

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки  
«Морской гидрофизический институт РАН»

*На правах рукописи*



КРЕМЕНЧУЦКИЙ ДМИТРИЙ АЛЕКСАНДРОВИЧ

**ФОРМИРОВАНИЕ И ЭВОЛЮЦИЯ ПОЛЯ КОНЦЕНТРАЦИИ  
БЕРИЛЛИЯ-7 ( $^7\text{Be}$ ) В ПОВЕРХНОСТНОМ СЛОЕ ВОД ЧЕРНОГО МОРЯ**

Специальность 25.00.28 – Океанология

Диссертация на соискание ученой степени  
кандидата географических наук

Научный руководитель:  
член-корреспондент РАН,  
доктор географических наук  
Коновалов Сергей Карпович

Севастополь – 2019

## ОГЛАВЛЕНИЕ

ВВЕДЕНИЕ.....	4
РАЗДЕЛ 1 СОВРЕМЕННОЕ СОСТОЯНИЕ ВОПРОСА .....	14
1.1 Источники $^7\text{Be}$ в объектах окружающей среды. $^7\text{Be}$ как трассер процессов в окружающей среде .....	14
1.2 Концентрация $^7\text{Be}$ в атмосфере. Факторы и процессы, влияющие на его содержание.....	16
1.3 Поток $^7\text{Be}$ на подстилающую поверхность. Факторы и процессы, влияющие на поток радионуклида .....	20
1.4 Содержание и распределение $^7\text{Be}$ в морской воде. Факторы и процессы, влияющие на его содержание .....	24
1.5 Моделирование переноса $^7\text{Be}$ в морской среде.....	28
Выводы к разделу 1 .....	29
РАЗДЕЛ 2 МАТЕРИАЛЫ НАБЛЮДЕНИЙ И МЕТОДЫ ОБРАБОТКИ .....	31
2.1 Описание методик, используемых в работе .....	31
2.1.1 Методика определения концентрации $^7\text{Be}$ в морской воде .....	31
2.1.2 Методика определения концентрации $^7\text{Be}$ в приземной атмосфере.....	37
2.1.3 Методика определения потока $^7\text{Be}$ на подстилающую поверхность.....	40
2.2 Материалы наблюдений .....	42
2.2.1 Вариация концентрации $^7\text{Be}$ в Черном море .....	42
2.2.2 Вариация концентрации $^7\text{Be}$ в приземной атмосфере севастопольского региона.....	44
2.2.3 Вариация потоков влажных и суммарных атмосферных выпадений в севастопольском регионе .....	46
2.3 Описание модели переноса $^7\text{Be}$ и постановка численного эксперимента.....	49
Выводы к разделу 2 .....	59
РАЗДЕЛ 3 БЕРИЛЛИЙ-7 В ВОДАХ ЧЕРНОГО МОРЯ И В ПРИЗЕМНОЙ АТМОСФЕРЕ ЧЕРНОМОРСКОГО РЕГИОНА ПО НАТУРНЫМ ДАННЫМ.....	61

3.1 Пространственно-временная изменчивость концентрации $^7\text{Be}$ в водах Черного моря .....	61
3.1.1 Вертикальное распределение концентрации $^7\text{Be}$ в море.....	61
3.1.2 Поле концентрации $^7\text{Be}$ в верхнем квазиоднородном слое моря.....	65
3.2 Поток $^7\text{Be}$ на поверхность Черного моря.....	76
3.2.1 Параметризация концентрации $^7\text{Be}$ в приземной атмосфере .....	77
3.2.2 Параметризация коэффициента вымывания $^7\text{Be}$ из атмосферы осадками .....	85
3.2.3 Параметризация потока $^7\text{Be}$ из атмосферы.....	91
Выводы к разделу 3 .....	96
<b>РАЗДЕЛ 4 ПРОСТРАНСТВЕННО-ВРЕМЕННАЯ ИЗМЕНЧИВОСТЬ ПОЛЯ КОНЦЕНТРАЦИИ <math>^7\text{Be}</math> В ЧЕРНОМ МОРЕ ПО РЕЗУЛЬТАТАМ ЧИСЛЕННЫХ ЭКСПЕРИМЕНТОВ.....</b>	<b>98</b>
4.1 Валидация результатов численных экспериментов .....	98
4.2 Сезонная изменчивость поля концентрации $^7\text{Be}$ .....	101
4.3 Анализ факторов формирования поля концентрации $^7\text{Be}$ в поверхностном слое вод Черного моря.....	104
Выводы к разделу 4.....	114
<b>ЗАКЛЮЧЕНИЕ .....</b>	<b>116</b>
<b>СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ.....</b>	<b>119</b>

## ВВЕДЕНИЕ

Актуальность темы исследования и степень ее разработанности

Актуальность работы обусловлена тем, что радиоактивные изотопы представляют интерес в качестве самостоятельного объекта для исследований и в роли трассеров в изучении процессов в окружающей среде. Одним из таких радионуклидов является  $^7\text{Be}$ . Изучению поведения этого радионуклида в разных регионах Земли уделяется значительное внимание [Baskaran, 2012; Laguionie et al., 2014; Kusmierczyk-Michulec et al., 2015; Lee et al., 2015; Haskell et al., 2015a; Haskell et al., 2015b; Bas et al., 2016; Du et al., 2016; Taylor et al., 2016; Kadko et al., 2017; Karala et al., 2018]. Его относительно небольшой период полураспада (53,3 суток) и высокие активности в морской воде (1–12 Бк м<sup>-3</sup>), способность адсорбироваться на взвешенном веществе и отсутствие источников радионуклида в морской среде делают  $^7\text{Be}$  полезным трассером в исследовании физических процессов на масштабах времени от синоптического до сезонного. В частности, характеристики пространственно-временной изменчивости концентрации  $^7\text{Be}$  в морской среде используются для: исследования субдукции поверхностных вод [Kadko, Olson, 1996]; вычисления скоростей апвеллинга и коэффициентов вертикальной турбулентной диффузии [Kadko, Johns, 2011; Haskell et al., 2015; Haskell, Hammond, Prokopenko, 2015; Kadko, 2017]; оценки потоков питательных веществ [Haskell et al., 2015a; Haskell et al., 2015b; Kadko, 2017]; изучения переноса взвешенного вещества и оценки скорости осадконакопления [Palinkas et al., 2005; Feng et al., 2010; Huang, Du, Zhang, 2011; Du et al., 2016]; валидации моделей переноса примесей [Brost et al., 1991; Rehfeld, Heimann, 1995; Koch, Mann, 1996].

В Черном море характеристики пространственно-временной изменчивости концентрации  $^7\text{Be}$  ранее не исследовались. Результаты такого исследования открывают возможность к использованию радионуклида в качестве трассера при изучении процессов, влияющих на его содержание и распределение в Черноморском регионе.

### Объект и предмет исследования

Объект исследования – поверхностный слой вод Черного моря. Предмет исследования – характеристики и факторы формирования поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в поверхностном слое вод Черного моря.

### Цель и задачи исследования

Целью данного исследования являлось выявление особенностей и факторов формирования и эволюции поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в поверхностном слое вод Черного моря.

Эта цель достигалась решением следующих задач:

1. получить данные о пространственно-временной изменчивости концентрации  ${}^7\text{Be}$  в водах Черного моря. Исследовать влияние взвеси на трансформацию поля концентрации  ${}^7\text{Be}$ ;
2. получить данные временной изменчивости содержания  ${}^7\text{Be}$  в приземной атмосфере и в атмосферных выпадениях в Черноморском регионе, как граничного условия и единственного источника данного изотопа. Оценить поток  ${}^7\text{Be}$  на поверхность Черного моря;
3. изучить формирование и эволюцию поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в водах Черного моря методами численного моделирования переноса пассивной примеси и физико-химических процессов с использованием региональной трехмерной термогидродинамической модели циркуляции Черного моря [Демышев, Коротаев, 1996; Чудиновских, Дымова, 2010];
4. получить количественные оценки влияния факторов формирования и эволюции поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в поверхностном слое вод Черного моря.

### Научная новизна полученных результатов:

1. впервые получены данные о среднесуточных значениях концентрации  ${}^7\text{Be}$  в приземной атмосфере и величине его потока с влажными атмосферными выпадениями в Черноморском регионе;
2. впервые рассчитаны суточные величины потока  ${}^7\text{Be}$  из атмосферы на поверхность Черного моря;

3. впервые получены данные о концентрации  ${}^7\text{Be}$  в водах Черного моря;
4. впервые проведены исследования распределения  ${}^7\text{Be}$  между растворенной и адсорбированной на взвеси формами в водах Черного моря, установлена функциональная связь с концентрацией взвеси;
5. впервые проведены исследования внутригодовой изменчивости поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в Черном море. Получены количественные оценки влияния адвективного и диффузионного переносов, радиоактивного распада и седиментации  ${}^7\text{Be}$  со взвешенным веществом на эволюцию поля концентрации радионуклида.

#### Теоретическая и практическая значимость работы

В работе получены количественные оценки влияния различных физических процессов (поступления  ${}^7\text{Be}$  из атмосферы на поверхность Черного моря, адвективного и диффузионного переносов в морской среде, радиоактивного распада и седиментации радионуклида со взвешенным веществом) на внутригодовую изменчивость поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в поверхностном слое вод Черного моря. Эти оценки могут стать основой для дальнейшего использования  ${}^7\text{Be}$  как трассера в исследованиях физико-химических процессов, влияющих на его содержание и распределение в морской среде. Полученные в работе параметризации коэффициента вымывания  ${}^7\text{Be}$  атмосферными осадками и коэффициента распределения радионуклида между растворенной и взвешенной формами в морской воде позволяют провести оценки потока  ${}^7\text{Be}$  из атмосферы на подстилающую поверхность и его концентрации на взвеси. Эти параметризации могут быть использованы при построении моделей переноса радионуклида в атмосфере и морской среде.

#### Методология и методы исследования

Основным методическим подходом в данной работе являлось получение и комплексный анализ разнородной информации: данных наблюдений (содержания  ${}^7\text{Be}$  в морской воде, на атмосферных аэрозолях и в атмосферных выпадениях, концентрации взвеси, метеоданные) и результатов численных экспериментов.

Основным инструментом исследования было численное моделирование с использованием региональной трехмерной гидродинамической модели циркуляции Черного моря (модель МГИ) [Демьшев, Коротаев, 1996]. Исходная модель была дополнена блоком переноса пассивной примеси и параметризациями физико-химических процессов с участием  $^7\text{Be}$ , а также параметризациями граничных условий поступления  $^7\text{Be}$  с атмосферными выпадениями и его потока на морское дно. Параметризация потока  $^7\text{Be}$  на подстилающую поверхность в Черноморском регионе проводилась на массивах данных многолетних наблюдений за поступлением  $^7\text{Be}$  с атмосферными выпадениями. Валидация результатов численного моделирования и полноты процесса эволюции поля  $^7\text{Be}$  в поверхностных водах Черного моря проводилась по натурным данным содержания и распределения  $^7\text{Be}$  в водах моря.

Полученные в работе результаты анализировались с привлечением методов математической статистики.

#### Положения, выносимые на защиту:

1. метод оценки потока  $^7\text{Be}$  из атмосферы на поверхность Черного моря;
2. количественные оценки характеристик пространственно-временной изменчивости поступления  $^7\text{Be}$  на подстилающую поверхность в Черноморском регионе, а также поля концентрации этого радионуклида в водах Черного моря;
3. количественные оценки влияния различных факторов (поступления  $^7\text{Be}$  из атмосферы на поверхность Черного моря, адвективного и диффузионного переносов в морской среде, радиоактивного распада и седиментации радионуклида со взвешенным веществом) на внутригодовую изменчивость поля концентрации  $^7\text{Be}$  в поверхностном слое вод Черного моря.

#### Степень достоверности результатов проведенных исследований

Натурные данные были получены с использованием методов, являющихся общепринятыми в области радиоэкологии. Калибровка оборудования, используемого для определения содержания  $^7\text{Be}$  в отобранных пробах,

осуществлялась с использованием сертифицированных источников ионизирующего излучения.

Валидация результатов численных экспериментов, полученных с использованием термогидродинамической модели циркуляции Черного моря (модель МГИ), дополненной блоком распространения пассивной примеси, проводилась на основе натуральных данных о концентрации  $^7\text{Be}$ . Установлено, что модель корректно воспроизводит пространственно-временную изменчивость поля концентрации  $^7\text{Be}$  в исследуемый период: полученные оценки содержания радионуклида согласуются с натуральными данными в пределах погрешности определения его концентрации в пробах морской воды.

#### Связь с научными программами, планами, темами

Работа выполнена в соответствии с научными планами и программами исследований Морского гидрофизического института НАН Украины и Федерального государственного бюджетного учреждения науки «Морской гидрофизический институт РАН» в рамках следующих научно-исследовательских проектов и грантов:

- проект «Исследование гидрофизических и биогеохимических процессов, определяющих устойчивость и ассимиляционную емкость большой черноморской экосистемы, в целях управления и создания методологии оценки качества морской среды» (шифр «Стабильная экосистема»), № госрегистрации 0106U001408 (2006–2010 гг.), исполнитель;

- проект «Комплексные междисциплинарные исследования океанологических процессов, определяющих функционирование и эволюцию экосистем Черного и Азовского морей на основе современных методов контроля состояния морской среды и гридтехнологий» (шифр «Фундаментальная океанография»), № госрегистрации 0111U001420 (2011–2015 гг.), исполнитель;

- проект «Комплексные междисциплинарные исследования океанологических процессов, определяющих функционирование и эволюцию экосистем Черного и Азовского морей на основе современных методов контроля

состояния морской среды и гритехнологий (шифр «Фундаментальная океанология»)» № госрегистрации 0827-2014-0010 (2015–2017 гг.) исполнитель;

- грант РФФИ «Поступление бериллия-7 с атмосферными осадками на подстилающую поверхность» № 14-45-01539 p\_юг\_a, исполнитель;

- грант РФФИ «Поле концентрации бериллия-7(<sup>7</sup>Be) в Черном море: особенности формирования и временная изменчивость» № 16-05-00206 а, исполнитель.

### Апробация работы

Результаты работы докладывались и обсуждались на следующих научных мероприятиях: Международная научная конференция «Функционирование и эволюция экосистем Азово-Черноморского бассейна в условиях глобального изменения климата» (пос. Кацивели, 2010 г.); Международный научно-технический семинар «Системы контроля окружающей среды» (Севастополь, 2009 г., 2011 г., 2012 г.); Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых «Ломоносовские чтения» (Севастополь, 2012 г., 2015 г.); IV научно-практической конференции ЕлИТ-2012 «Электроника и информационные технологии» (Львов, 2012 г.); Научная конференция «Молодые ученые – географической науке» (Киев, 2012 г.); Международная научная конференция «Интегрированная система мониторинга Черного и Азовского морей» (Севастополь, 2013 г.); Семинар кафедры радиохимии МГУ (Москва, 2013 г.); V фестиваль науки (Севастополь, 2014 г.); Научная конференция с международным участием «Современные проблемы гидрохимии и мониторинга качества поверхностных вод» (Ростов-на-Дону, 2015 г.); Седьмая школа-семинар «Спутниковые методы и системы исследования Земли» (Таруса, 2016 г.); Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых «Ломоносов-2016» (Москва, 2016 г.); Молодежная научная конференция «Комплексные исследования морей России: оперативная океанография и экспедиционные исследования» (Севастополь, 2016 г.); Научная конференция «Мировой океан: модели, данные и оперативная океанология» (Севастополь,

2016 г.); Научно-практическая конференция с международным участием «Экологическая, промышленная и энергетическая безопасность – 2017» (Севастополь, 2017 г.); I Международный экологический форум в Крыму «Крым – эколого-экономический регион. Пространство ноосферного развития» (Севастополь, 2017 г.); VII Международный симпозиум «INSINUME 2017» (Охрид, Македония, 2017 г.); Всероссийская школа-конференция молодых ученых «Состав атмосферы. Атмосферное электричество. Климатические процессы» (Борок, 2017 г.); Международная конференция «Goldschmidt-2017» (Париж, Франция, 2017 г.); Российская конференция с международным участием «Радиохимия 2018» (Санкт-Петербург, 2018 г.).

