

УДК 53.06:550.42

## ИЗУЧЕНИЕ РАДИОНУКЛИДНОГО СОСТАВА ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЙ РЕК САНКТ-ПЕТЕРБУРГА

© 2022 г. А. Ю. Опекунов<sup>1</sup>, \*, Д. В. Пичугина<sup>1</sup>, В. И. Жеребчевский<sup>1</sup>, М. Г. Опекунова<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования “Санкт-Петербургский государственный университет”, Санкт-Петербург, Россия

\*E-mail: a\_opekunov@mail.ru

Поступила в редакцию 14.03.2022 г.

После доработки 08.04.2022 г.

Принята к публикации 22.04.2022 г.

С использованием радиоцезиевого метода определены возраст и скорость осадконакопления в трех колонках донных отложений рек Санкт-Петербурга. В разрезе осадков установлены выраженные максимумы удельной активности. На основе этих результатов определены средние скорости осадконакопления в послевоенное время.

DOI: 10.31857/S0367676522080130

### ВВЕДЕНИЕ

Состояние водных объектов в крупных промышленных центрах относится к одному из ключевых факторов качества городской среды. Сбросы сточных вод приводят к заилению акваторий, частичной или полной деградации экосистем. Техногенные илы, накапливающиеся на дне, характеризуются очень высокой степенью токсичности, большой скоростью осадконакопления [1], а также могут содержать значительные следы радионуклидов техногенного происхождения. Одной из наиболее сложных задач в изучении урбанизированных водотоков является определение скорости техногенного осадконакопления, которая, как правило, значительно превосходит масштаб природных процессов. Решение этой задачи позволяет оптимизировать комплекс водоохранных мероприятий, включая дно-очистные работы. В Санкт-Петербурге, где водотоки являются важнейшим элементом историко-архитектурного облика города, задача поддержания и сохранения рек и каналов, имеет не только экологическую, но и эстетическую значимость.

В настоящее время накопился значительный опыт определения скоростей осадконакопления в морских и пресноводных бассейнах на основе использования метода неравновесного <sup>210</sup>Pb и определения удельной активности <sup>137</sup>Cs [2–8]. Радиоцезиевый метод позволяет с достаточной долей уверенности судить о процессах осадконакопления за последние 70 лет. <sup>137</sup>Cs – химически активный металл, в воде находится преимуще-

ственно в виде катиона Cs<sup>+</sup>. Он активно сорбируется глинистыми минералами, накапливаясь в донных осадках тонкодисперсного состава [8, 9]. Вертикальная миграция химических элементов в отложениях практически отсутствует. Перенос вещества за счет молекулярной диффузии в масштабе рассматриваемого времени минимален. Таким образом, каждый отложившийся слой осадочных образований фиксирует ту геохимическую обстановку, которая была характерна для этого момента.

Источниками техногенного радионуклида <sup>137</sup>Cs (период полураспада 30.08 лет) служат ядерные испытания в атмосфере в 50–60-е гг. прошлого века, аварии на атомных станциях, а также разрешенные сбросы в водные объекты и выбросы в атмосферный воздух. Появление данного радионуклида в окружающей среде вызвано началом испытаний атомного оружия в атмосфере с 1949 г. Максимальное выпадение из атмосферы отмечалось в 1963 г. [8, 9] в год запрета ядерных испытаний. В северном полушарии в донных отложениях практически повсеместно отмечается пик удельной активности, связанный с аварией на Чернобыльской АЭС в 1986 г. [2, 5, 7, 8]. Радионуклид <sup>137</sup>Cs в настоящее время относится к одному из основных изотопов, вызывающих радиоактивное загрязнение биосферы, а высокий уровень его удельной активности, представляет реальную опасность для здоровья человека.

Целью настоящих исследований является определение уровней удельной активности <sup>137</sup>Cs в реках Санкт-Петербурга, выявление основных источников поступления этого радиоизотопа, а

также определение скорости техногенного осадконакопления в городских водотоках.

### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ РАДИОНУКЛИДНОГО СОСТАВА ПРОБ ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЙ

Колонки донных осадков (отложений) были отобраны в трех реках, протекающих в исторической части Санкт-Петербурга и испытывающих интенсивное загрязнение со стороны промышленных предприятий: реки Екатерингофка, Карповка и Черная Речка.

Река Екатерингофка вытекает из Невы и впадает в Невскую губу. По берегам водотока расположены предприятия химической и пищевой промышленности, машиностроения и судостроения, производства свинцово-кислотных аккумуляторов. По реке осуществляется судоходство. В устье реки Ольховка отобрана колонка донных осадков мощностью 63 см. Верхняя часть разреза (0–22 см) представлена песчано-алевритовыми пелитами зеленовато-серого цвета; ниже осадки сложены алевритовыми-пелитами черного цвета с большим количеством нефтяных углеводородов, с включениями древесины и песчаных частиц.

Река Карповка – один из рукавов реки Невы, разделяющий Петроградский и Аптекарский острова. Длина реки 3 км, ширина – 20 м, глубина достигает 2.6 м. На участке отбора проб функционируют предприятия приборостроения и аккумуляторное производство. В среднем и верхнем течении река протекает по территории жилой застройки. В нижнем течении поднята колонка осадков мощностью 38 см. В верхней части (0–9 см) осадки представлены алеврито-пелитовыми песками, ниже – песчаными пелитами темно-серого цвета.

Черная Речка находится в северо-западной части города и впадает в Большую Невку. На берегах реки расположены действующие и ликвидированные предприятия по производству лакокрасочных и абразивных материалов, металлообработки, приборостроения, радиоэлектроники. Колонка осадков имеет мощность 47 см. Осадки сложены песчано-алевритовым пелитом, однако в слое 33–39 см преобладает алеврито-пелитовый песок. Отложения имеют черный цвет, характеризуются высоким загрязнением нефтяными углеводородами и большим количеством растительных остатков.

Для измерения активности радионуклидов, содержащихся в пробах, использовались спектрометрические комплексы на основе детектора сверхчистого германия и Ge-Li детектора. Характеристики германиевого детектора: GEM10P4 энергетическое разрешение по пику радионуклида  $^{57}\text{Co}$  с энергией 122 кэВ составляет не хуже чем

620 эВ, энергетическое разрешение по пику радионуклида  $^{60}\text{Co}$  с энергией 1332 кэВ не хуже чем 1.7 кэВ, при относительной эффективности регистрации для этой энергии – 10%, характеристики детектора Ge-Li: энергетическое разрешение по пику радионуклида  $^{60}\text{Co}$  с энергией 1332 кэВ не хуже чем 2.2 кэВ, при относительной эффективности регистрации для этой энергии – 10%. Калибровка гамма-спектрометров по энергии и эффективности регистрации производилась по трем радионуклидам –  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  и  $^{137}\text{Cs}$  [10]. Поскольку поднятые колонки донных отложений были разделены на участки с пробами толщиной 1.5–3 см, то предварительные оценки показали, что концентрация исследуемых радионуклидов в них, будет довольно незначительной. В данном случае, называется низкая концентрация  $^{137}\text{Cs}$  в донных отложениях, а также процессы латеральной миграции в осадках, связанные с довольно высокой подвижностью этого радионуклида [11]. Поэтому ожидаемая удельная активность в некоторых пробах может не превышать 10 Бк/кг. В этой связи была разработана специальная методика для прецизионной калибровки по эффективности регистрации используемых спектрометрических систем. Были учтены геометрические, а также структурные параметры (протяженность, высота, однородность) исследуемых проб, и с учетом этого проведены соответствующие измерения эффективности регистрации спектрометров с использованием калибровочных радионуклидных источников. В итоге, относительная ошибка при определении эффективности регистрации спектрометра составила 1.5%. Поэтому основными источниками погрешностей в определении удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  являлись статистические погрешности, связанные с регистрацией гамма-квантов детекторными системами, и погрешности, возникающие при последующем анализе полученной спектрометрической информации. В итоге, используя данную методику, удалось надежно идентифицировать радионуклиды  $^{137}\text{Cs}$  в пробах донных отложений и определить их удельную активность вплоть до величин 1 Бк/кг с относительной погрешностью не более 19%.

