

УДК 551.35:539.163(262.5)

## ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВОЗРАСТА МОРСКИХ ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЙ С ПОМОЩЬЮ $^{137}\text{Cs}$ И $^{40}\text{K}$

С.Б. Гулин<sup>1,2</sup>, д. биол. н., проф., Л.В. Гулина<sup>2</sup>, м.н.с., И.Г. Сидоров<sup>2</sup>, м.н.с.

<sup>1</sup>Севастопольский национальный университет ядерной энергии и промышленности;

<sup>2</sup>Институт биологии южных морей им. А.О. Ковалевского

Национальной академии наук Украины, г. Севастополь

Разработан метод датировки морских донных отложений с помощью  $^{137}\text{Cs}$  в сочетании с его природным химическим аналогом –  $^{40}\text{K}$ . При этом расчет содержания  $^{137}\text{Cs}$  производится по отношению к массе не всего осадка, а лишь его литогенной фракции, долю которой определяют по  $^{40}\text{K}$ . Это позволяет учитывать разбавляющий эффект биогенной взвеси в отношении удельного содержания  $^{137}\text{Cs}$  в донных осадках и определить их возраст в условиях высокой скорости седиментации взвешенного вещества биологического происхождения.

### Введение

Накопление взвешенного вещества на дне морей и океанов является важнейшим фактором самоочищения их водной толщи от радиоактивных и химических загрязнений [1]. Послойная датировка донных отложений позволяет реконструировать динамику загрязнения морской среды за весь период антропогенного воздействия [2, 3]. Это необходимо для объективной оценки радиоэкологической и токсикологической ситуации в водоемах, в которых мониторинг загрязнения не был регулярным либо вообще не проводился.

Для датировки морских донных отложений чаще всего используют радиоизотопные методы, основанные на определении содержания и распределения в осадках природных и антропогенных радионуклидов с учетом скорости их распада, равновесия с материнскими и дочерними радионуклидами, а также источников и хронологии поступления в исследуемую акваторию [2]. Из техногенных радионуклидов для этой цели чаще всего используют  $^{137}\text{Cs}$  с периодом полураспада 30.17 года, который поступил в окружающую среду в результате радиоактивных выпадений после испытаний ядерного оружия в атмосфере, достигших максимума в 1962 г., а также в результате аварии на Чернобыльской АЭС в апреле 1986 г. [2 - 4]. Такая хронология обуславливает наличие двух максимумов активности  $^{137}\text{Cs}$  на профиле его вертикального распределения в толще донных отложений, более глубокий из которых соответствует началу 1960-х гг., а подповерхностный – 1986 году. По глубине залегания этих максимумов определяют скорость осадконакопления с последующим расчетом возраста отдельных слоев донных отложений и геохронологической реконструкцией истории поступления в них загрязняющих веществ ядерной и неядерной природы [2, 4].

Известно, однако, что  $^{137}\text{Cs}$  накапливается в морских донных отложениях, главным образом, в составе литогенного взвешенного вещества, например, глинистых минералов [5, 6]. Это приводит к тому, что в акваториях с высокой скоростью биогенной седиментации, особенно в прибрежных и шельфовых районах, органическая и минеральная взвесь растительного и животного происхождения проявляет своеобразный эффект разбавления исходного содержания  $^{137}\text{Cs}$  в литогенном материале, оседающем на морское дно. В результате этого профили вертикального распределения  $^{137}\text{Cs}$  в дон-

ных отложениях зачастую не имеют выраженных максимумов, что делает практически невозможным применение данного метода для определения скорости осадконакопления и датировки донных отложений. В этой работе нами предложен новый метод радиоизотопной датировки морских донных осадков, основанный на использовании  $^{137}\text{Cs}$  в сочетании с  $^{40}\text{K}$ , позволяющим учитывать содержание биогенной взвеси.