#### Публикации по теме диссертации

Основные результаты диссертации представлены в 27 работах. Из них:

- статей в научных журналах – 3 [Dovhyi et al., 2017; Kremenchutskii et al., 2018; Kremenchutskii, 2018];
- статей в рецензируемых сборниках научных трудов – 8 [Батраков и др., 2010; Кременчуцкий, Батраков и Семенов, 2011; Кременчуцкий, 2012а, 2012б, 2013; Кременчуцкий и др., 2014; Кременчуцкий и Батраков, 2016; Кременчуцкий, Дымова и Батраков, 2017];
- главы в коллективной монографии – 1 [Батраков и др., 2012];
- материалы в сборниках научных конференций – 15 [Кременчуцкий, 2012с, 2012д, 2016; Кременчуцкий и Дымова, 2012; Кременчуцкий, Коновалов и Батраков, 2015; Кременчуцкий и др., 2015, 2016, 2017, 2018; Кременчуцкий и Батраков, 2017а, 2017б; Батраков и Кременчуцкий, 2017; Kremenchutskii et al., 2017; Дымова и Кременчуцкий, 2017; Dovhyi et al., 2017].

Требованиям ВАК при Минобрнауки России удовлетворяют 9 работ в рецензируемых научных изданиях. В том числе: 3 работы [Dovhyi et al., 2017; Kremenchutskii et al., 2018; Kremenchutskii, 2018] в изданиях, входящих в наукометрические базы Web of Science и SCOPUS; 6 работ [Батраков и др., 2010; Кременчуцкий, Батраков и Семенов, 2011; Кременчуцкий, 2012а, 2012б, 2013;

Кременчуцкий и др., 2014] в изданиях, соответствующих п. 10 Постановления Правительства Российской Федерации от 30 июля 2014 г. № 723 «Об особенностях присуждения ученых степеней и присвоения ученых званий лицам, признанным гражданами Российской Федерации в связи с принятием в Российскую Федерацию Республики Крым и образования в составе Российской Федерации новых субъектов – Республики Крым и города федерального значения Севастополя».

#### Личный вклад соискателя

Соискателем совместно с научным руководителем проводилась постановка задач, разработка стратегии численных экспериментов и сбора натуральных данных. Им лично осуществлялся выбор методов исследований и отбор проб морской воды в экспедициях. Соискатель принимал участие в мониторинге содержания радионуклида на атмосферных аэрозолях и в атмосферных выпадениях. Измерения и расчет концентраций  $^7\text{Be}$  в отобранных пробах проводились соискателем лично. Соискатель принимал участие в проведении численных экспериментов. Обсуждение основных выводов и результатов исследований осуществлялось соискателем совместно с научным руководителем и соавторами научных публикаций.

#### Содержание диссертации

Во введении обосновывается актуальность темы диссертации, показывается ее связь с исследовательскими программами, планами, темами, раскрывается сущность и состояние научной проблемы. Формулируются цель и задачи работы, определяется объект и предмет исследования, приводятся методы исследования. Подчеркиваются результаты, несущие элементы научной новизны, описывается их практическая значимость. Приводится список научных семинаров, конференций, школ, на которых были апробированы основные положения диссертации. Прилагаются сведения о научных публикациях соискателя. Дается краткое описание структуры и содержания диссертационной работы.

В первом разделе дан краткий обзор современного состояния вопроса. Обсуждаются основные механизмы, управляющие пространственно-временной

изменчивостью потока  $^7\text{Be}$  на подстилающую поверхность и влияющие на эволюцию поля радионуклида в морской среде. Приводится анализ работ, посвященных моделированию  $^7\text{Be}$  в водной среде.

Во втором разделе описаны методики, используемые в работе для получения данных о содержании радионуклида в окружающей среде, и фактический материал наблюдений. Приведено описание модели переноса  $^7\text{Be}$  в морской среде и математическая постановка численных экспериментов.

В третьем разделе приведен анализ и обобщение натуральных данных концентрации  $^7\text{Be}$  в Черном море по материалам экспедиционных исследований, полученным на океанографической платформе в пос. Кацивели и в рейсах НИС «Профессор Водяницкий». Выделены основные особенности пространственно-временной изменчивости содержания  $^7\text{Be}$  в морской воде, установлена функциональная зависимость коэффициента распределения концентрации  $^7\text{Be}$  между растворенной и адсорбированной на взвеси формами. По результатам мониторинга содержания  $^7\text{Be}$  на атмосферных аэрозолях и в выпадениях получена параметризация коэффициента вымывания радионуклида из атмосферы с осадками на подстилающую поверхность, проведена ее валидация.

В четвертом разделе представлены результаты численных экспериментов, их валидация. Проанализирована сезонная изменчивость структуры поля концентрации  $^7\text{Be}$  в поверхностном слое вод Черного моря на примере 2016 г. Выделены определяющие ее факторы и исследована их пространственно-временная изменчивость.

В заключении приводятся основные результаты диссертационной работы.

#### Благодарности

Автор выражает искреннюю благодарность своему научному руководителю чл.-корр. РАН, д-ру геогр. наук С.К. Коновалову за неоценимую помощь и ценные советы при подготовке работы. Автор искренне признателен канд. физ.-мат. наук Г.Ф. Батракову (МГИ РАН), канд. физ.-мат. наук О.А. Дымовой (МГИ РАН), канд. физ.-мат. наук А.А. Кубрякову (МГИ РАН), канд. физ.-мат. наук С.В. Станичному

(МГИ РАН), д-ру физ.-мат. наук С.Г. Демышеву (МГИ РАН), д-ру хим. наук Ю.А. Сапожникову (химический факультет МГУ им. М. В. Ломоносова) за плодотворные дискуссии и поддержку на разных этапах выполнения работы.

#### Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, четырех разделов, заключения и списка использованных источников. Рукопись содержит 142 страницы, 50 рисунков и 11 таблиц, список литературы из 203 наименований.

## РАЗДЕЛ 1 СОВРЕМЕННОЕ СОСТОЯНИЕ ВОПРОСА

### 1.1 Источники $^7\text{Be}$ в объектах окружающей среды. $^7\text{Be}$ как трассер процессов в окружающей среде

Бериллий-7 ( $^7\text{Be}$ ) – это относительно короткоживущий радионуклид, образующийся в атмосфере. Первичный поток космических лучей (~98% – это протоны) имеют тенденцию перемещаться вдоль магнитного поля Земли и входить в атмосферу планеты преимущественно в районе магнитных полюсов. Эти протоны взаимодействуют с атомами в верхних слоях атмосферы и создают каскад вторичных космических лучей. Вторичные космические лучи представлены потоком нейтронов [Masarik, 2010]. Образование  $^7\text{Be}$  происходит в результате взаимодействия первичного и вторичного потока космических лучей с атомами кислорода, азота и углерода (Таблица 1.1) [Papastefanou, 2009]. Начальная энергия частиц космических лучей предопределяет как глубоко в атмосферу может проникнуть каскад вторичного потока космических лучей до того, как частицы потеряют способность взаимодействовать с ядрами элементов, находящихся в атмосфере. Комбинация двух факторов: быстрого уменьшения потока низкоэнергетических нейтронов и увеличения плотности атмосферы (другими словами: увеличения концентрации ядер) с глубиной приводит к пику концентрации  $^7\text{Be}$  в средних широтах [Junge, 1963]. Примерно 67%  $^7\text{Be}$  образуется в стратосфере, остальная часть приходится на тропосферу [Lal, Peters, 1963; Кременчуцкий, 2012а]. После образования радионуклид быстро адсорбируется атмосферными аэрозолями. Так как в верхних слоях атмосферы наиболее доступными являются аэрозоли диаметром от 0,03 до 1,0 мкм, атомы  $^7\text{Be}$  обычно адсорбируются этими частицами субмикронного размера [Батраков и др., 2012]. Из-за того, что аэрозоли таких диаметров не увеличиваются заметно в размерах и преимущественно не осаждаются, они перемещаются с потоками воздуха до тех пор, пока  $^7\text{Be}$  не распадется или пока частицы не покинут тропосферу с осадками [Papastefanou, 2009].

Таблица 1.1 – Реакции, приводящие к образованию  ${}^7\text{Be}$  [Лапицкий и Несменов, 1952; Стен, 1960; Papastefanou, 2009]

Реакция получения	Характер изучения	Энергия излучения, МэВ	Период полураспада
$\text{C}^{12}(p, \gamma)\text{Be}^7$	$\gamma$	0,477	53,3 дня
$\text{C}^{12}(n, \gamma)\text{Be}^7$			
$\text{N}^{14}(p, \alpha)\text{Be}^7$			
$\text{N}^{14}(n, \gamma)\text{Be}^7$			
$\text{O}^{16}(p, \gamma)\text{Be}^7$			
$\text{O}^{16}(n, \gamma)\text{Be}^7$			
$\text{Li}^6(p, \gamma)\text{Be}^7$			
$\text{Li}^7(p, n)\text{Be}^7$			
$\text{B}^{10}(p, \alpha)\text{Be}^7$			
$\text{B}^{10}(d, \alpha n)\text{Be}^7$			

Запас  ${}^7\text{Be}$  в атмосфере оценивается как  $1,8 \cdot 10^{17}$  Бк или  $\sim 4$  г [Masarik, 2010].

${}^7\text{Be}$  может быть использован как трассер для исследования ряда, в первую очередь, физических процессов в атмосфере и гидросфере [Lal, 1999]. Информация о пространственно-временной изменчивости  ${}^7\text{Be}$  в объектах окружающей среды находит применение для решения следующих задач:

- оценка скоростей апвелиинга и коэффициента диффузии по вертикали [Kadko, Johns, 2011; Haskell et al., 2015; Haskell, Hammond, Prokopenko, 2015; Kadko, 2017];
- исследование субдукции поверхностных вод и истории перемешивания слоев водных масс [Kadko, Olson, 1996];
- исследование динамики переноса взвешенного вещества и определение возраста донных отложений [Palinkas et al., 2005; Feng et al., 2010; Huang, Du, Zhang, 2011; Du et al., 2016];

- оценка потоков питательных веществ в морской среде [Haskell et al., 2015a; Haskell et al., 2015b; Kadko, 2017];
- исследование динамики и происхождения воздушных масс [Baskaran et al., 1993; Koch, Mann, 1996; Usoskin et al., 2009; Baskaran, 2012];
- определение времени жизни аэрозолей в тропосфере и стратосфере [Bleichrodt, 1978; Rangarajan, Eapen, 1990; Papastefanou, Ionnidou, 1995; Papastefanou, 2006; Ioannidou, Paatero, 2014];
- оценка интенсивности процессов обмена в атмосфере [Raisbeck et al., 1981; Jordan et al., 2003; Rehfeld, Heimann, 1995; Koch, Rind, 1998];
- оценка потоков аэрозолей из атмосферы на подстилающую поверхность [Young, Silker, 1980];
- определение потоков некоторых стабильных веществ на подстилающую поверхность [Turekian, Tanaka, 1992; Tanaka, Turekian, 1995];
- оценка потоков техногенных радионуклидов на подстилающую поверхность [Gustafson et al., 1961; Peirson, 1963; Schumann, Stoepler, 1963; Rangarajan, Gopalakrishnan, Section, 1970; Thomas et al., 1970; Alouso Hernandez et al., 2004];
- определение возраста воздушных масс [Koch et al., 1996];
- валидация результатов моделирования глобальной циркуляции атмосферы [Brost et al., 1991; Rehfeld, Heimann, 1995; Koch, Mann, 1996];
- исследование интенсивности процессов эрозии почвы [Blake et al., 1999; Blake et al., 2002; Wilson et al., 2003; Porto, Walling, 2014].

## 1.2 Концентрация $^7\text{Be}$ в атмосфере. Факторы и процессы, влияющие на его содержание

В атмосфере  $^7\text{Be}$  находится в виде  $\text{BeO}$  или  $\text{BeOH}^+$  и электростатически адсорбируется на атмосферных аэрозолях [Arnold, Al-Salih, 1955; Lal, Peters, 1967].

Материалы наблюдений содержания  $^7\text{Be}$  в приземной атмосфере доступны для большинства стран. Это связано с тем, что его концентрация в атмосфере

относительно велика, а сами данные получают как сопутствующие в рамках программ по мониторингу содержания техногенных радионуклидов, фоновые уровни концентраций которых на 2–3 порядка ниже аналогичных для  $^7\text{Be}$  (если, к примеру, говорить о  $^{137}\text{Cs}$ ). В качестве примера приведена карта расположения таких станций в рамках Европейской (Рисунок 1.1, а) и международной (Рисунок 1.1, б) сетей.

