологии южных морей имени А. О. Ковалевского РАН», v_proskurnin@ibss-ras.ru

*Поступила в редакцию 30.07.2022 г.
Принята к публикации 02.02.2023 г.*