Процедура измерения удельной активности проб состояла из двух этапов. На первом этапе, в течение суток, спектрометрами измерялись фоновые условия. Для этого в спектрометр помещалась пустая емкость – пластиковый контейнер (определенных геометрических размеров и массы) без проб. Затем в емкость загружались высушенные и специально подготовленные пробы. На втором этапе проводились измерения спектра радионуклидов, содержащихся в образце. Время экспозиции составляло также одни сутки. В дальнейшем фоновый спектр вычитался из спектра, полученного при измерениях с образцом.

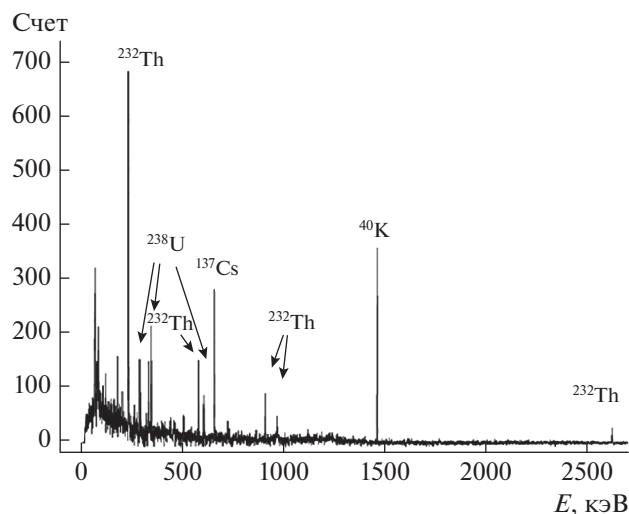


Рис. 1. Радионуклидный спектр пробы донных отложений, взятых в р. Екатеринбург на глубине 31–34 см.

В результате измерений было обнаружено наличие радионуклида  $^{137}\text{Cs}$  в образцах донных отложений, располагавшихся на различных глубинах. На рис. 1 представлен спектр одной из таких проб, взятой на глубине 31–34 см. На спектре хорошо видны практически все радионуклиды природного происхождения с преобладанием радионук-

лидов ториевого ряда. Также наблюдается довольно отчетливый пик, принадлежащий техногенному радионуклиду  $^{137}\text{Cs}$ .

Учитывая ретроспективу поступления  $^{137}\text{Cs}$  в окружающую среду, можно ожидать появления в колонках донных осадков пиковых значений удельной активности данного радионуклида. Это позволит оценить среднюю скорость седиментации на участках изученных водотоков, предполагая линейную зависимость между пиками по глубине. Среднюю величину скорости седиментации после 1963 г. ( $SR_1$ ) и 1986 ( $SR_2$ ) годов рассчитывают по формулам [7]:  $SR_1 = d_1/(t_0 - 1963)$  и  $SR_2 = d_2/(t_0 - 1986)$ , где  $t_0$  – год отбора проб;  $d_1$  и  $d_2$  – глубина залегания пиков, соответствующих отмеченным событиям (в см).

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Выполненный анализ опубликованных результатов исследований удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  показывает, что обычно ее значения в донных осадках морских, озерных и речных акваторий Европы и Азии в периоды максимума ядерных испытаний (1963 г.) и аварии на Чернобыльской АЭС (1986 г.) характеризуются величиной 10–20 Бк/кг (табл. 1). При этом значения в восточной части Евразии (Южно-Китайское море) имеют еще более низкие показатели (менее 2 Бк/кг) [3, 15]. Однако есть акватории, которые являются исклю-

Таблица 1. Удельная активность  $^{137}\text{Cs}$  в донных отложениях и расчетные скорости осадконакопления в морских и пресноводных водоемах Евразии