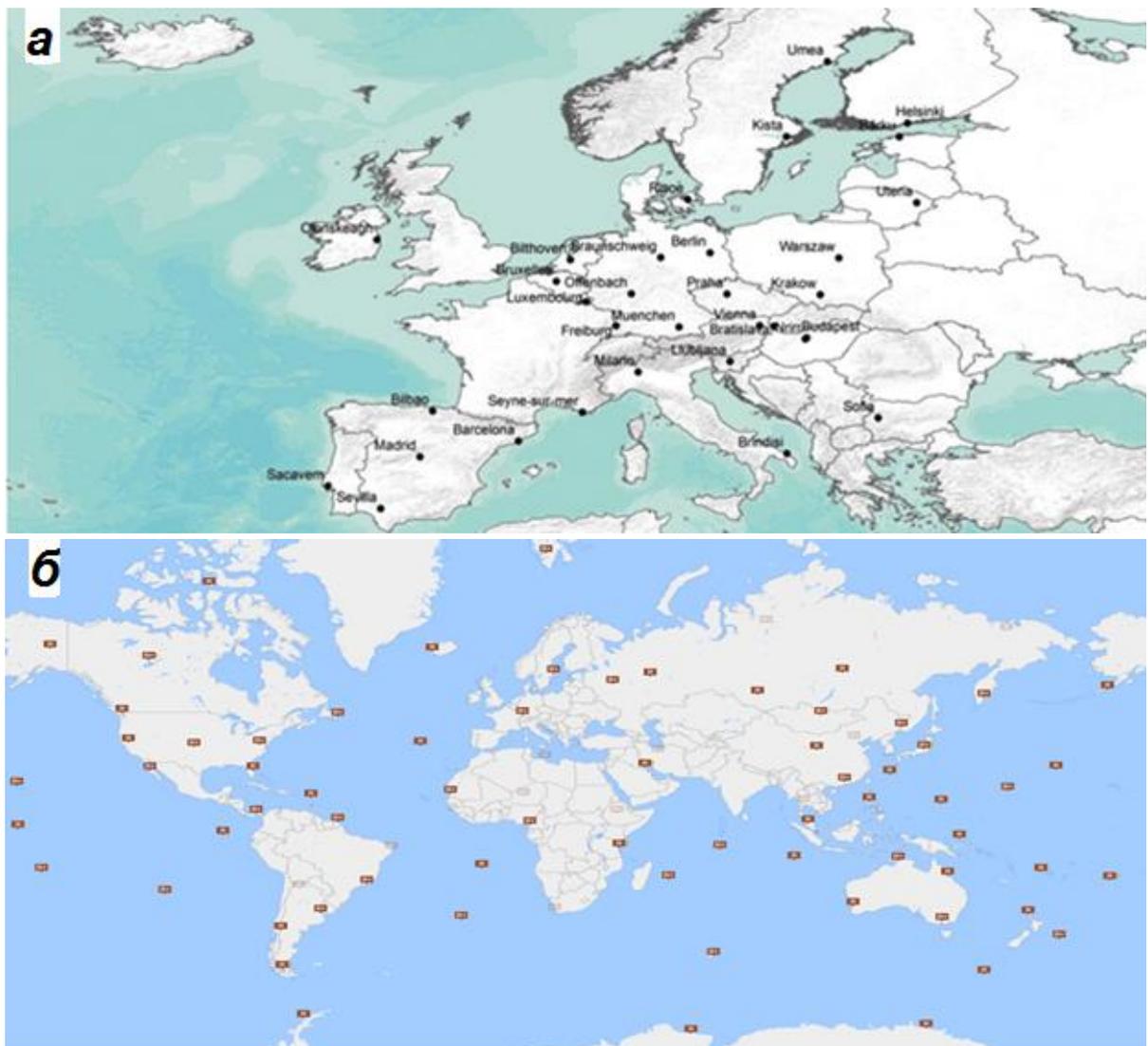


Рисунок 1.1 – Регионы, в которых проводятся измерения концентрации  $^7\text{Be}$  на атмосферных аэрозолях: положение станций согласно Европейской базе данных мониторинга радиоактивности окружающей среды (а) [Архив REM], положение станций согласно международной мониторинговой сети, действующей в рамках Договора о всеобъемлющем запрещении ядерных испытаний (б) [Архив СТВТО]

Относительно низкие средние значения концентрации  $^7\text{Be}$  наблюдаются в высоких широтах и во внутритропической зоне конвергенции [Brost et al., 1991]. Повышенные значения концентрации  $^7\text{Be}$  наблюдаются в средних широтах Северного и Южного полушария.

Для средних широт Северного полушария типичные значения концентрации  $^7\text{Be}$  составляют величину равную  $18 \text{ мБк м}^{-3}$  на уровне тропопаузы и  $155 \text{ мБк м}^{-3}$  в нижних слоях стратосферы [Dutkiewicz, Husain, 1985]. Типичные среднегодовые значения концентрации  $^7\text{Be}$  в приземной атмосфере стран Европы примерно  $3 \text{ мБк м}^{-3}$  [Brost et al., 1991; Gäggeler, 1995; Hernández-Ceballos et al., 2015].

Временная изменчивость концентрации  $^7\text{Be}$  подвержена влиянию ряда процессов на различных масштабах времени.

Модуляция потока космических лучей приводит к низкочастотной изменчивости приземной концентрации  $^7\text{Be}$ . Наблюдается устойчивая отрицательная корреляция между среднегодовыми значениями концентрации  $^7\text{Be}$  и числом солнечных пятен [Megumi et al., 2000; Cannizzaro et al., 2004; Papastefanou, Ioannidou, 2004; Aldahan et al., 2008; Arkian et al., 2008]. Было установлено, что максимум среднего значения концентрации  $^7\text{Be}$  в приземной атмосфере в 1,6 раза больше, чем минимум в течение полного цикла солнечной активности [Hotzl et al., 1991; Megumi et al., 2000].

Сезонная изменчивость данного радионуклида хорошо описана в литературе [Feely et al., 1989; Al-Azmi et al., 2001; Azahra et al., 2003; Ioannidou et al., 2005; Rajajić et al., 2016]. В работе [Feely et al., 1989] было показано, что сезонная изменчивость концентрации подвержена влиянию, по крайней мере, четырех факторов: (i) обмен между стратосферой и тропосферой, (ii) вертикальный обмен в тропосфере, (iii) адвекция воздушных масс от средних широт к более высоким, (iv) влажная очистка атмосферных аэрозолей. В результате обмена между стратосферой и тропосферой обогащенный  $^7\text{Be}$  стратосферный воздух попадает в тропосферу. В средних широтах интенсификация этого процесса наблюдается, как правило, в весенний период [Appenzeller et al., 1996]. Вертикальный обмен в

тропосфере может проявляться через конвективную циркуляцию. Интенсификация этого процесса происходит в весенне-летний период. Совместное влияние этих двух факторов на сезонную изменчивость концентрации радионуклида в средних широтах описано в работах [Azahra et al., 2003; Ioannidou et al., 2005]. В [Brost et al., 1991] отмечается особая важность процесса адвективного переноса воздушных масс от средних широт к более высоким и более низким на примере Арктического региона.

Влажная очистка атмосферы является важным процессом для бюджета  $^7\text{Be}$  в тропосфере. Результаты наблюдений свидетельствуют, что выпадение осадков приводит к уменьшению концентрации  $^7\text{Be}$  в приземной атмосфере примерно в два раза [Kusmierczyk-Michulec et al., 2015]. Отрицательная корреляция между концентраций  $^7\text{Be}$  в приземной атмосфере и осадками была найдена автором работы [Feely et al., 1989] для региона, в котором наблюдается ярко выраженная сезонная изменчивость количества осадков.

Изменчивость концентрации  $^7\text{Be}$  в приземной атмосфере на синоптическом масштабе времени была исследована авторами работ [Zanis et al., 1999; Gerasopoulos et al., 2001] на ряде альпийских станций. Установлено, что эта изменчивость была связана с различным распределением поля барического давления. Нисходящий транспорт воздушных масс от верхних слоев тропосферы под воздействием антициклона (ложбины) и влажная очистка аэрозолей-носителей  $^7\text{Be}$  под воздействием циклона (гребень) являются главными процессами, управляющими изменчивостью приземной концентрацией  $^7\text{Be}$  на синоптическом и суточном масштабах времени [Yoshimoro, 2005; Arkian et al., 2010].

Суперпозиция влияний перечисленных процессов носит региональный характер и обуславливает различия в содержании  $^7\text{Be}$  в приземном слое атмосферы и в его временной изменчивости.

### 1.3 Поток $^7\text{Be}$ на подстилающую поверхность. Факторы и процессы, влияющие на поток радионуклида

Бериллий-7, содержащийся на аэрозолях, может достигать поверхности Земли в результате воздействия одного из двух процессов: седиментации с сухими выпадениями и вымывания с атмосферными осадками. Вклад потока  $^7\text{Be}$  с атмосферными осадками в его суммарный поток может достигать 90%. [Benitez-Nelson, Buesseler, 1998; McNeary, Baskaran, 2003; Ioannidou, Papastefanou, 2006; Lozano et al., 2011; Baskaran, 2012; Pham et al., 2013; Laguionie et al., 2014; Taylor et al., 2016]. В регионах, характеризующихся относительно небольшим количеством осадков или их практически полным отсутствием, вклад сухих выпадений  $^7\text{Be}$  может значительно превышать 10% от величины его суммарного потока [Baskaran, 2012]. Данные, полученные в результате отбора проб во время выпадения дождя, указывают на то, что активность  $^7\text{Be}$  в осадках сначала быстро уменьшается до определенного уровня, а затем остается неизменной, тем самым указывая на переход от стадии вымывания к стадии соосаждения. Соосаждение является основной стадией в процессе удаления  $^7\text{Be}$  из атмосферы [Ishikawa et al., 1995; Caillet et al., 2001; Ioannidou, Papastefanou, 2006].

Среднегодовые величины потока  $^7\text{Be}$  на подстилающую поверхность изменяются от 400 до 6400 Бк м<sup>-2</sup> год<sup>-1</sup> и зависят от внутригодового распределения количества и частоты осадков, а также широты расположения исследуемого района [Harvey, Matthews, 1989; Baskaran et al., 1993; Dueñas et al., 2002; Ioannidou, Papastefanou, 2006; Baskaran, 2012; Кременчуцкий и др., 2014]. Низкие среднегодовые значения потока радионуклида характерны для Среднего востока и Средиземноморского региона, а также для Восточной Антарктики [Nijampurkar, Rao, 1993; Othman et al., 1998; Dueñas et al., 2002; Ioannidou, Papastefanou, 2006]. Самое большое значение потока (6350 Бк м<sup>-2</sup> год<sup>-1</sup>)  $^7\text{Be}$  было зарегистрировано на Южном острове Новой Зеландии [Harvey, Matthews, 1989]. Средняя величина

потока на поверхность для северной части Атлантического и Тихого океанов равна  $270 \text{ атомов м}^{-2} \text{ с}^{-1}$ , что соответствует  $1290 \text{ Бк м}^{-2} \text{ год}^{-1}$  [Young, Silker, 1980].

Временные изменчивости величин потока  $^7\text{Be}$  и количества осадков в отдельно взятом регионе, как правило, согласуются между собой [Baskaran et al., 1993; Kim et al., 2000; Caillet et al. 2001; Dueñas et al., 2002; McNeary, Baskaran, 2003; Ioannidou, Papastefanou, 2006; Lee et al., 2015; Taylor et al., 2016].

Поток  $^7\text{Be}$  из атмосферы определяется содержанием радионуклида в атмосфере, количеством выпавших осадков и коэффициентом вымывания радионуклида осадками [Feely et al., 1999; Baskaran et al., 1993].

Параметризация потока  $^7\text{Be}$  с влажными атмосферными выпадениями. Вымывание аэрозолей влажными атмосферными выпадениями разделяют на два процесса: вымывание частиц из подоблачного слоя ( $D_{wash}$ ) и вымывания из слоя облаков ( $D_{rain}$ ). В начале выпадения осадков первый процесс является доминирующим, но спустя некоторое время, по мере уменьшения концентрации аэрозолей в подоблачном слое, его влияние уменьшается и второй процесс становится определяющим [Sakashita et al., 2002]. Таким образом, влажный поток  $^7\text{Be}$  ( $D_{wet}$ ) – это его сумма с каждым из процессов:

$$D_{wet}(j) = D_{wash}(j) + D_{rain}(j). \quad (1.1)$$

В общем случае, поток с каждым из слагаемых в формуле (1.1) равен произведению концентрации радионуклида ( $C$ ) на высоту слоя ( $H$ ) и на коэффициент вымывания. Для параметризации процесса вымывания аэрозолей из подоблачного слоя ( $D_{wash}$ ) используют зависимость коэффициента вымывания ( $\Lambda$ ) от интенсивности осадков ( $R$ ), предложенную в работе [ArSimon et al., 1985]:

$$\Lambda_i = 5,0 \cdot 10^{-5} R_i^{0.8}, \quad (1.2)$$

где  $i$  – единичный временной интервал.

Таким образом величину потока  $D_{wash}$  за  $j$  временной интервал (к примеру, за сутки или месяц), состоящий из  $n$  числа  $i$  интервалов (к примеру, час) можно оценить по формуле [Sakashita et al., 2002]:

$$D_{wash}(j) = \sum_{i=1}^n \Lambda_i C_j Hr T_{int}, \quad (1.3)$$

где  $Hr$  – эффективная высота осадков, 500 м;

$C_j$  – осредненная величина концентрации  ${}^7\text{Be}$  за  $j$  временной интервал, Бк м<sup>-3</sup>;

$T_{int}$  – единичный временной интервал.

Величину потока  ${}^7\text{Be}$ , наблюдаемую в результате вымывания аэрозолей из слоя облаков, можно оценить по формуле [Brost et al., 1991]:

$$D_{rain}(j) = \sum_{i=1}^n (\alpha \lambda_{si} H_s + (1 - \alpha) \lambda_{ci} H_c) C_j T_{int}, \quad (1.4)$$

где  $\alpha$  – доля слоистых облаков,  $\alpha = 0,582$ ;

$\lambda_{si}$ ,  $\lambda_{ci}$  – эффективность вымывания  ${}^7\text{Be}$  осадками из слоистых и конвективных облаков соответственно;

$H_s$ ,  $H_c$  – высота слоистых и конвективных облаков,  $H_s = 3170$  м и  $H_c = 8680$  м.

Существует три параметризации, позволяющие оценить эффективности вымывания  $\lambda_{si}$ ,  $\lambda_{ci}$ . Первая была предложена в работе [Giorgi, Chameides, 1986]:

$$\lambda_i = \frac{F_i}{\Delta t} (1 - \exp(-\varepsilon \beta T_c)), \quad (1.5)$$

где  $\Delta t$  –  $i$  временной интервал;

$\varepsilon$  – эффективность вымывания фракции аэрозолей,  $\varepsilon = 1$ ;

$\beta$  – пересчет атмосферной жидкой воды в дождевую;

$T_c$  – продолжительность осадков.

Для слоистых облаков величины  $F$  и  $\beta$  рассчитываются по следующим формулам [Sakashita et al., 2002]:

$$F = \frac{F_0}{1 + \beta_0 \tau_s}, \quad (1.6)$$

$$\beta = \frac{\beta_0}{F_0} + \frac{1}{F_0 \tau_s}, \quad (1.7)$$

где  $F_0$  – константа,  $F_0 = 0,8$  [Giorgi, Chameides, 1986];

$\beta_0$  – константа,  $\beta_0 = 1,25 \cdot 10^{-4}$  [Giorgi, Chameides, 1986];

$\tau_s$  – параметр времени вымывания для слоистых облаков,  $\tau_s = \frac{L_{ws}}{Q}$ ;

$L_{ws}$  – содержание жидкости,  $L_{ws} = 1,5 \cdot 10^{-3}$  кг м<sup>-3</sup> [Rehfeld, Heimann, 1995];

$Q$  – скорость образования осадков,  $Q = \frac{R \rho_w}{H_s}$  кг м<sup>-3</sup> с<sup>-1</sup>;

$H_s$  – высота,  $H_s = 3170$  м [Rehfeld, Heimann, 1995];

$T_c = 40$  мин [Giorgi, Chameides, 1986].