### Постановка цели и задач научного исследования

Целью данного исследования является разработка метода радиоизотопной датировки морских донных отложений, позволяющего определить скорость осадконакопления в морских водоемах, а также возраст донных отложений в условиях высокой скорости биогенной седиментации. Основной задачей работы был анализ возможности использования  $^{40}\text{K}$  в качестве индикатора биогенной седиментации в морской среде, а также разработка методической схемы определения возраста морских донных отложений по результатам радиометрических измерений содержания в них  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{40}\text{K}$  и апробация предложенного метода в полевых условиях.

### Результаты исследования

Для решения поставленной задачи предлагается проводить расчет активности  $^{137}\text{Cs}$  по отношению к массе не всего осадка, а лишь его литогенной фракции. Количественное определение доли этой фракции может быть выполнено на основе данных по содержанию в донных отложениях природного долгоживущего радионуклида  $^{40}\text{K}$  (период полураспада около  $1.3 \cdot 10^9$  лет), который является химическим аналогом цезия и так же, как он, поступает в морскую среду преимущественно в составе литогенного вещества. Известно, что содержание  $^{40}\text{K}$  в прибрежных донных осадках Черного моря составляет около  $20 \text{ гК} \cdot \text{кг}^{-1}$  в расчете на их сухой вес, а в глубоководных – около  $4 \text{ гК} \cdot \text{кг}^{-1}$ , тогда как кларк калия в литогенном и биогенном материале составляет 25 и 3  $\text{гК} \cdot \text{кг}^{-1}$ , соответственно [7, 8]. На основании этого можно предложить следующее уравнение расчета массовой доли литогенной фракции морских донных отложений:

$$LF = \left( 1 - \frac{\text{Clk}_L \text{K} - \frac{\text{гК}}{\text{кг}}}{\text{Clk}_L \text{K} - \text{Clk}_B \text{K}} \right) \cdot 100\%, \quad (1)$$

где LF – процентное содержание литогенной фракции;  
 $\text{Clk}_L \text{K}$  и  $\text{Clk}_B \text{K}$  – значения кларков калия в литогенном и биогенном веществе, соответственно;

гК – фактическое содержание калия в исследуемой пробе, определенное по результатам радиометрических измерений активности  $^{40}\text{K}$  и с учетом того, что 1 гК соответствует 30.65 Бк  $^{40}\text{K}$  [7, 8].

Тогда активность  $^{137}\text{Cs}$  в донных отложениях в пересчете на массовую долю литогенной фракции составит

$$^{137}\text{Cs}_{\text{LF}} = \frac{^{137}\text{Cs}_{\text{общ}}}{LF} \cdot 100, \quad (2)$$

где  $^{137}\text{Cs}_{\text{общ}}$  и  $^{137}\text{Cs}_{\text{LF}}$  – содержание цезия-137 ( $\text{Бк} \cdot \text{кг}^{-1}$ ) по отношению к массе всего осадка и его литогенной фракции, соответственно.

Определение скорости осадконакопления осуществляется по глубине залегания максимума активности  $^{137}\text{Cs}_{\text{SLF}}$ , соответствующего аварии на Чернобыльской АЭС (1986 г.) или периоду наиболее активных испытаний ядерного оружия в атмосфере (1962 г.):

$$\text{SR} = \frac{D_{\text{max}}}{T - T_{\text{max}}}, \quad (3)$$

где  $\text{SR}$  – скорость осадконакопления ( $\text{см} \cdot \text{год}^{-1}$ );

$D_{\text{max}}$  – глубина залегания максимумов активности  $^{137}\text{Cs}_{\text{SLF}}$ , соответствующих 1986 или 1962 году, см;

$T$  – календарный год отбора колонки исследуемых донных отложений;

$T_{\text{max}}$  – годы наибольшего поступления  $^{137}\text{Cs}$  в окружающую среду в результате испытаний ядерного оружия в атмосфере или аварии на Чернобыльской АЭС.