Акватория	Максимальные значения, Бк/кг	Скорость, см/год	Источник
Озеро Каттина (Qattinah), Сирия	10.2	0.80–1.0	[2]
Залив Бейбу, Южно-Китайское море	2.03	0.46	[3]
Коринфский залив, Греция	28.5	0.56	[5]
Побережье Литохоро, Греция	42.0	0.54	[5]
Озеро Улуабат, Греция	22.5	0.41	[5]
Адриатическое море	12.3	0.18–0.4	[6]
Залив Сан-Симон, Испания	11.2	0.25–0.62	[8]
Салоникский залив, Греция	87.8	0.18–0.22	[12]
Губа Сухое море, Белое море	5.1	–	[13]
Балтийское море	261	0.27–0.57	[14]
Ботнический залив	1614	0.16–0.18	[14]
Каттегат	11.2	–	[14]
Залив Дайя, Южно-Китайское море	0.64	–	[15]
Озера юга Сибири	до 100	0.35	[16]
Озера севера Сибири	до 40	0.25–0.3	[16]
Обская губа	11.7	0.4–0.75	[17]
Енисейский залив	42.6	0.5	[17]
Восточно-Новоземельский желоб	6.8	0.11–0.5	[17]
Залив Седова	4.8	0.10	[17]

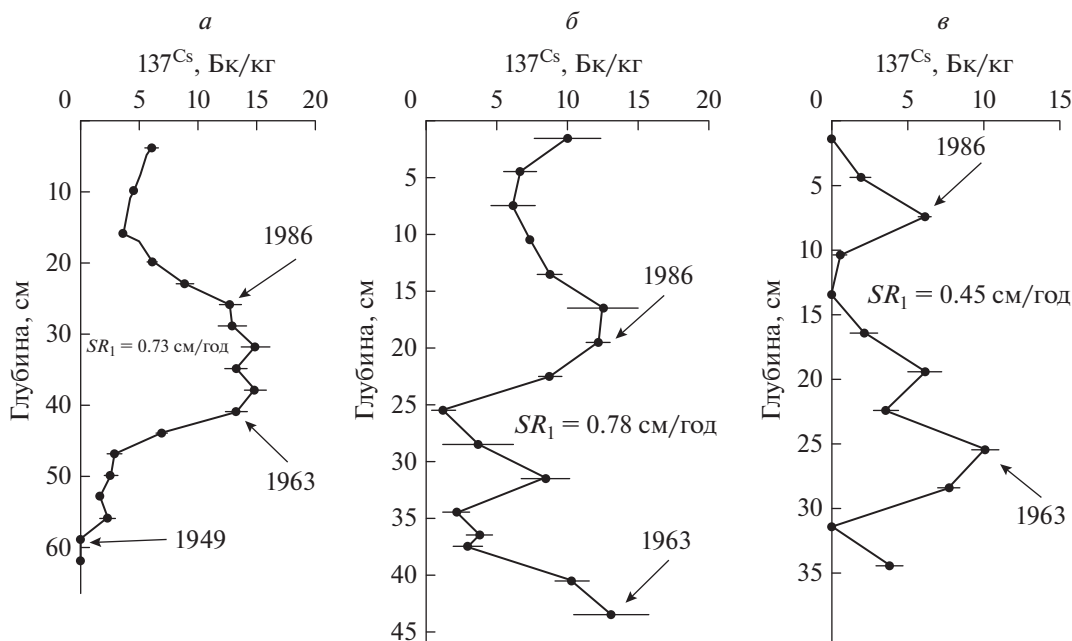


Рис. 2. Вертикальные профили удельной активности радионуклида  $^{137}\text{Cs}$  в донных осадках рек Екатеринбург (а), Черная Речка (б), Карповка (в).