Для конвективных облаков  $\beta = 1,5 \cdot 10^{-3}$  с<sup>-1</sup> [Giorgi, Chameides, 1986],  $T_c = 25$  мин [Giorgi, Chameides, 1986],  $L_{wc} = 2,5 \cdot 10^{-3}$  кг м<sup>-3</sup> [Rehfeld, Heimann, 1995],  $H_c = 8680$  м [Rehfeld, Heimann, 1995], а  $F$  определяется по формуле [Sakashita et al., 2002]:

$$F = \frac{0.3 \Delta t / T_c}{\Delta t / T_c + 0.3 \beta \tau_c}. \quad (1.8)$$

Вторая параметризация была предложена в работе [Kashibhatla et al., 1991]:

$$\lambda_i = \frac{R_i \rho_w}{L_w H}, \quad (1.9)$$

где  $R$  – интенсивность осадков, м с<sup>-1</sup>;

$\rho_w$  – плотность воды,  $\text{кг м}^{-3}$ ;

$H$  – высота облаков, для слоистых  $H_s = 3170$  м, для конвективных  $H_c = 8680$  м;

$L_w$  – содержание жидкости в облаках,  $L_{ws} = 1,5 \cdot 10^{-3} \text{ кг м}^{-3}$  и  $L_{wc} = 2,5 \cdot 10^{-3} \text{ кг м}^{-3}$ , для слоистых и конвективных соответственно.

В работе [Sakashita et al., 2002] сообщается, что обе параметризации имеют тенденцию переоценивать поток радионуклида, поэтому ими была предложена третья, объединяющая первую и вторую:

$$\lambda_i = \frac{1}{\Delta t} \left[ 1 - \exp \left( - \frac{R_i \rho_w}{L_w H} \Delta t \right) \right]. \quad (1.10)$$

Условные обозначения и величины констант в формуле (1.10) аналогичны предыдущим двум параметризациям.

Она также имеет тенденцию к переоценке величины потока, но в случае обильных осадков величина отклонения рассчитанных значений к измеренным меньше [Sakashita et al., 2002].

#### 1.4 Содержание и распределение $^7\text{Be}$ в морской воде. Факторы и процессы, влияющие на его содержание

Согласно сведениям, представленным в доступной литературе, впервые измерения концентрации  $^7\text{Be}$  в морской воде были проведены в 1962 г. [Lal et al., 1964]. Несмотря на это, данные о содержании и формах нахождения  $^7\text{Be}$  в морской воде сильно ограничены, а для ряда районов Мирового океана, в том числе и для Черного моря, отсутствуют вовсе (Рисунок 1.2) [Young, Silker, 1980; Aaboe et al., 1981; Tanaka, Tsunogai, 1983; Olsen et al., 1986; Lee et al., 1991; Kadko, Olson, 1996; Saito et al., 2005; Kadko, 2009; Nakanishi et al., 2009, 2017; Kadko, Johns, 2011; Inoue et al., 2013; Haskell et al., 2015a; Haskell et al., 2015b]. До сих пор не определена роль взвеси в эволюции поля радионуклида.

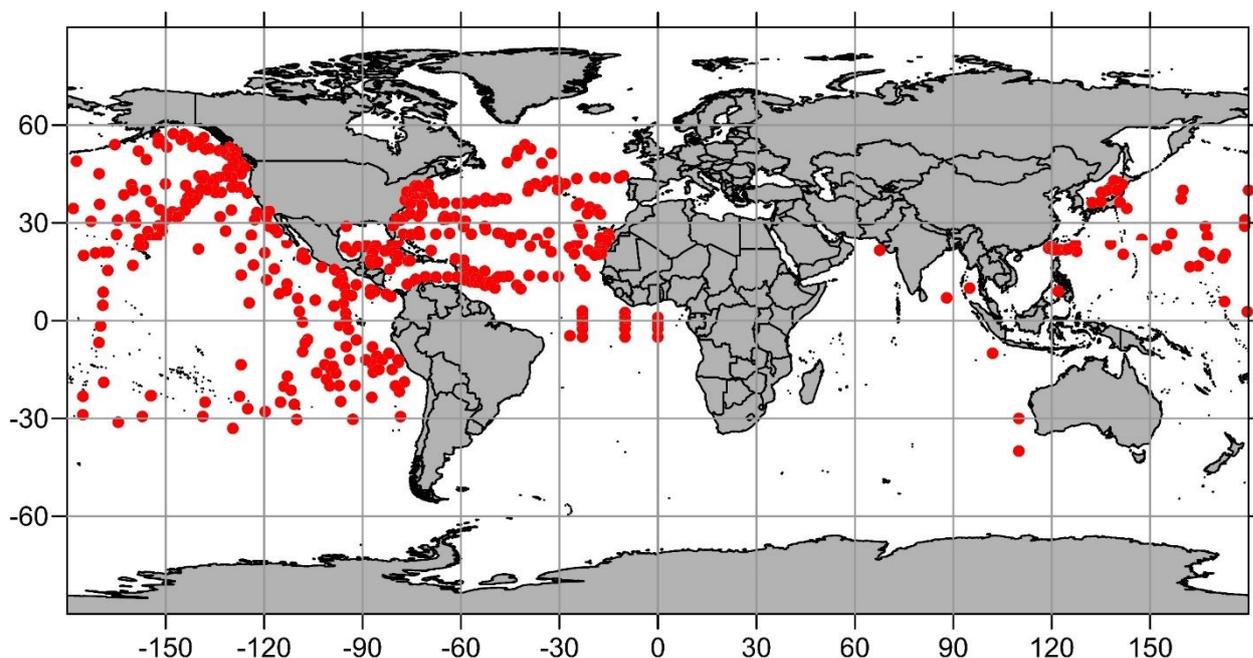


Рисунок 1.2 – Пространственное распределение станций отбора проб морской воды для определения содержания  $^7\text{Be}$

В последующие два десятилетия после первого определения содержания  $^7\text{Be}$  в морской среде измерениями его концентрации активно занимались В. Б. Силкер и Дж. А. Янг [Silker et al., 1968; Silker, 1969; Silker, 1972a; Silker, 1972b; Silker, 1972c; Silker et al., 1973; Young, Silker, 1980]. Они проводили исследования в водах Атлантического и Тихого океанов и установили, что концентрация  $^7\text{Be}$  в поверхностном слое вод изменялась от 1 до 12 Бк м<sup>-3</sup>. Средняя величина концентрации бериллия в поверхностном слое вод Атлантики составляла 5,48 Бк м<sup>-3</sup> из которых ~0,33 Бк м<sup>-3</sup> – содержание изотопа на твердой фракции [Кременчуцкий, 2012b]. Изменчивость поверхностной концентрации авторы связывали с вариацией величины суммарного потока на водную поверхность, которая изменялась в интервале от 80 до 600 Бк м<sup>-2</sup>. Они определили, что повышенные значения концентрации и потока наблюдались в регионах с повышенным количеством осадков. Наблюдалось увеличение концентрации  $^7\text{Be}$  в воде с увеличением широты, что было обусловлено увеличением содержания  $^7\text{Be}$  в атмосфере. Авторами были также представлены глубинные профили концентрации  $^7\text{Be}$  и показано, что вертикальное распределение этого радионуклида в водах

океана, в целом, отражает профиль температуры. Они также выявили, что если термоклин расположен на глубине до 100 м, то концентрация  $^7\text{Be}$  в перемешанном слое постоянна и быстро уменьшается ниже термоклина. Если термоклин находится на глубине свыше 100 м, то концентрация  $^7\text{Be}$  уменьшается до уровня чувствительности метода в пределах перемешанного слоя. Ими было зафиксировано, что в верхнем квазиоднородном слое (ВКС) и термоклине содержание  $^7\text{Be}$  на взвеси составляет в среднем 10%. Столь небольшой процент взвешенного бериллия, элемента, весьма склонного к сорбции, объясняется малой концентрацией взвеси [Попов, 1974].

По данным, полученным для прибрежных вод Аляски [Gosink, 1976], бериллий обнаруживался только на взвеси, а в фильтрованной воде его содержание было ниже чувствительности метода. В работе [Bloom, Crecelius, 1983] было показано, что  $^7\text{Be}$  одинаково эффективно адсорбируется на органической (детрит) и неорганической (гидроокись железа) взвеси. В работе [Li et al., 1984] было получено, что в прибрежной зоне бериллий адсорбировался преимущественно на взвесь неорганического происхождения (в данном случае, красная глина). Исследования [Bloom, Crecelius, 1983] показали, что при концентрации взвеси от 0,4 до 1,3 мг л<sup>-1</sup> равновесие в его распределении между растворенной и адсорбированной фазами достигается за сутки, а дальнейшие изменения не превышают ошибок, связанных с определением этого параметра. Для того чтобы охарактеризовать распределение  $^7\text{Be}$  между фазами, вычисляют коэффициент  $K_d$  по формуле [Honeyman, Santschi, 1989; Кременчуцкий, 2013]:

$$K_d = \frac{Be_p}{Be_d \cdot C_p}, \quad (1.11)$$

где  $Be_p$  – концентрация  $^7\text{Be}$  на частицах взвешенного вещества, Бк л<sup>-1</sup>;

$Be_d$  – концентрация  $^7\text{Be}$  в морской воде, Бк л<sup>-1</sup>;

$C_p$  – концентрация взвеси, кг л<sup>-1</sup>.

Величина  $K_d$  зависит от концентрации взвеси, солености и рН воды [Hawley et al., 1986]. Уменьшение величины рН приводит к уменьшению  $K_d$ , но при величинах рН выше 6 этим фактором можно пренебречь [Hawley et al., 1986]. С увеличением концентрации взвеси величина  $K_d$  также уменьшается. До сих пор окончательно не установлены причины такого поведения  $K_d$ . В статье [Li et al., 1984] эта закономерность объясняется тем, что с увеличением концентрации взвеси изменения массы частиц и эффективной поверхности неравнозначны, другими словами, величина отношения эффективной поверхности к массе частиц уменьшается. Зависимость  $K_d$  от величины солености изучена плохо. В работе [Bloom, Crecelius, 1983] показано, что увеличение солености приводит к уменьшению  $K_d$ . По-видимому, это связано с увеличением ионной силы раствора.

Закономерности, описанные в работах В. Б. Силкера и Дж. А. Янга, были подтверждены в ряде исследований в водах Мирового океана. Результаты исследований, выполненных в Саргассовом море [Aaboe et al., 1981], показали, что распределение концентрации  ${}^7\text{Be}$  зависит от глубины расположения термоклина, а активность радионуклида на глубинах, расположенных ниже перемешанного слоя, убывает по экспоненте.

В работах, проводимых в Южной калифорнийской бухте были получены профили  ${}^7\text{Be}$  и рассчитан коэффициент диффузии через термоклины [Lee et al., 1991]. Концентрация  ${}^7\text{Be}$  в пробах изменялась от 3,1 до 0,37 Бк м<sup>-3</sup>, на глубинах 4 и 60 м соответственно. Величина коэффициента диффузии изменялась от 7 до 15 см<sup>2</sup> с<sup>-1</sup>.

В последнее десятилетие проводятся нерегулярные измерения концентрации  ${}^7\text{Be}$  в водах Атлантического и Тихого океанов [Andrews et al., 2008; Nakanishi et al., 2009; Kadko, 2009, 2017; Kadko, Prospero, 2011; Kadko, Johns, 2011; Haskell et al., 2015a; Haskell et al., 2015b]. Эти работы направлены в большей степени на определение возможности использования  ${}^7\text{Be}$  в качестве трассера в исследованиях вертикального обмена в морской среде.

Данные о содержании и распределении  ${}^7\text{Be}$  для вод Черного моря отсутствуют.

### 1.5 Моделирование переноса $^7\text{Be}$ в морской среде

Численное моделирование представляет собой удобный инструмент, позволяющий распространить полученные закономерности на интересующий регион, проверить полноту рассматриваемых процессов и получить количественные оценки их вклада [Кременчуцкий и др., 2017; Kremenchutskii et al., 2018]. Модели переноса радионуклидов традиционно представляют большой интерес и используются, в частности, для оценки состояния и прогнозирования изменений (в том числе катастрофических) в исследуемой экосистеме.

В настоящее время трехмерная модель переноса  $^7\text{Be}$  в морской воде отсутствует.

Расчеты вертикального распределения  $^7\text{Be}$  в поверхностных водах океана были выполнены В. Б. Силкером. В работе [Silker, 1972a] была использована одномерная модель с постоянным коэффициентом диффузии по вертикали ( $K_z$ ). Позже А. С. Виноградовым [Виноградов, 1978] также была предложена одномерная модель вертикального распределения концентрации  $^7\text{Be}$ . Особенностью модели стало то, что формирование вертикального профиля концентрации  $^7\text{Be}$  происходило под воздействием переменного потока этого радионуклида на морскую поверхность. Величина этого потока зависела, главным образом, от концентрации  $^7\text{Be}$  в атмосфере. Задача решалась исходя из условия, что поток имел постоянную и периодическую составляющую. Считалось, что из-за высокой интенсивности обмена в верхнем квазиоднородном слое, поток изотопа на верхней границе термоклина мало отличался от его потока на поверхность, а диффузия рассматривалась уже в слое термоклина. Коэффициент диффузии по вертикали принимался постоянным. Влиянием адвективного слагаемого пренебрегали. Было показано, что изменение концентрации изотопа с глубиной происходило с запаздыванием по фазе относительно потока на поверхности. Этот сдвиг представлял собой линейную функцию глубины. Отмечалось, что запаздывание максимума концентрации на данной глубине относительно

максимума концентрации на поверхности обратно пропорционально корню квадратному из величины коэффициента диффузии, а сдвиг по фазе равен 27 дням. Именно поэтому максимум поверхностной концентрации изотопа в экспериментах приходился на конец июня, а максимум запаса – на вторую половину июля.

В работе [Kadko, Olson, 1996] были представлены результаты исследования временной изменчивости вертикального распределения  $^7\text{Be}$ , полученные с использованием боксовой модели, состоящей из 125 боксов, высотой по 2 м. каждый. При проведении численных экспериментов учитывался сезонный цикл изменения глубины перемешанного слоя. Расчеты выполнялись при различных величинах коэффициента диффузии по вертикали и потока на поверхность. Было получено, что увеличение глубины перемешанного слоя приводило к уменьшению содержания  $^7\text{Be}$  в поверхностном слое.

#### Выводы к разделу 1

Проведенный обзор литературных данных позволил сделать выводы, что основным источником поступления  $^7\text{Be}$  в Черное море являются влажные атмосферные выпадения. Поступление радионуклида на подстилающую поверхность изменяется во времени и по пространству, и определяется пространственно-временной неоднородностью полей атмосферных осадков и концентрации  $^7\text{Be}$  в атмосфере. Пространственно-временной изменчивостью потока сухих выпадений можно пренебречь, а сам поток  $^7\text{Be}$  с сухими выпадениями можно считать величиной постоянной.

Сведения о содержании и распределении  $^7\text{Be}$  в водах Черного моря отсутствуют. Пространственно-временная изменчивость общего содержания радионуклида в поверхностном слое вод моря может варьироваться в широком интервале от 1 до 12 Бк м<sup>-3</sup> и будет определяться, в большей степени, неравномерностью распределения осадков над Черным морем в течении года. Следует ожидать, что в морской среде  $^7\text{Be}$  распределен между растворенной и адсорбированной на взвеси формами. Содержание изотопа на взвеси, в первую

очередь, будет зависеть от концентрации последней. Адсорбция на частицы взвешенного вещества и их седиментация может выступать дополнительным стоком радионуклида из поверхностного слоя. Количественные оценки влияния этого фактора на процесс эволюции поля радионуклида отсутствуют.

В настоящее время трехмерная модель переноса  ${}^7\text{Be}$  в морской среде отсутствует.

В доступной литературе описаны три подхода к оценке величины влажного потока  ${}^7\text{Be}$  из атмосферы на подстилающую поверхность и все они выявляют тенденцию к его переоценке.