В ряде случаев можно использовать среднее значение скорости осадконакопления, определенное по формуле (3) при значениях  $T_{\text{max}}$ , равных 1962 и 1986 гг. Однако необходимо учитывать степень гравитационного и диагенетического уплотнения донных отложений, которое увеличивается с глубиной осадка, а также возможное изменение скорости осадконакопления в период с начала 1960-х до середины 1980-х годов, например, из-за строительства гидротехнических сооружений, влияющих на седиментационные процессы в исследуемых акваториях [2, 3, 8]. В таких случаях целесообразнее использовать значение  $\text{SR}$ , рассчитанное при  $T_{\text{max}} = 1986$ , для осадков, накопленных после аварии на ЧАЭС, а при  $T_{\text{max}} = 1962$  – для более глубоких слоев донных отложений. Полученные значения скорости осадконакопления позволяют определить возраст отдельных слоев донных отложений по формуле

$$T_x = T - \frac{D_x}{\text{SR}}, \quad (4)$$

где  $T_x$  – календарный год накопления данного слоя осадка;

$D_x$  – глубина его залегания, см.

Общая схема предлагаемого способа датировки морских донных отложений с помощью  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{40}\text{K}$  представлена на рис. 1. Она включает в себя следующие основные стадии:

1. Радиометрическое определение содержания  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{40}\text{K}$  в отдельных слоях донных отложений по отношению к массе всего осадка.

2. Пересчет величин радиоактивности  $^{40}\text{K}$  в донных отложениях ( $\text{Бк} \cdot \text{кг}^{-1}$ ) и представление их в единицах измерения концентрации калия в этих осадках ( $\text{гК} \cdot \text{кг}^{-1}$ ).

3. Расчет массовой доли литогенной фракции донных отложений ( $\text{LF}$ , %) по формуле (1) с использованием величин концентрации калия в этих осадках.

4. Определение содержания  $^{137}\text{Cs}$  по отношению к массовой доле литогенной фракции донных отложений ( $^{137}\text{Cs}_{\text{SLF}}$ ,  $\text{Бк} \cdot \text{кг}^{-1}$ ) – формула (2).

5. Построение профиля вертикального распределения  $^{137}\text{Cs}_{\text{SLF}}$  в толще донных отложений и определение глубины залегания максимумов его активности ( $D_{\text{max}}$ ), соответствующих периоду наиболее интенсивных испытаний ядерного оружия в атмосфере (1962 г.) и аварии на Чернобыльской АЭС в 1986 г.

6. Определение скорости осадконакопления ( $\text{SR}$ ,  $\text{см} \cdot \text{год}^{-1}$ ) по величине  $D_{\text{max}}$  и формуле (3).

7. Датировка верхних слоев донных отложений по формуле (4) с использованием величины скорости осадконакопления, рассчитанной для максимума активности чернобыльского  $^{137}\text{Cs}_{\text{SLF}}$  при значении  $T_{\text{max}} = 1986$  г.

8. Датировка более глубоких слоев осадка по формуле (4) с использованием величины скорости осадконакопления, определенной по глубине залегания максимума активности  $^{137}\text{Cs}_{\text{LF}}$ , приуроченного к 1962 году.