чением из этого ряда. Так, в Ботническом заливе и в северной части Балтийского моря, которые были затронуты “чернобыльским следом”, активность в соответствующем горизонте осадков имеет величины, превышающие отмеченный выше фон на 1–2 порядка [14]. Кроме того, в настоящее время на некоторых территориях существуют действующие источники  $^{137}\text{Cs}$ , что приводит к повышению содержания радионуклида в верхнем слое донных отложений [12, 16, 17].

Значения удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  в донных отложениях рек Санкт-Петербурга не превышают  $14.90 \pm 1.22$  Бк/кг (рис. 2), что позволяет говорить о соответствии их современному фону. Содержание  $^{137}\text{Cs}$  в изученных осадках связано в основном с выпадениями остаточных количеств радионуклида из атмосферы. Об этом свидетельствует и низкая дисперсия значений, полученных в разных водотоках города. Таким образом, можно с достаточной долей уверенности говорить, что в Санкт-Петербурге отсутствуют какие-либо значимые промышленные источники поступления  $^{137}\text{Cs}$  в окружающую среду.

При оценке скоростей осадконакопления необходимо обозначить специфику этих процессов в водотоках Санкт-Петербурга. Проведенные ранее исследования показали [1, 18], что формирование на дне рек техногенных осадков началось в первой половине 50-х гг. в послевоенный период развития промышленности. Ориентировочные скорости осадконакопления, полученные с использованием литостратиграфических методов,

составили 0.5–1.0 см/год, однако их величина может сильно варьировать в зависимости от места отбора проб. Аккумулятивный процесс в реках осложняется эрозией осадков в период сильных наводнений (1955 и 1975 гг.), особенно в р. Екатеринбург, а также проведением локальных дноочистных работ (р. Карповка). Перераспределение донных отложений в результате размывов, проведения рекультивации, возникновения подводных оползней отмечалось и другими авторами [5, 15, 17]. Поэтому анализ скорости осадконакопления в городских водотоках проводится с учетом перечисленных факторов.

Наиболее полный разрез осадков получен в р. Екатеринбург (устье р. Ольховка), в забое которого (57–63 см) установлено отсутствие  $^{137}\text{Cs}$ . Можно предположить, что нижний слой осадков сформировался до 1949 г. (рис. 2а). Тогда средняя скорость осадконакопления за послевоенное время составит 0.79 см/год. Выше по разрезу в интервале 24–42 см установлен горизонт осадков повышенной удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  от 12.78 до 14.90 Бк/кг. Исходя из общего тренда изменения активности, можно предположить, что нижний слой этого горизонта сформировался в 1963 г., верхний, выше которого начинается резкое снижение удельной активности, в 1986 г. Расчет скорости осадконакопления по этим маркерам дает следующие результаты: с 1963 г. по настоящее время – 0.73 см/год, с 1986 г. по настоящее время – 0.75 и между 1963 и 1986 гг. – 0.70 см/год. Все полученные значения скоростей осадконакопления

говорят об устойчивой динамике процесса в течение всего рассматриваемого интервала времени.

Ранее в устье р. Ольховка проводилось определение скорости осадконакопления методом неравновесного  $^{210}\text{Pb}$ , использование которого здесь затруднено из-за возможности размыва и перемешивания осадков, а также аномально высокого содержания валового Pb, особенно в нижней части разреза (до 5.54% на сухое вещество), где наблюдался резкий рост удельной активности  $^{210}\text{Pb}$  [19]. Для определения возраста была применена модель постоянной начальной концентрации, но только в пределах тех интервалов разреза осадков, которые характеризовались примерно равным содержанием валового Pb. Кроме того, в качестве маркеров определенных этапов осадконакопления использовались геохимические показатели. Полученная средняя скорость осадконакопления за послевоенное время составила 0.67 см/год, что отражает хорошую сопоставимость полученных результатов (0.78 см/год по  $^{137}\text{Cs}$ ) в условиях высокой литолого-фациальной изменчивости донных отложений.