## РАЗДЕЛ 2 МАТЕРИАЛЫ НАБЛЮДЕНИЙ И МЕТОДЫ ОБРАБОТКИ

### 2.1 Описание методик, используемых в работе

#### 2.1.1 Методика определения концентрации $^7\text{Be}$ в морской воде

Основываясь на опубликованных работах [Silker et al., 1971; Lee et al., 1991; Baskaran et al., 2009; Nakanishi et al., 2009] (Рисунок 2.1), была выбрана методика, предполагающая использование сорбентов, поскольку она предполагает относительно простую процедуру отбора и обработки пробы морской воды, по сравнению с методиками, предполагающими соосаждение  $^7\text{Be}$ .

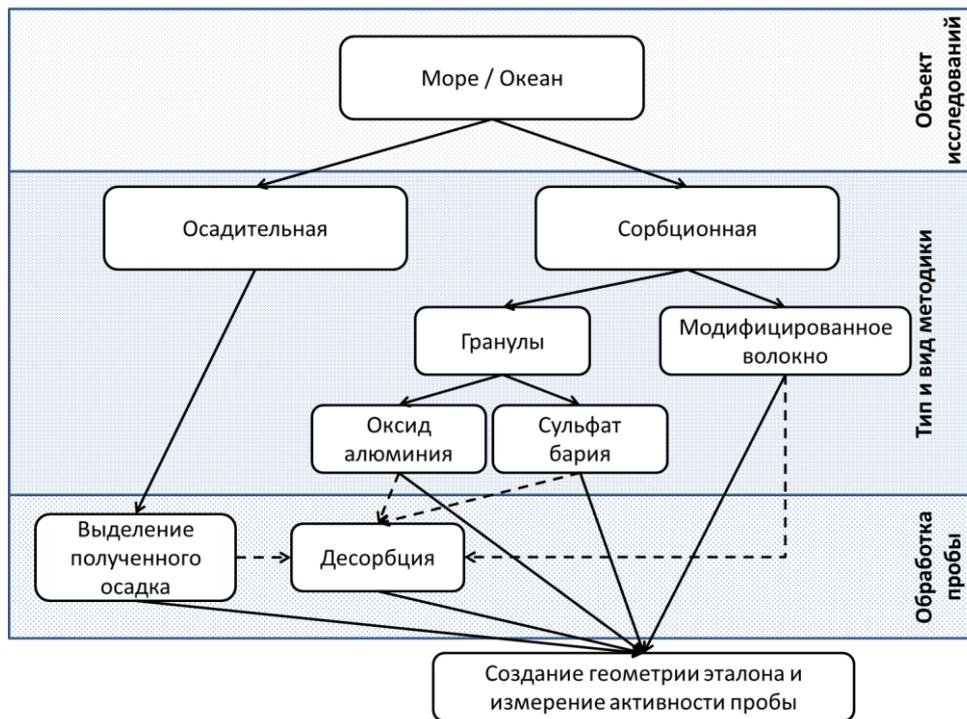


Рисунок 2.1 – Упрощенное схематическое представление основных этапов методик определения содержания  $^7\text{Be}$  в морской воде. Пунктирной стрелкой показаны альтернативные пути

Натурные данные были получены с использованием двух видов сорбента.

Первый сорбент представлял собой полипропиленовые картриджи (диаметром 6,5 см и высотой 8,3 см), импрегнированные гидроксидом железа (III).

Полипропиленовые волокна способны удерживать большее количество сорбента, по сравнению с акриловыми [Benitez-Nelson, Buessler, 1998].

Второй сорбент представлял собой гранулированный оксид алюминия (ООО Техпроект), с размером гранул от 2 до 8 мм.

Результаты, полученные с использованием этих двух сорбентов, были сопоставимы.

Определение концентрации  ${}^7\text{Be}$  в морской воде, как правило, осуществляется по схеме, включающей несколько последовательных операций: подготовка к экспедиции, отбор проб воды в экспедиции, их предварительная обработка с целью концентрирования изотопа на образце малого объема, подготовка образца к измерению и инструментальные измерения.

Подготовка. Полипропиленовые картриджи с размером пор 1 мкм (FCPS1M, Aquafilter Europe Ltd.) использовались для предварительной очистки воды от взвеси. На стадии подготовки картриджи просушивались в сушильном шкафу (при температуре  $80^\circ\text{C}$ ) до наступления постоянства их массы, фиксируемой с помощью аналитических весов. Таким образом определялась исходная масса каждого картриджа.

Для импрегнирования использовались полипропиленовые картриджи с размером пор 5 мкм (FCPS 5, Aquafilter Europe Ltd.). Картриджи помещались в 50%-й раствор хлорного железа ( $\text{FeCl}_3$ ) на 8 часов. Температура раствора поддерживалась в диапазоне от  $85$  до  $90^\circ\text{C}$ . По истечению 8 часов раствору и картриджам давали остыть. Далее картриджи помещались в 3М-ый раствор аммиака ( $\text{NH}_4\text{OH}$ ) на ночь. Готовые картриджи, содержащие гидроксид железа ( $\text{Fe}(\text{OH})_3$ ), промывались в течение 10 минут водой для удаления излишков сорбента, и запаковывались в пластиковые пакеты.

Гранулированный оксид алюминия представлял собой готовый к использованию сорбент, не требующий подготовки.

Отбор пробы и концентрирование. Для отбора проб морской воды использовалось две методики.

Согласно первой методике, морская вода поднималась на борт судна с помощью погружного насоса (объемная скорость 4–17 л мин<sup>-1</sup>), прокачивалась через систему колб (FHPR34-3S, Aquafilter Europe Ltd.) и сбрасывалась обратно в море. Использовалось 4 колбы: одна содержала фильтр механической очистки воды от взвеси (FCPS1M, Aquafilter Europe Ltd.), другие три – картриджи (FCPS 5 или FCEB10, Aquafilter Europe Ltd.) с сорбентом

Согласно второй методике, морская вода поднималась на борт судна с помощью погружного насоса (объемная скорость 100 л мин<sup>-1</sup>) и закачивалась в 8 емкостей объемом 1 м<sup>3</sup> каждая. Далее, используя поверхностный насос (объемная скорость 6–10 л мин<sup>-1</sup>), она выкачивалась из емкостей через такую же систему колб.

В отдельных случаях (когда возникала необходимость увеличить объем пробы морской воды) эти две методики комбинировались, то есть использовались два погружных насоса различной производительности находящиеся на одной глубине. С помощью первого насоса проводилось наполнение емкостей. Вода со второго насоса прокачивалась непосредственно через систему колб, содержащих фильтр и сорбенты. По окончании работ на станции, эта система переключалась с погружного насоса на поверхностный, то есть с обработки забортной воды на аккумулированную в емкостях.

Фиксация объема прокаченной морской воды проводилась с помощью водомера. Объем единичной пробы морской воды изменялся от 1 до ~10 м<sup>3</sup>.

Предварительная очистка морской воды от взвеси, с одной стороны, продлевает срок службы сорбента, что позволяет прокачать больший объем воды и получать пробу большей активности (актуально для первого типа сорбентов), с другой стороны, это позволяет получить оценки величины коэффициента распределения <sup>7</sup>Be между растворимой и адсорбированной на взвесах формами.

Подготовка пробы. По окончании отбора пробы, сорбенты и фильтр на взвесь извлекались из колб и высушивались.

На берегу, фильтры на взвесь высушивались повторно (при температуре 80°C) до наступления постоянства их массы. Проводилось определение приращение массы каждого картриджа (масса взвеси) и концентрация взвеси в пробе морской воды.

Оба типа полипропиленовых картриджей (импрегнированные гидроксидом железа и содержащие взвесь) озольались в муфельной печи при температуре 600°C в течении 6 часов.

#### Регистрация активности пробы и расчет концентрации ${}^7\text{Be}$ в морской воде.

Зола с проб морской взвеси и полипропиленовых картриджей, импрегнированных гидроксидом железа, упаковывалась в чашки Петри (диаметром 55 мм и высотой 12 мм). Гранулы оксида алюминия упаковывались в сосуды Маринели.

Измерения активности  ${}^7\text{Be}$  в пробах проводились, преимущественно, на гамма-спектрометре со сцинтилляционным детектором NaI(Tl) (диаметр кристалла составлял 63 мм, высота – 63 мм, разрешение – 7% по пику  ${}^{137}\text{Cs}$  с энергией 662 КэВ). Часть проб дополнительно измерялась на высокопрецизионном гамма-спектрометре с полупроводниковым детектором фирмы ORTEC (GMX-10, США) с разрешением 1,75 КэВ по пику  ${}^{60}\text{Co}$ .

Общее содержание  ${}^7\text{Be}$  в морской воде ( ${}^7\text{Be}_{tot}$ ) рассчитывалось как сумма концентраций  ${}^7\text{Be}$  в растворенной ( ${}^7\text{Be}_d$ ) и адсорбированной на взвеси ( ${}^7\text{Be}_p$ ) форм:

$${}^7\text{Be}_{tot} = {}^7\text{Be}_d + {}^7\text{Be}_p. \quad (2.1)$$

Концентрация  ${}^7\text{Be}$  в растворенной или адсорбированной на взвеси формах рассчитывалась по следующей формуле [IAEA, 2004]:

$${}^7\text{Be}_{d,p} = \frac{A_{d,p}}{V \cdot K_1 \cdot K_2}, \quad (2.2)$$

где  $A_{d,p}$  – активность  ${}^7\text{Be}$  в пробе морской воды в растворенной ( $A_d$ ) или адсорбированной на взвеси ( $A_p$ ) формах, Бк;

$V$  – объем пробы морской воды, м<sup>3</sup>;

$K_1$  – поправка на радиоактивный распад <sup>7</sup>Be за время между отбором пробы и началом регистрации ее активности;

$K_2$  – поправка на радиоактивный распад <sup>7</sup>Be в пробе в течении регистрации ее активности.

Активность <sup>7</sup>Be в растворенной форме рассчитывалась по следующей формуле [Геденов и др., 1978]:

$$A_d = \frac{1}{3} \cdot \left[ \frac{A_1}{1-\beta} + \frac{A_2}{\beta \cdot (1-\beta)} + \frac{A_3}{\beta^2 \cdot (1-\beta)} \right], \quad (2.3)$$

где  $A_1, A_2, A_3$  – активность <sup>7</sup>Be на первой, второй и третьей колонках сорбента соответственно, Бк;

$\beta$  – средняя величина коэффициента проскока через сорбент, то есть доля <sup>7</sup>Be, непоглощенного сорбентом.

Коэффициент проскока ( $\beta$ ) оценивался по следующей формуле [Геденов и др., 1978]:

$$\beta = \frac{1}{3} \cdot \left( \frac{A_2}{A_1} + \sqrt{\frac{A_3}{A_1} + \frac{A_3}{A_2}} \right). \quad (2.4)$$

Активность <sup>7</sup>Be на колонках сорбентов ( $A_1, A_2, A_3$ ) или на взвеси ( $A_p$ ) рассчитывалась по следующей формуле [IAEA, 2004]:

$$A_{1,2,3,p} = \frac{N - N_b \frac{t}{t_b}}{t \cdot \gamma \cdot \varepsilon(E)}, \quad (2.5)$$

где  $N$  – число импульсов, зафиксированных в определенном диапазоне каналов, за время  $t$  при измерении активности <sup>7</sup>Be в пробе, имп;

$N_b$  – число импульсов, зафиксированных в том же диапазоне, за время  $t_b$  при измерении фоновых характеристик используемых препаратов, имп;

$\gamma$  – выход гамма квантов,  $\gamma = 10,3\%$ ;

$\varepsilon(E)$  – эффективность регистрации гамма-квантов с энергией  $E$ ;

Расчет эффективности регистрации гамма-квантов с энергией  $E$  проводился по следующей формуле:

$$\varepsilon(E) = \frac{N}{T_1 \cdot \gamma \cdot A \cdot K_w \cdot U_f}, \quad (2.6)$$

где  $N$  – площадь фотопика калибровочного источника;

$T_1$  – время набора спектра, с;

$\gamma$  – выход гамма-квантов энергией  $E$  при распаде;

$A$  – активность источника на время поверки;

$K_w$  – коэффициент, учитывающий распад изотопа в источнике за время между последней поверкой и началом калибровки, рассчитываемый аналогично  $K_I$ ;

$U_f$  – коэффициент перевода одних единиц измерения в другие (например, из дрт в Бк).

Распад  ${}^7\text{Be}$  в пробе за время от окончания отбора пробы до момента начала регистрации ее активности учитывался по следующей формуле:

$$K_1 = \exp\left(-\frac{\ln 2 \cdot \Delta t}{T_{1/2}}\right), \quad (2.7)$$

где  $\Delta t$  – время, которое прошло с момента окончания отбора пробы и началом регистрации ее активности, с;

$T_{1/2}$  – период полураспада  ${}^7\text{Be}$ ,  $T_{1/2} = 4,6 \cdot 10^6$  с;

Распад  ${}^7\text{Be}$  в пробе в процессе регистрации ее активности учитывался по следующей формуле:

$$K_2 = \frac{T_{1/2}}{\ln 2 \cdot t} \left( 1 - \exp \left( -\frac{\ln 2 \cdot t}{T_{1/2}} \right) \right). \quad (2.8)$$

Время регистрации активности  ${}^7\text{Be}$  в единичной пробе определялось ее величиной и изменялось в интервале от 10 до 36 часов. Погрешность определения содержания  ${}^7\text{Be}$  в пробе морской воды рассчитывалась с учетом статистических ошибок измерения активности пробы и фона, калибровки эффективности регистрации гамма-квантов и измерения объема пробы морской воды.

$$\varepsilon({}^7\text{Be}) = \sqrt{\varepsilon(A)^2 + \varepsilon(A_b)^2 + \varepsilon(\varepsilon(E))^2 + \varepsilon(V)^2}, \quad (2.9)$$

где  $\varepsilon({}^7\text{Be})$  – погрешность определения концентрации  ${}^7\text{Be}$  в пробе воды;

$\varepsilon(A)$  – погрешность определения величины активности  ${}^7\text{Be}$  в пробе;

$\varepsilon(A_b)$  – погрешность определения величины фонового сигнала в области энергий  ${}^7\text{Be}$ ;

$\varepsilon(\varepsilon(E))$  – погрешность определения величины эффективности регистрации гамма-квантов  ${}^7\text{Be}$ ;

$\varepsilon(V)$  – погрешность определения величины объема пробы.

Относительная величина погрешности определения концентрации  ${}^7\text{Be}$  в морской воде варьировалась от 15 до 90%, и составляла в среднем 25%.

### 2.1.2 Методика определения концентрации ${}^7\text{Be}$ в приземной атмосфере

Методики отбора проб атмосферных аэрозолей, в целом, подобны [Schulze et al., 2000; Medici, 2001; Papastefanou, 2008; РД 52.18.826 – 2015]. Различия обусловлены поставленными задачами и связаны, главным образом, со скоростями и объемами прокачиваемого воздуха, используемым фильтром и временем экспозиции фильтра (Рисунок 2.2).

Отдельно можно выделить работы, связанные с разделением аэрозолей по размерам частиц [Papastefanou, 2008]. Такой подход призван имитировать дыхательную систему человека и позволяет оценить возможные пути поступления радионуклидов в организм человека.