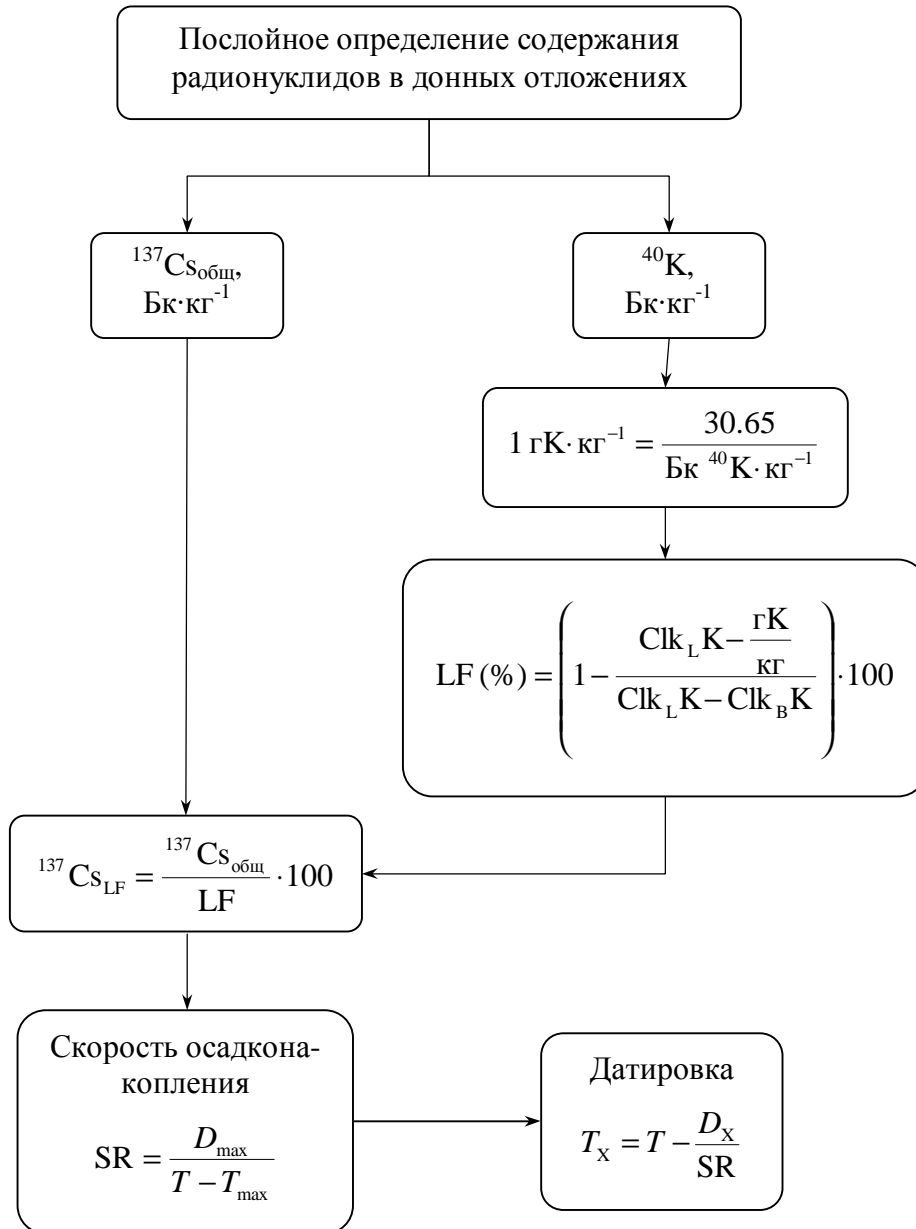


Рис. 1. Схема датировки донных отложений с помощью  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{40}\text{K}$

Для апробации предлагаемого метода в 2010 г. была отобрана колонка донных отложений на внешнем рейде Севастополя (координаты точки отбора  $44^{\circ} 36.9'$  с.ш. –  $33^{\circ} 30.2'$  в.д., глубина дна 22 м). Для этого использовали вакуумную грунтовую трубку с внутренним диаметром 58 мм. В лабораторных условиях колонка была разрезана на горизонтальные слои толщиной 1 см с использованием поршневого экструдера. Полученные пробы донных отложений были высушены до постоянного веса при температуре  $40...50^{\circ}\text{C}$ , измельчены в агатовой ступке и помещены в пластиковые чашки Петри с

внутренним диаметром 53 мм для определения содержания  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{40}\text{K}$  с помощью полупроводникового гамма-спектрометра ORTEC GMX-10 (США), выполненного на основе кристалла сверхчистого германия. Исходная активность радионуклидов в донных осадках рассчитывалась на их сухой вес, с учетом содержания в поровой воде морских солей, концентрация которых определялась с помощью портативного гидрологического зонда SD-204 (SAIV A/S, Норвегия) по методике, описанной в работе [9]. Далее проводились определение массовой доли литогенной фракции донных отложений, расчет активности  $^{137}\text{Cs}$  по отношению к этой фракции и датировка донных отложений в соответствии со схемой, представленной на рис. 1.