Значения удельной активности  $^{137}\text{Cs}$ , измеренное в осадках реки Черная Речка, показали, что их нижний слой в поднятой колонке сформировался после 1950 г., т. к. характеризуется относительно высокими значениями удельной активности радионуклида (рис. 2б). По разрезу осадков отмечено два выраженных пика содержания  $^{137}\text{Cs}$ : в интервале 43–46 см ( $13.09 \pm 2.68$ ) и 18–21 см ( $12.24 \pm 0.86$ ). Первый максимум можно идентифицировать с максимумом выпадений радионуклида в 1963 г., второй – с аварией в 1986 г. Отсюда средние скорости осадконакопления в месте отбора проб составят: с 1963 г. по настоящее время 0.78 см/год, с 1986 г. – 0.59 см/год, с 1963 по 1986 г. – 1.04 см/год. Выявленные различия в скорости накопления техногенных осадков укладываются в историю водоотведения в р. Черная Речка с максимумом промышленной активности в 60–70-е гг. XX в.

Наиболее сложная картина распределения удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  получилась в разрезе осадков р. Карповка, на отдельных участках которой проводились дноочистные работы. Этим объясняется низкое содержание радионуклида  $^{137}\text{Cs}$  (ниже порога чувствительности, используемой спектрометрической аппаратуры) на определенных глубинах по разрезу донных отложений. Однако по характеру вертикального распределения удельной активности и ее абсолютной величине можно предположить, что осадки в интервале 24–27 см сформировались в пик атмосферных выпадений цезия в 1963 г., тогда как “Чернобыльский” максимум можно отнести к слою 6–9 см (рис. 2в). Тогда средняя скорость осадконакопления с 1963 г. составила 0.45 см/год, в период с 1986 г. она снизи-

лась до 0.22 см/год; между этими событиями достигала 0.78 см/год. В целом такая эпюра скоростей имеет объяснение: максимальный рост промышленного производства приходится на 60–70-е гг. прошлого века, а в начале XXI в. практически все предприятия на берегах р. Карповка были ликвидированы, что привело к значительному уменьшению техногенной нагрузки.

Ряд снижения средних измеренных значений удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  в изученных реках представляет следующую последовательность: река Екатерингофка ( $7.99 \pm 2.42$ ) > река Черная Речка ( $7.40 \pm 1.99$ ) > река Карповка ( $4.67 \pm 1.55$ ). Наиболее вероятным объяснением этих различий является гранулометрический состав донных осадков. В реке Карповка они отличаются максимальным количеством песчаной фракции с низким адсорбционным потенциалом. Важно отметить, что измеренные значения удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  в донных отложениях рек не представляют опасности для здоровья жителей Санкт-Петербурга, т. к. в соответствии с [20] допустимая удельная активность  $^{137}\text{Cs}$  в твердых материалах составляет 100 Бк/кг.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенные исследования подтверждают сложность получения результатов при использовании радионуклидов для оценки скорости осадконакопления в водотоках урбанизированных территорий. Основными причинами являются неустойчивость аккумулятивных процессов, обусловленная вмешательством природных и антропогенных факторов, а также высокий уровень химического загрязнения. Тем не менее распределение значений удельной активности в разрезе осадков вполне коррелирует с историей техногенного развития изучаемой территории за последние 70 лет. Установленные средние скорости осадконакопления в изученных водотоках отражают значительную трансформацию литодинамического режима, свойственного рекам, функционирующим в природных или слабо нарушенных условиях.

Полученный материал позволяет уверенно констатировать отсутствие в центральной части города в прошлом и настоящем промышленных источников поступления  $^{137}\text{Cs}$  в окружающую среду, а также безопасный для населения уровень удельной активности радионуклида, которым характеризуются отложения водотоков.

Исследования проведены при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 19-05-00508).