В данной работе, отбор проб атмосферного аэрозоля проводился с крыши здания Морского гидрофизического института на высоте 3 м относительно уровня подстилающей поверхности, с помощью высокопроизводительной (объемная скорость прокачки воздуха  $525 \text{ м}^3 \text{ час}^{-1}$ ) воздухофильтрационной установки, с использованием фильтровальной ткани марки ФПП-15-1,5 (эффективность этого волокна составляет 99% для частиц размером от 0,2 мкм). Измерения скорости прокачки воздуха выполнялись три раза за период отбора индивидуальной пробы, что позволяло оценить объем прокаченного воздуха [РД 52.18.826 – 2015]. Время экспозиции варьировалось от 1 до 4 дней и определялось рабочим расписанием. По завершению отбора проб атмосферных аэрозолей, используя гидравлический пресс, фильтру придавалась эталонная геометрия: цилиндр диаметром 52 мм и высотой 5 мм. Измерения содержания  $^7\text{Be}$  проводились спустя 7–10 дней, в течение которых распадались относительно короткоживущие гамма-активные радионуклиды. Регистрация активности пробы проводилась на гамма спектрометре со сцинтилляционным детектором (см. пункт 2.1.1) в течение 4–24 часов, в зависимости от ее активности. Полная погрешность определения концентрации  $^7\text{Be}$  на атмосферных аэрозолях рассчитывалась аналогичным для проб морской воды образом. Относительная величина погрешности определения концентрации  $^7\text{Be}$  на атмосферных аэрозолях варьировалась от 7 до 25%, и составляла в среднем 10%.

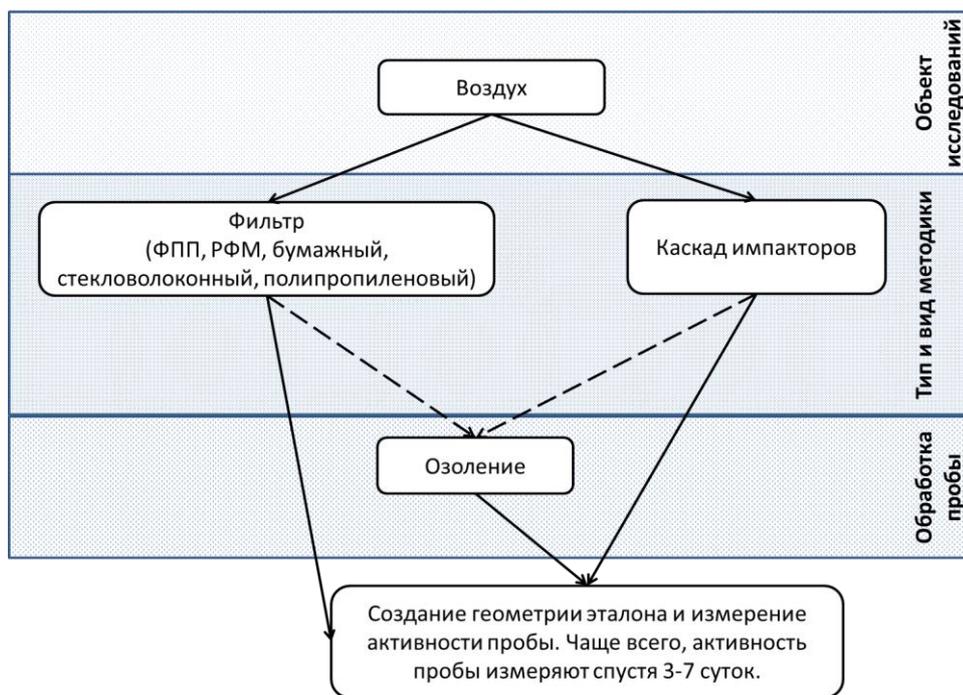


Рисунок 2.2 – Схематическое представление методик определения содержания  ${}^7\text{Be}$  в атмосферном воздухе. Пунктирной стрелкой показаны альтернативные пути

Расчет концентрации  ${}^7\text{Be}$  в приземной атмосфере проводился по следующей формуле [IAEA, 2004]:

$$C_a = \frac{A}{V} = \frac{N - N_b \frac{t}{t_b}}{V \cdot \varepsilon(E) \cdot \gamma \cdot t \cdot K_1 \cdot K_2 \cdot K_3}, \quad (2.10)$$

где  $C_a$  – концентрация  ${}^7\text{Be}$  в приземной атмосфере, Бк м<sup>-3</sup>;

$A$  – активность  ${}^7\text{Be}$  в пробе, Бк;

$V$  – объем прокаченного воздуха, м<sup>3</sup>;

$K_3$  – эффективность фильтра.

Расчет  $\varepsilon(E)$ ,  $K_1$  и  $K_2$  проводился аналогично по формулам (2.6), (2.7) и (2.8) соответственно.

Оценки величины коэффициента  $K_3$  были получены путем измерения распределения активности  ${}^7\text{Be}$  между двумя фильтрами, сложенных вместе при

отборе проб атмосферных аэрозолей. Результаты показали, что эффективность фильтра составляет 93%, соответственно, коэффициент  $K_3$  принимался равным 0,93.

### 2.1.3 Методика определения потока $^7\text{Be}$ на подстилающую поверхность

Методики отбора и обработки проб атмосферных выпадений схематически представлены на Рисунке 2.3. [Махонько, 1982; Benitez-Nelson, Buessler, 1998; Jungck et al., 2009; Bourcier et al., 2012; Pham et al., 2013; РД 52.18.826 – 2015]

В данной работе проводился отбор двух типов проб: проб суммарных атмосферных выпадений, а также проб твердых и жидких осадков. Используемые методики удовлетворяли требованиям, предъявляемые к сети Росгидромет [Махонько, 1982; РД 52.18.826 – 2015].

Пробы атмосферных осадков отбирались в открытую эмалированную кювету площадью  $0,67 \text{ м}^2$ , расположенную на подставке высотой 1,5 м относительно уровня подстилающей поверхности и соединенную с пластиковой емкостью объемом 50 л. Сама кювета с подставкой и емкостью располагались на крыше здания ФГБУН МГИ [Кременчуцкий и др., 2015; Dovhyi et al., 2017]. Накануне осадков, но не реже одного раза в 3 суток, кювета промывалась 2%-м раствором  $\text{H}_2\text{SO}_4$ . По завершению отбора пробы атмосферных осадков, в пластиковую емкость добавлялась кислота (25%-й раствор  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) для установления pH в интервале от 1 до 2. С целью минимизации возможных потерь  $^7\text{Be}$  в результате его адсорбции на стенках пробоотборника, проба из пластиковой емкости переливалась по прошествии 6–7 часов после добавления кислоты. Далее проба транспортировалась в лабораторию, где производилось измерение ее объема. Концентрирование  $^7\text{Be}$  проводилось с использованием ионообменной смолы по методике, приведенной ниже.

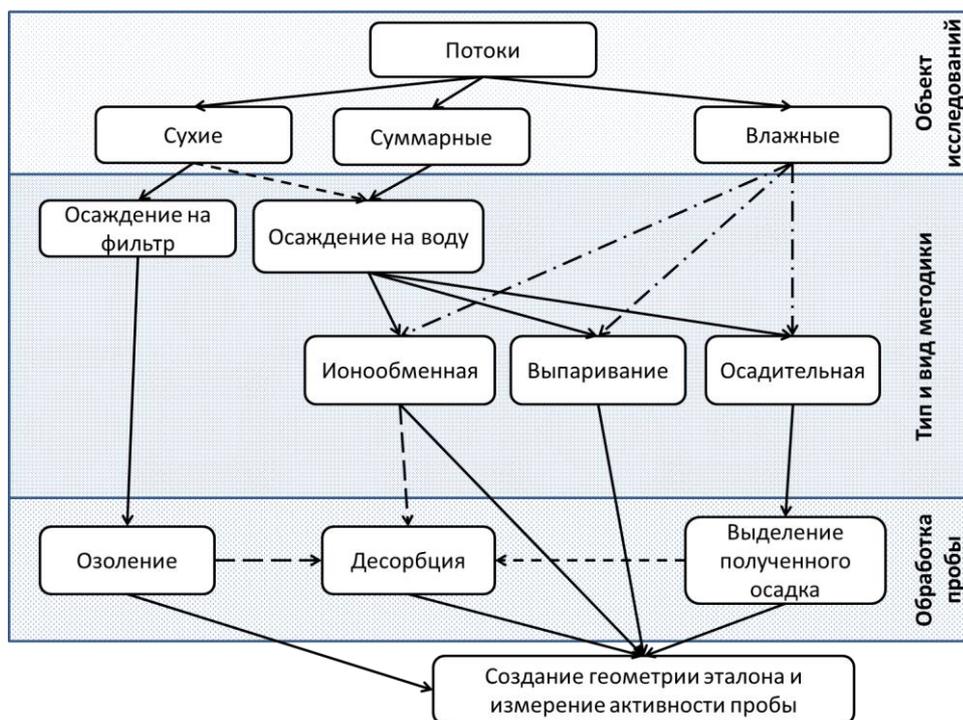


Рисунок 2.3 – Упрощенное схематическое представление основных этапов методик определения потока  ${}^7\text{Be}$  на подстилающую поверхность

Пробы суммарных атмосферных выпадений отбирались с использованием эмалированной кюветы площадью  $0,67 \text{ м}^2$ . Пробоотборник располагался совместно с пробоотборником для влажных атмосферных выпадений. В кювете постоянно поддерживался уровень воды не ниже  $1,5 \text{ см}$ , а ее  $\text{pH}$  не превышал  $3$ . Время экспозиции составляло  $10\text{--}15$  суток. По завершению экспозиции, проба переливалась в пластиковые емкости и транспортировалась в лабораторию. Затем в кювету заливалась новая порция воды с  $\text{pH}$  в пределах  $2\text{--}3$ .

Концентрирование  ${}^7\text{Be}$  в пробах воды выполнялось с использованием двух колонок, содержащих сильнокислотную ионообменную смолу (Dowex 88) [Jungck et al., 2009]. Выбор смолы обусловлен ее универсальностью и способностью извлекать катионы, в том числе из кислых сред [Jungck et al., 2009]. Измерения активности  ${}^7\text{Be}$  в смолах проводились в чашках Петри (диаметром  $55 \text{ мм}$  и высотой  $14 \text{ мм}$ ) на том же гамма-спектрометре со сцинтилляционным детектором, что и ранее.

Время измерения активности единичной пробы варьировалось от 8 до 15 часов и определялось активностью образца. Полная погрешность измерений определялась аналогичным методом, что и для проб морской воды. Относительная величина погрешности определения потока  ${}^7\text{Be}$  на подстилающую поверхность варьировалась от 10 до 30%, и составляла в среднем 15%.

Поток радионуклида рассчитывался по формуле [IAEA, 2004]:

$$P = \frac{A}{S \cdot T} = \frac{N - N_b \frac{t}{t_b}}{S \cdot T \cdot \varepsilon(E) \cdot \gamma \cdot t \cdot K_1 \cdot K_2}, \quad (2.11)$$

где  $P$  – поток  ${}^7\text{Be}$  на подстилающую поверхность, Бк м<sup>-2</sup> сутки<sup>-1</sup>;

$A$  – активность  ${}^7\text{Be}$  в пробе осадков, Бк;

$S$  – площадь кюветы, м<sup>2</sup>;

$T$  – время экспозиции кюветы (в случае проб суммарных атмосферных выпадений) или время выпадения осадков, сутки.

Расчет  $\varepsilon(E)$ ,  $K_1$  и  $K_2$  проводился аналогично по формулам (2.6), (2.7) и (2.8) соответственно.

## 2.2 Материалы наблюдений

### 2.2.1 Вариация концентрации ${}^7\text{Be}$ в Черном море

В период с мая 2012 г. по июль 2017 г. были проведены измерения содержания  ${}^7\text{Be}$  в прибрежной, шельфовой и глубоководных районах Черного моря: одна серия измерений на взморье г. Севастополя, две серии со стационарной океанографической платформы в п. Кацивели, расположенной на расстоянии в 600 м от берега, и 3 рейса (87й, 89й и 95й) на НИС «Профессор Водяницкий» в открытых районах моря. В общей сложности было отобрано и обработано 80 проб морской воды: 6 на взморье, 20 в прибрежной зоне с океанографической платформы в пос. Кацивели и 54 в ходе экспедиционных исследований на НИС



## 2.2.2 Вариация концентрации $^7\text{Be}$ в приземной атмосфере севастопольского региона

В период с июля 2011 г. по декабрь 2016 г. было отобрано и обработано 960 суточных проб атмосферных аэрозолей.

За период наблюдений концентрация  $^7\text{Be}$  в приземной атмосфере изменялась от 0,2 до 10,2 мБк м<sup>-3</sup>, средняя величина составила  $(3,5 \pm 1,7)$  мБк м<sup>-3</sup> (Рисунок 2.5.) [Кременчуцкий, Батраков, 2017а].

В Таблице 2.1 приведены основные статистические характеристики исходной совокупности измерений концентрации  $^7\text{Be}$ : количество обработанных аэрозольных проб ( $N$ ), значения среднего арифметического ( $AM$ ) и геометрического ( $GM$ ), медиана ( $ME$ ), экстремальные (максимальное ( $MAX$ ) и минимальное ( $MIN$ )) значения концентрации радионуклида, дисперсия ( $SD$ ), 10-й ( $PC10$ ) и 90-й ( $PC90$ ) процентиль, коэффициенты асимметрии ( $SK$ ) и эксцесса ( $KU$ ).

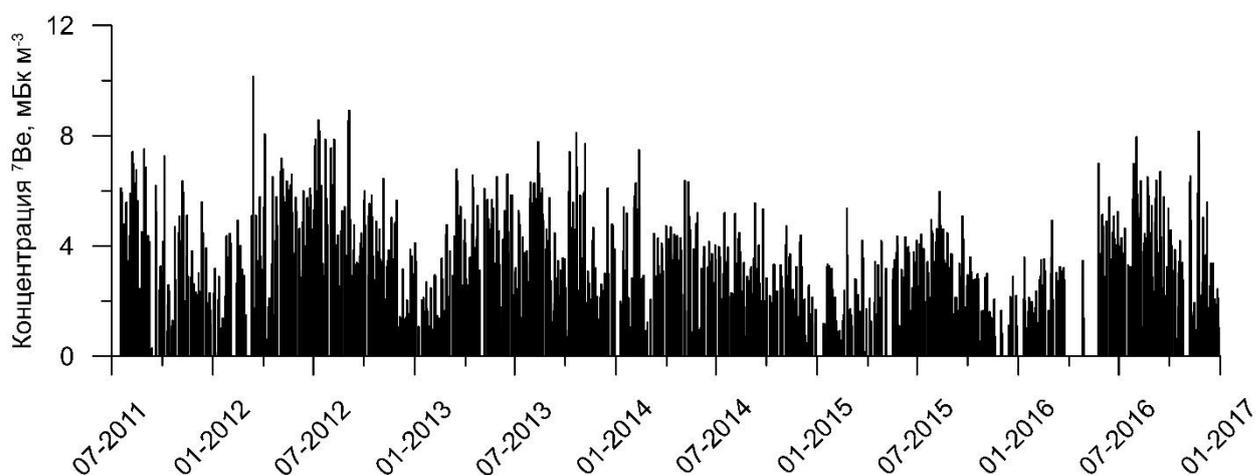


Рисунок 2.5 – Измеренные значения концентрации  $^7\text{Be}$  в пробах аэрозоля, отобранных в Севастополе

Как видно из Рисунка 2.6 и Таблицы 2.1, распределение величины концентрации  $^7\text{Be}$  отличается от нормального.