Результаты этих исследований представлены в таблице и на рис. 2.

Т а б л и ц а

**Вертикальное распределение  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{40}\text{K}$  в донных отложениях на внешнем рейде Севастополя в 2010 г.**

| Слой осадка, см | $^{137}\text{Cs}_{\text{общ}}$ , Бк·кг <sup>-1</sup> | $\pm 1 \sigma$ | $^{40}\text{K}$ , Бк·кг <sup>-1</sup> | $\pm 1 \sigma$ | гК·кг <sup>-1</sup> | Литогенная фракция, % | $^{137}\text{Cs}_{\text{LF}}$ , Бк·кг <sup>-1</sup> |
|-----------------|--|----------------|---------------------------------------|----------------|---------------------|-----------------------|---|
| 0 - 1           | 64.9   | 1.0            | 276.6                                 | 6.6            | 9.0                 | 27.4                  | 236.9   |
| 1 - 2           | 52.2   | 1.1            | 313.1                                 | 6.6            | 10.2                | 32.8                  | 159.2   |
| 2 - 3           | 52.0   | 1.2            | 336.5                                 | 7.4            | 11.0                | 36.3                  | 143.3   |
| 3 - 4           | 71.6   | 1.1            | 331.2                                 | 6.6            | 10.8                | 35.5                  | 201.9   |
| 4 - 5           | 87.5   | 1.0            | 250.4                                 | 4.5            | 8.2                 | 23.5                  | 372.2   |
| 5 - 6           | 81.8   | 1.2            | 230.4                                 | 4.8            | 7.5                 | 20.5                  | 398.1   |
| 6 - 7           | 87.6   | 2.1            | 287.6                                 | 7.2            | 9.4                 | 29.0                  | 301.9   |
| 7 - 8           | 62.3   | 1.3            | 263.3                                 | 5.5            | 8.6                 | 25.4                  | 245.2   |
| 8 - 9           | 49.9   | 1.0            | 267.2                                 | 5.3            | 8.7                 | 26.0                  | 192.1   |
| 9 - 10          | 38.3   | 1.1            | 234.0                                 | 7.0            | 7.6                 | 21.1                  | 181.9   |
| 10 - 11         | 18.0   | 2.6            | 192.6                                 | 6.0            | 6.3                 | 14.9                  | 120.6   |
| 11 - 12         | 31.4   | 1.9            | 390.8                                 | 11.7           | 12.8                | 44.3                  | 70.9  |
| 12 - 13         | 43.5   | 1.4            | 469.7                                 | 15.0           | 15.3                | 56.0                  | 77.6  |
| 13 - 14         | 37.1   | 1.1            | 433.4                                 | 13.4           | 14.1                | 50.6                  | 73.2  |
| 14 - 15         | 38.5   | 1.1            | 510.0                                 | 14.3           | 16.6                | 62.0                  | 62.1  |
| 15 - 16         | 48.5   | 1.4            | 242.0                                 | 7.0            | 7.9                 | 22.2                  | 218.0   |
| 16 - 17         | 36.7   | 2.0            | 367.1                                 | 9.9            | 12.0                | 40.8                  | 89.9  |
| 17 - 18         | 34.4   | 2.1            | 258.9                                 | 7.5            | 8.4                 | 24.8                  | 138.9   |
| 18 - 19         | 44.5   | 2.5            | 374.1                                 | 12.3           | 12.2                | 41.8                  | 106.4   |
| 19 - 20         | 38.7   | 2.1            | 387.0                                 | 10.8           | 12.6                | 43.8                  | 88.4  |
| 20 - 21         | 42.9   | 2.5            | 387.5                                 | 13.9           | 12.6                | 43.8                  | 97.9  |
| 21 - 22         | 38.8   | 2.4            | 283.2                                 | 9.9            | 9.2                 | 28.4                  | 136.9   |
| 22 - 23         | 39.9   | 2.6            | 334.2                                 | 13.0           | 10.9                | 35.9                  | 111.1   |
| 23 - 24         | 39.0   | 2.6            | 426.6                                 | 17.1           | 13.9                | 49.6                  | 78.5  |