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Опекунов А.Ю., Митрофанова Е.С., Спасский В.В. и др. // Водн. ресурсы. 2020. Т. 47. № 2. С. 196; Opekunov A.Yu., Mitrofanova E.S., Spasskii V.V. et al. // Water Resour. 2020. V. 47. No. 2. P. 282.*
2. *Alhaji E., Ismail I.M., Al-Masri M.S. et al. // Geochronometria. 2014. V. 41. No. 1. P. 81.*
3. *Guo J., Costa O.S., Wang Y. et al. // J. Environ. Radioact. 2020. V. 213. Art. No. 106136.*
4. *Li W., Li X., Mei X., Zhang F. et al. // Sci. Total Environ. 2021. V. 780. Art. No. 146522.*
5. *Papageorgiou D., Eleftheriou G., Patiris D.L. et al. // HNPS Proc. 2011. V. 19. P. 92.*
6. *Petrinec B., Franić Z., Ilijanić N. et al. // Radiat. Prot. Dosim. 2012. V. 151. No. 1. P. 102.*
7. *Ruiz-Fernandez A.C., Hillaire-Marcel C. // Mar. Pollut. Bull. 2009. V. 59. P. 134.*
8. *Alvarez-Iglesias P., Quintana B., Rubio B., Perez-Arleuca M. // J. Environ. Radioact. 2007. V. 98. P. 229.*
9. *He Q., Walling D.E. // J. Environ. Radioact. 1996. V. 30. P. 117.*
10. *Жеребчевский В.И., Лазарев В.В., Топилов С.Ю. На-работка изотопа <sup>63</sup>Zn. СПб: ВВМ, 2014. 30 с.*
11. *Ligero R.A., Barrera M., Casas-Ruiz M. // J. Environ. Radioact. 2005. V. 80. P. 75.*
12. *Tsabaris C., Kapsimalis V., Eleftheriou G. et al. // Environ Earth Sci. 2012. V. 67. No. 3. P. 833.*
13. *Kriauciunas V.V., Iglovsky S.A., Bazhenov A.V. et al. // Arctic Environ. Res. 2018. V. 18. No. 4. P. 148.*
14. *Olszewski G., Andersson P., Lindahl P., Eriksson M. // J. Environ. Radioact. 2018. V. 186. P. 142.*
15. *Zhou P., Li D., Li H. et al. // J. Environ. Radioact. 2015. V. 145. P. 102.*
16. *Страховенко В.Д., Щербов Б.Л., Маликова И.Н., Восель Ю.С. // Геол. и геофиз. 2010. Т. 51. № 11. С. 1501; Strakhovenko V.D., Shcherbov B.L., Malikova I.N., Vosel' Y. // Russ. Geol. Geophys. 2010. V. 51. No. 11. P. 1167.*
17. *Русаков В.Ю., Борисов А.П., Соловьева Г.Ю. // Геохимия. 2019. Т. 57. № 11. С. 1158; Rusakov V.Y., Borisov A.P., Solovieva G.Y. // Geochem. Int. 2019. V. 57. No. 11. P. 1185.*
18. *Опекунов А.Ю., Янсон С.Ю., Опекунова М.Г., Кукушкин С.Ю. // Вестн. СПб. ун-та. Науки о Земле. 2021. Т. 66. № 2. С. 267.*
19. *Опекунов А.Ю., Григорьев В.А., Опекунова М.Г. // Сб. тр. IX Междунар. конф. "Экологические проблемы. Взгляд в будущее". (Ростов-на-Дону, 2020) С. 480.*
20. Санитарные правила и нормативы СП 2.6.1.2612-10. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ-99/2010).

## Studies of radionuclide concentrations in the sediment samples from the St. Petersburg rivers

A. Yu. Opekunov<sup>a</sup>, \*, D. V. Pichugina<sup>a</sup>, V. I. Zhrebchevsky<sup>a</sup>, M. G. Opekunova<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Saint-Petersburg State University, Saint-Petersburg, 199034 Russia

\*e-mail: a\_opekunov@mail.ru

Using the radiocesium method, the age and rate of sedimentation in three columns of bottom sediments of the rivers of St. Petersburg were determined. In the section of sediments, pronounced maxima of specific activity are established. Based on these results, the average rates of sedimentation in the post-war period were determined.