Таблица 2.1 – Статистические параметры исходной совокупности измерений концентрации  ${}^7\text{Be}$  (мБк м $^{-3}$ ) в г. Севастополе

	<i>N</i>	<i>AM</i>	<i>GM</i>	<i>ME</i>	<i>MIN</i>	<i>MAX</i>	<i>SD</i>	<i>PC10</i>	<i>PC90</i>	<i>SK</i>	<i>KU</i>
${}^7\text{Be}$ (мБк м $^{-3}$ )	960	3,5	3,0	4,9	0,2	10,2	1,7	1,3	5,9	0,5	-0,1

Значения *AM* и *GM* близки, но не равны между собой. Положительный коэффициент асимметрии (*SK*) указывает на отклонение распределения, представленного на Рисунке 2.6, в сторону больших значений (что проявляется как более длинный «хвост» в области больших значений концентрации  ${}^7\text{Be}$ ). Отрицательное значение коэффициента эксцесса ( $\mu_e$ ) говорит о том, что распределение является более пологим, чем нормальное. То, что распределение отлично от нормального свидетельствует о наличии процессов, влияющих на временную изменчивость исследуемого параметра (в данном случае, концентрации  ${}^7\text{Be}$  в приземной атмосфере). Коэффициент вариации ( $w = 100 * SD / AM = 50\%$ ) указывает на значительную изменчивость концентрации  ${}^7\text{Be}$  за период наблюдений [Батраков и др., 2012; Кременчуцкий, Батраков, 2017].

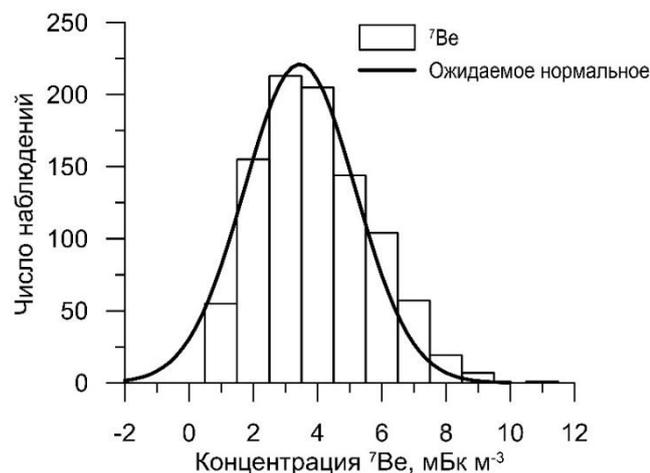


Рисунок 2.6 – Гистограмма частот повторяемости значений концентрации  ${}^7\text{Be}$  в приземной атмосфере

### 2.2.3 Вариация потоков влажных и суммарных атмосферных выпадений в севастопольском регионе

В период с марта 2011 г. по декабрь 2016 г. было отобрано и обработано 231 проба дождевых осадков.

Величина потока  $^7\text{Be}$  с дождевыми осадками изменялась в интервале от 1,0 до  $72,4 \text{ Бк м}^{-2} \text{ сутки}^{-1}$ , средняя величина составила  $(11,4 \pm 9,7) \text{ Бк м}^{-2} \text{ сутки}^{-1}$ . Величина концентрации  $^7\text{Be}$  в осадках изменялась в интервале 0,3 до  $16 \text{ Бк л}^{-1}$ , средняя величина –  $(3,1 \pm 2,6) \text{ Бк л}^{-1}$  [Кременчуцкий, 2012а; Кременчуцкий, Батраков, 2016]. На Рисунке 2.7 представлены полученные временные ряды наблюдений для величин влажного потока  $^7\text{Be}$  и его концентрации в них в севастопольском регионе за период исследований.

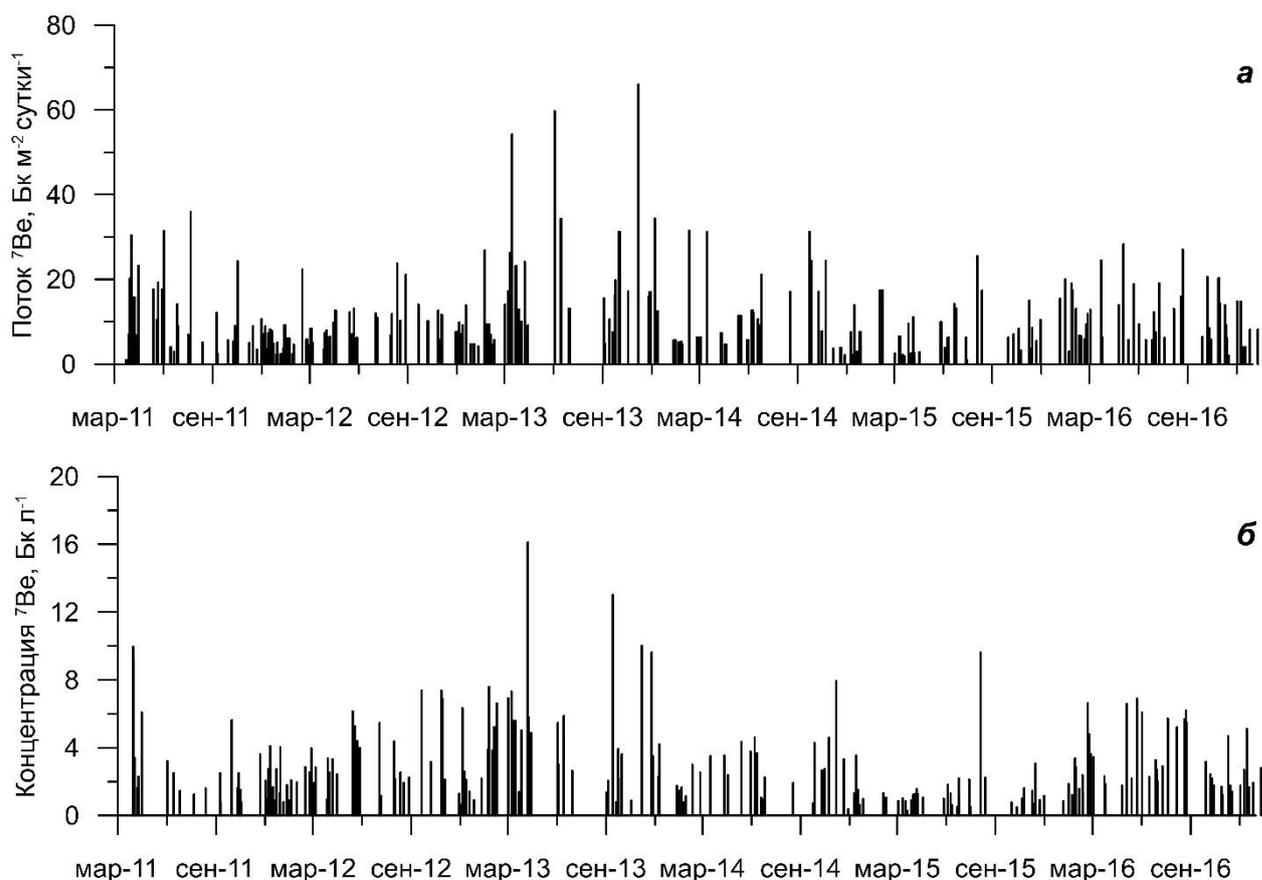


Рисунок 2.7 – Временная изменчивость потока  $^7\text{Be}$  с влажными атмосферными выпадениями (а) и концентрации  $^7\text{Be}$  в них (б) в севастопольском регионе

В Таблице 2.2 приведены основные статистические характеристики исходной совокупности измерений потока и концентрации  ${}^7\text{Be}$  с влажными атмосферными выпадениями. Обозначения величин в Таблице 2.2 аналогичны Таблице 2.1.

Таблица 2.2 – Статистические параметры исходной совокупности измерений потока  ${}^7\text{Be}$  ( $\text{Бк м}^{-2} \text{сутки}^{-1}$ ) с влажными атмосферными выпадениями в г. Севастополе

	<i>N</i>	<i>AM</i>	<i>GM</i>	<i>ME</i>	<i>MIN</i>	<i>MAX</i>	<i>SD</i>	<i>PC10</i>	<i>PC90</i>	<i>SK</i>	<i>KU</i>
${}^7\text{Be}$ ( $\text{Бк м}^{-2} \text{сутки}^{-1}$ )	231	11,4	8,7	8,3	1,0	72,4	9,7	3,5	23,2	2,6	10,0
${}^7\text{Be}$ ( $\text{Бк л}^{-1}$ )	214	3,1	2,3	2,3	0,3	16,0	2,6	0,9	6,8	1,8	4,1

Как видно из Рисунка 2.8 и Таблицы 2.2, распределение величин потока и концентрации  ${}^7\text{Be}$  отличаются от нормального. Значения *AM* и *GM*, не равны между собой. Положительный коэффициент асимметрии (*SK*) указывает на отклонение распределений, представленных на Рисунке 2.8, в сторону больших значений (что проявляется как более длинный «хвост» в области больших значений потока изотопа). Положительное значение коэффициента эксцесса (*KU*) говорит о том, что распределение является более остроконечным, чем нормальное. Коэффициенты вариации потока  ${}^7\text{Be}$  ( $w = 85\%$ ) и концентрации  ${}^7\text{Be}$  в осадках ( $w = 85\%$ ) указывают на значительную изменчивость исследуемых параметров за период наблюдений [Батраков и др., 2012; Кременчуцкий, 2012а].

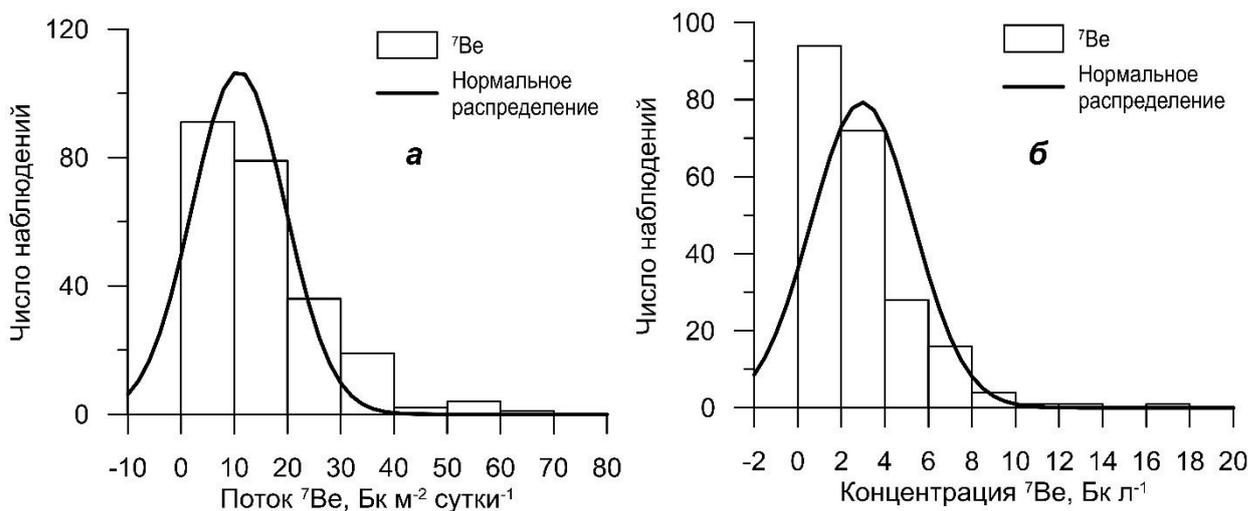


Рисунок 2.8 – Гистограмма частот повторяемости значений потока (а) и концентрации (б)  $^7\text{Be}$  с дождевыми осадками

В период с марта 2011 по декабрь 2013 было отобрано и обработано 64 пробы суммарных атмосферных выпадений. Величина суммарного потока  $^7\text{Be}$  из атмосферы за период наблюдений изменялась в широком интервале от 0,3 до 11,3 Бк м<sup>-2</sup> сутки<sup>-1</sup> (Рисунок 2.9, Таблица 2.3), средняя составила  $(2,5 \pm 2,1)$  Бк м<sup>-2</sup> сутки<sup>-1</sup>. Суточные величины были получены путем нормирования величин суммарного потока на соответствующее время экспозиции пробоотборника. Обозначения величин в Таблице 2.3 аналогичны Таблице 2.1. Распределение суточных величин суммарного потока также отлично от нормального (Таблица 2.3). Коэффициент вариации потока равен 84%.

Таблица 2.3 – Статистические параметры исходной совокупности измерений потока  $^7\text{Be}$  (Бк м<sup>-2</sup> сутки<sup>-1</sup>) с суммарными атмосферными выпадениями в г. Севастополе

	<i>N</i>	<i>AM</i>	<i>GM</i>	<i>ME</i>	<i>MIN</i>	<i>MAX</i>	<i>SD</i>	<i>PC10</i>	<i>PC90</i>	<i>SK</i>	<i>KU</i>
$^7\text{Be}$ (Бк м <sup>-2</sup> сутки <sup>-1</sup> )	64	2,5	1,8	1,8	0,3	11,3	2,1	0,4	5,6	1,6	2,8