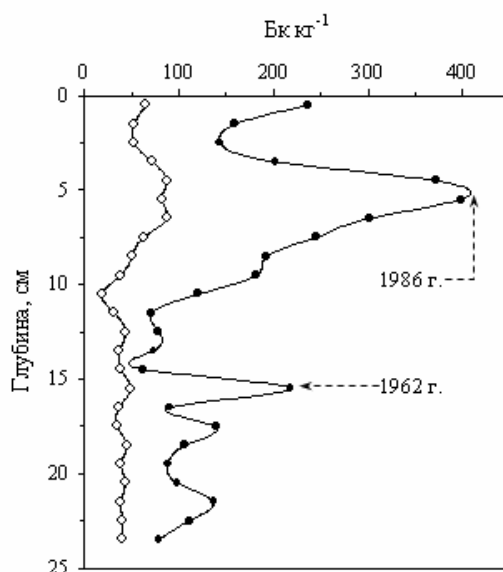


Рис. 2. Вертикальне розподілення активності  $^{137}\text{Cs}$  в донних відкладеннях на зовнішньому рейді Севастополя, розрахованої на вагу всього осаду (○) і його літогенної фракції (●)

Из них следует, что доля литогенной фракции в исследованных осадках составляла в среднем около 35 % общей массы донных отложений (табл.). То есть в них преобладал биогенный осадочный материал, который, как указано выше, может играть роль своеобразного разбавителя по отношению к содержанию  $^{137}\text{Cs}$ . Это существенно снижает возможность идентификации «чернобыльского» и «бомбового» пиков на профиле вертикального распределения  $^{137}\text{Cs}$ , что хорошо видно на рис. 2. Если же рассчитать содержание  $^{137}\text{Cs}$  по отношению к массовой доле литогенной фракции осадка (см. табл.), то максимумы активности этого радионуклида, соответствующие периодам наиболее активных испытаний ядерного оружия в атмосфере и аварии на Чернобыльской АЭС, становятся хорошо различимыми (см. рис. 2). Это дало возможность определить скорость осадконакопления, составившую для поверхностных слоев осадков  $0.23 \text{ см}\cdot\text{год}^{-1}$ , а для более глубоких слоев –  $0.33 \text{ см}\cdot\text{год}^{-1}$ . Такое отличие полученных величин может быть обусловлено строительством в 1970 - 80-е годы защитного мола на входе в Севастопольскую бухту, после чего поступление из нее взвешенных веществ в акваторию внешнего рейда Севастополя существенно уменьшилось [10].

### Выводы

Разработан новый метод датировки морских донных отложений, основанный на использовании  $^{137}\text{Cs}$  в сочетании с его химическим аналогом – природным радионуклидом  $^{40}\text{K}$ . Он дает возможность учитывать разбавляющий эффект биогенной взвеси в отношении удельного содержания  $^{137}\text{Cs}$  в донных осадках и определить их возраст в условиях высокой скорости седиментации взвешенного вещества биологического происхождения.

Лабораторные исследования показали, что предложенный способ датировки морских донных отложений позволяет надежно идентифицировать «чернобыльский» и «бомбовый» максимумы активности  $^{137}\text{Cs}$  на профилях его вертикального распределения в толще морских донных отложений с преобладающим содержанием биогенного вещества.

## ВИЗНАЧЕННЯ ВІКУ МОРСЬКИХ ДОННИХ ВІДКЛАДЕНЬ ЗА ДОПОМОГОЮ $^{137}\text{Cs}$ та $^{40}\text{K}$

С.Б. Гулін, Л.В. Гуліна, І.Г. Сідоров

Розроблено метод датування морських донних відкладень за допомогою  $^{137}\text{Cs}$  в поєднанні з його природним хімічним аналогом –  $^{40}\text{K}$ . При цьому розрахунок вмісту  $^{137}\text{Cs}$  проводиться по відношенню до маси не всього осаду, а лише його літогенної фракції, частку якої визначають за допомогою  $^{40}\text{K}$ . Це дає можливість враховувати розводжуваний ефект біогенної зависі щодо питомого вмісту  $^{137}\text{Cs}$  у донних осадах і визначити їх вік в умовах високої швидкості седиментації завислої речовини біологічного походження.

## DATING of MARINE SEDIMENTS USING $^{137}\text{CS}$ and $^{40}\text{K}$

S. Gulin, L. Gulina, I. Sidorov

A dating method of the marine bottom sediments using  $^{137}\text{Cs}$  in combination with its naturally occurring chemical analogue –  $^{40}\text{K}$  has been developed. The calculation of  $^{137}\text{Cs}$  content is carried out not relative to the mass of the total sediment, but only to the weight of its lithogenic fraction. This enables to take into account the diluent effect of biogenic suspension relatively to the specific  $^{137}\text{Cs}$  content in the bottom sediments and to determine their age under high rate of sedimentation of the suspended matter of the biologic origin.

### Список использованных источников

1. Полицарпов Г.Г. Применение радиоизотопных методов в исследовании продукционных процессов и динамики органического вещества в океане / Г.Г. Полицарпов, А.Я. Зесенко, В.Н. Егоров, А.Б. Назаров // Морские гидрофизические исследования. – 1976. – Т. 74. – № 3. – С. 116 – 124.
2. Anderson R.F. Determining sediment accumulation and mixing rates using  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and other tracers: problems due to postdepositional mobility and coring artefacts / R.F. Anderson, S.L. Schiff, R.H. Hesslein // Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Science. – 1987. – No. 44. – P. 231 – 250.
3. Гулин С.Б. Радиоизотопная геохронологическая реконструкция загрязнения и эвтрофикации Черного моря / С.Б. Гулин // Радиоэкологический отклик Черного моря на чернобыльскую аварию. – Севастополь: ЭКОСИ-Гидрофизика, 2008. – С. 519 – 547.
4. Gulin S.B. Chronological study of  $^{137}\text{Cs}$  input to the Black Sea deep and shelf sediments / S.B Gulin [and oth.] // Radioprotection. – 1997. – № 32 (C2). – P. 257 – 262.
5. Comans R.N. Sorption of cesium on illite: Nonequilibrium behavior and reversibility / R.N. Comans, M. Haller, P.D. Preter // Geochimica et Cosmochimica Acta. – 1991. – No. 55. – P. 433 – 440.
6. Sawhney B.L. Selective sorption and fixation of cations by clay minerals: A review / B.L. Sawhney // Clay Minerals. – 1972. – No. 20. – P. 93 – 100.
7. Гавшин В.М. Геохимия литогенеза в условиях сероводородного заражения (Черное море) / В.М. Гавшин, С.В. Лапухов, С.В. Сараев. – Новосибирск: Наука, 1988. – 194 с.
8. Gulin S.B. Radioactive contamination of the north-western Black Sea sediments / S.B Gulin [and oth.] // Estuarine, Coastal and Shelf Science. – 2001. – Vol. 54. – № 3. – P. 541 – 549.
9. Buesseler K.O. Determination of mass accumulation rates and sediment radionuclide inventories in the deep Black Sea / K.O. Buesseler, C.R. Benitez // Deep-Sea Research. – 1994. – Vol. 11. – № 12. – P. 1605 – 1615.
10. Павлова Е.В. Современное состояние и тенденции изменения экосистемы Севастопольской бухты / Е.В. Павлова [и др.] // Акватория и берега Севастополя: экосистемные процессы и услуги обществу. – Севастополь: Аквавита, 1999. – С. 70 – 94.

Надійшла до редакції 20.07.1913 р.