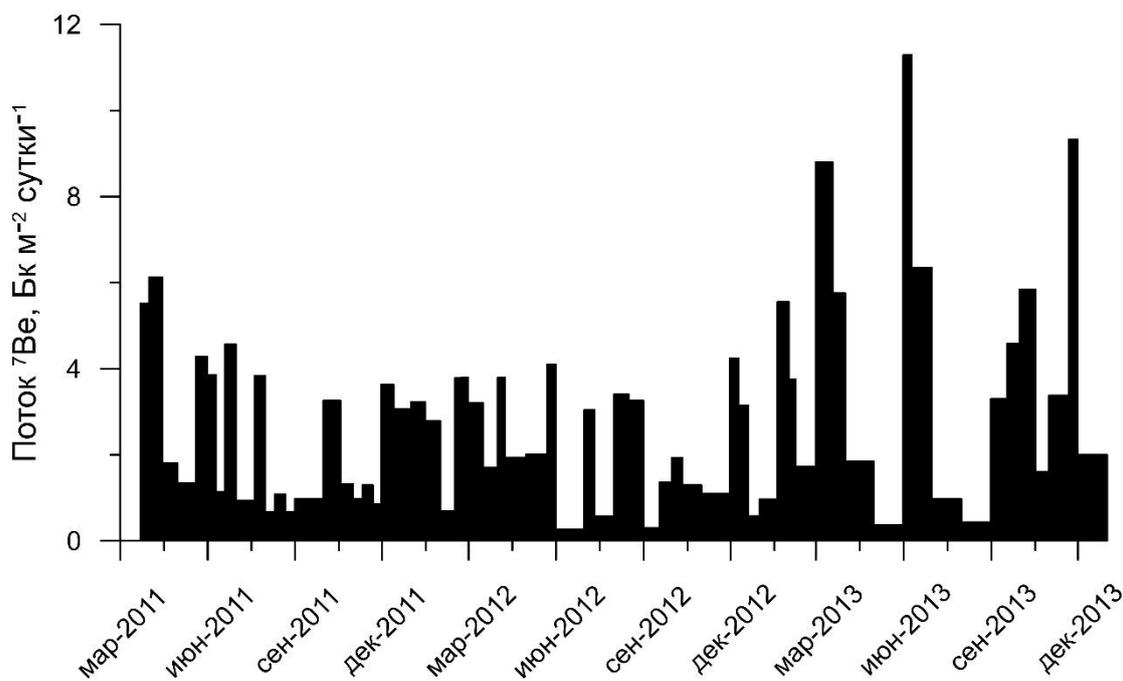


Рисунок 2.9 – Временная изменчивость суммарного потока  $^7\text{Be}$

### 2.3 Описание модели переноса $^7\text{Be}$ и постановка численного эксперимента

В данной работе автор использовал региональную трехмерную нелинейную термогидродинамическую модель циркуляции Черного моря [Демышев, Коротаев, 1992, 1996; Демышев, 2011, 2012], дополненную блоком распространения пассивной примеси [Демышев и др., 2001, 2003; Чудиновских, Дымова, 2010]. Эта модель представляет собой современный инструмент, который характеризуется высокой имитационной способностью, подтвержденной, в частности, сопоставлением с данными автономных буев-профилемеров ARGO [Багаев и др., 2011; Дорофеев, Сухих, 2016; Сухих, Дорофеев, 2018], а также с результатами дистанционного зондирования и гидрологических съемок [Дорофеев, Сухих, 2016; Сухих, Дорофеев, 2018]. Термогидродинамический блок модели использовался в Морском гидрофизическом институте в целях оперативного прогноза состояния Черного моря [Демышев и др., 2008]. Также, эта модель применялась в исследованиях эволюции поля концентрации  $^{137}\text{Cs}$  в Черном море после

прохождения чернобыльского облака [Демышев и др., 2001; Чудиновских, Дымова, 2010] и для оценки последствий захоронения токсичных веществ в глубоководной зоне моря [Демышев и др., 2003]. Стоит отметить, что те варианты модели не учитывали процесс адсорбции примеси на взвеси. Для целей диссертационной работы модель была доработана при участии автора.

Описание модели. В математической модели используются полные уравнения термогидродинамики морской среды [Демышев, Коротаев, 1992; Демышев, 2012]. Уравнения записаны в приближении Буссинеска, гидростатики и несжимаемости. Уровень моря рассчитывается в приближении линеаризованного кинематического условия. Плотность зависит нелинейно от температуры и солёности [Мамаев, 1963]. Горизонтальная вязкость в уравнениях движения и горизонтальная диффузия в уравнениях переноса тепла и соли рассчитываются с использованием бигармонического оператора с коэффициентом  $10^{17} \text{ см}^4 \text{ с}^{-1}$ . Вертикальный обмен параметризуется с использованием теории турбулентного замыкания Мелора-Ямады [Mellor, Yamada, 1982; Демышев, 2011].

В качестве граничного условия на морской поверхности используются поля касательного напряжения-трения ветра, потоков тепла, осадков и испарений с разрешением  $0,1^\circ$ , полученные по данным атмосферного реанализа SKIRON [Архив SKIRON]. В модели учитывается речной сток Дуная, Днепра, Днестра, Риони, Кизилирмака, Йешилирмака и Сакарьи, а также водообмен через Босфорский и Керченский проливы. Величины речного стока и водообмена через проливы соответствуют среднемесячным климатическим данным [Симонов, Альтман, 1991]. Конфигурация морского дна была получена из базы данных МГИ [Халиулин и др., 2016].

Численные эксперименты проводятся на регулярной сетке размером  $4,8 \times 4,8$  км. По вертикали используется 27  $z$ -горизонтов с глубинами 2,5, 5, 10, 15, 20, 25, 30, 40, 50, 62,5, 75, 87,5, 100, 112,5, 150, 200, далее через каждые 100 м до 500 м, затем через 200 м до 1700 и 2100 м. Шаг по времени составляет 300 сек. Оси  $x$  и  $y$  направлены на восток и север соответственно, а ось  $z$  – вертикально вниз.

Уравнение переноса радионуклида в декартовой системе координат  $x, y, z$  может быть записано в следующем виде [Шмельков, Степанец, 2010; Kremenchutskii et al., 2018]:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial(UC)}{\partial x} + \frac{\partial(VC)}{\partial y} + \frac{\partial((W + pw_s)C)}{\partial z} = A^H \nabla^4 C + \frac{\partial}{\partial z} A_V \frac{\partial C}{\partial z} - \lambda C, \quad (2.12)$$

где  $C$  – суммарная концентрация  ${}^7\text{Be}$  в растворенной и адсорбированной на взвеси формами, Бк  $\text{см}^{-3}$ ;

$U, V, W$  – компоненты скорости течений,  $\text{см с}^{-1}$ , рассчитываемые в термогидродинамическом блоке модели;

$A^H$  – коэффициент при бигармоническом операторе,  $A^H = -5 \cdot 10^{17} \text{ см}^4 \text{ с}^{-1}$  [Чудиновских, Дымова, 2010];

$A_V$  – коэффициент диффузии по вертикали, рассчитываемый согласно теории турбулентного замыкания Меллора-Ямады 2.5 [Mellor, Yamada, 1982; Демышев, 2011];

$\lambda$  – постоянная распада,  $\lambda = \ln 2 / \tau$ ,  $\text{с}^{-1}$ ;  $\tau$  период полураспада  ${}^7\text{Be}$ ;

$w_s$  – скорость седиментации взвеси,  $w_s = 0,001 \text{ см с}^{-1}$  [Багаев, 2012];

$p$  – доля  ${}^7\text{Be}$  на взвеси, относительно его общего содержания в воде.

Доля радионуклида на взвеси может быть определена по следующей формуле [Шмельков, Степанец, 2010]:

$$p = K_d \cdot C_p, \quad (2.13)$$

где  $K_d$  – коэффициент распределения радионуклида между растворенной и адсорбированной на взвеси формами;

$C_p$  – концентрация взвеси,  $\text{г см}^{-3}$ .

Величина  $K_d$  рассчитывалась по следующей формуле (см. подраздел 3.1):

$$K_d = 291 \cdot C_p^{-0,46}. \quad (2.14)$$

Для расчета суточных полей концентрации взвеси ( $C_p$ ) в поверхностном слое вод Черного моря использовались данные яркости восходящего излучения морской поверхности (remote-sensing reflectance ( $Rrs$ )) на различных длинах волн, получаемых сканером цвета MODIS [Архив MODIS]. Данные представляют собой продукты уровня обработки Level 3, полученные с помощью стандартных алгоритмов коррекции по измерениям радиометра MODIS в оптическом диапазоне [Gordon, Wang, 1994] и имеют пространственное разрешение равное 4 км, временное разрешение – 1 сутки. По этим данным были выполнены оценки величины обратного рассеяния взвесью ( $b_{bp}$ ). При этом использовался полуаналитический алгоритм (формула (2.15)) с эмпирически установленными связями между величинами  $X$ ,  $Y$  и отражательной способности ( $Rrs$ ) [Carder et al., 1999]:

$$b_{bp}(\lambda) = X \cdot \left[ \frac{551}{\lambda} \right]^Y, \quad (2.15)$$

где  $\lambda$  – длина волны, нм;

$X$  – величина обратного рассеяния частиц;

$Y$  – спектральная форма обратного рассеяния частиц.

$$X = -0.00182 + 2.058 \cdot Rrs(551), \quad (2.16)$$

$$Y = -1.13 + 2.57 \cdot \frac{Rrs(443)}{Rrs(488)}. \quad (2.17)$$

Связь между величинами общего содержания взвеси и обратного рассеяния взвесью (формула (2.18)) была установлена с использованием натуральных данных, полученных автором и сотрудниками Институт океанологии им. П. П. Ширшова

РАН, Южного отделения Института океанологии им. П. П. Ширшова, предоставленные доктором географических наук П. О. Завьяловым, за период с 2010–2014 гг.:

$$C_p = 83 \cdot b_{bp} + 0,05. \quad (2.18)$$

В общей сложности полученный массив насчитывал 190 определений концентрации взвеси традиционным методом [Коновалов и др., 2010]. Для исследуемых районов, за аналогичный период, были получены оценки величин обратного рассеяния частицами взвешенного вещества по методике, приведенной выше. В ряде случаев, информация со спутника была недоступна из-за облачности, поэтому часть данных не использовалась. Данные измерений, соответствующие одной точке на спутниковом снимке, усреднялись [Кременчуцкий и др., 2014]. В результате был получен массив, состоящий из 18 точек (Рисунок 2.10).

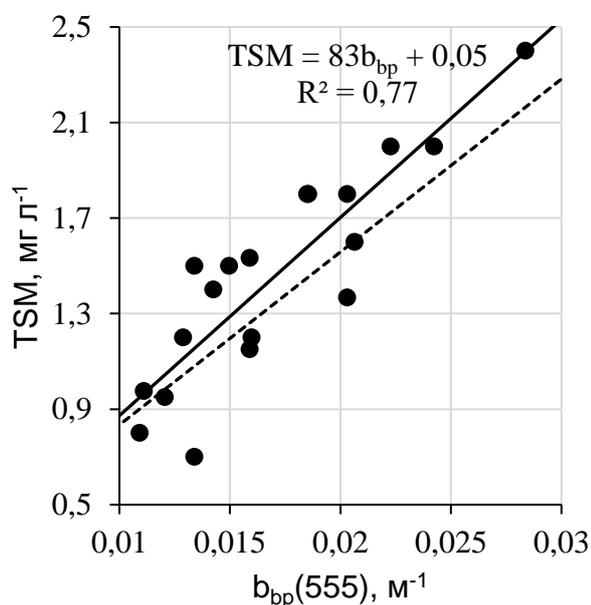


Рисунок 2.10 – Зависимость общей концентрации взвеси (TSM) от величины обратного рассеяния частицами ( $b_{bp}$ ). Точки – данные наблюдений, сплошная линия – аппроксимирующая кривая, пунктирная линия – результаты, представленные в работе [Копелевич и др., 2018]

Граничные условия. В качестве граничного условия на свободной поверхности ( $z = 0$ ) задавался поток  ${}^7\text{Be}$  из атмосферы:

$$-A_v \frac{\partial C}{\partial z} = F, \quad (2.19)$$

где  $F$  – это поток  ${}^7\text{Be}$  с сухими ( $F_{dry}$ ) и влажными ( $F_{wet}$ ) атмосферными выпадениями на морскую поверхность,  $F = F_{wet} + F_{dry}$ .

Оценки потока  ${}^7\text{Be}$  с влажными атмосферными выпадениями были получены по следующей формуле (см. подраздел 3.2):

$$F_{wet} = \left[ 4,75 \cdot \text{Pr}^{-0,83} + 0,2 \cdot \exp\left(\frac{\text{Pr} - 64,9}{129,9}\right) \right] \times$$

$$\times \left\{ \left[ \begin{array}{l} 2 + 3 \cdot \exp\left(-0,5 \left(\frac{\phi - 38,7}{8,4}\right)^2\right) \\ + 1,03 \cdot \sin\left(\pi \frac{\text{year} + 0,273}{0,5}\right) \end{array} \right] \cdot \left[ 1 - 0,2 \sin\left(\pi \frac{\text{year} + 1,13}{5,5}\right) \right] + \right\} \times (2.20)$$

$$\times \left[ 1 - 0,63 \cdot \exp(-0,56 \cdot t) \right] \cdot \text{Pr}$$

В дни с осадками, величина потока  ${}^7\text{Be}$  с сухими атмосферными выпадениями предполагалась равной нулю ( $F_{dry} = 0$ ). В дни без осадков (если  $F_{wet} = 0$ ), поток  ${}^7\text{Be}$  предполагался равным величине потока с сухими атмосферными выпадениями. Величина потока с сухих выпадений предполагалась постоянной и составляла  $0,5 \text{ Бк м}^{-2} \text{ сутки}^{-1}$  ( $F_{dry} = 0,5 \text{ Бк м}^{-2} \text{ сутки}^{-1}$ ) (см. подраздел 3.2).

В качестве граничного условия на дне  $z = H(x, y)$  задавался поток  ${}^7\text{Be}$ , оседающего на взвеси [Котеров, Юрезанская, 2009; Шмельков, Степанец, 2010]:

$$pw_s C - A_v \frac{\partial C}{\partial z} = \beta pw_s C, \quad (2.21)$$

где  $\beta$  – безразмерный коэффициент массоотдачи ко дну, зависящий от его адсорбирующих свойств [Франк-Каменецкий, 1987; Котеров, Юрезанская, 2009]. При проведении численных экспериментов величина коэффициента предполагалась равной 1 [Shiau, Juang, 1988; Котеров, Юрезанская, 2009].

На твердых границах:

$$\partial C / \partial n = 0, \quad \partial(\nabla^2 C) / \partial n = 0, \quad (2.22)$$

где  $n$  – нормаль к границе области.

На жидких границах рек и проливов:

$$C = \nabla^2 C = 0. \quad (2.23)$$

Начальные условия. В начальный момент времени задавались климатические поля температуры, солености, горизонтальных скоростей и уровня моря, представленные в работе [Demyshev et al., 2009]. Концентрация  ${}^7\text{Be}$  во всем бассейне моря предполагалась равной  $0,01 \text{ Бк м}^{-3}$ .

Схема проведения численных экспериментов. При проведении численных экспериментов поля касательного напряжения-трения ветра, потоков тепла, осадков и испарений, используемые в термогидродинамическом блоке модели, а также поля потоков  ${}^7\text{Be}$  на морскую поверхность и концентрации взвеси, используемые в блоке переноса примеси, задавались каждые сутки и линейно интерполировались на каждый шаг по времени на регулярную сетку.

Было выполнено два численных эксперимента: первый, охватывающий период с января 2015 г. по декабрь 2016 г., и второй – с января 2011 г. по декабрь 2012 г.

Первый численный эксперимент был разбит на два этапа. Первый этап (январь–декабрь 2015 г.) позволил согласовать климатические поля гидродинамических параметров и поле концентрации  ${}^7\text{Be}$  с реальным атмосферным форсингом. Необходимо отметить, что 1 год соответствует  $\sim 7$  периодам полураспада  ${}^7\text{Be}$ , таким образом поле радионуклида, сформированное на конец 2015 года, находилось в состоянии динамического равновесия с его потоком из атмосферы и гидродинамическими параметрами. Материалы второго этапа (январь–декабрь 2016 г.) численного эксперимента были использованы для валидации модели (см. подраздел 4.1) и анализа пространственно-временной изменчивости поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в водах Черного моря (см. подраздел 4.2) и факторов ее определяющей (см. подраздел 4.3).

Второй численный эксперимент был также разбит на два этапа: январь–декабрь 2011 г. и январь–декабрь 2012 г. Как и в первом эксперименте, первый этап использовался для согласования климатических полей гидродинамических параметров и поля концентрации радионуклида с реальным атмосферным форсингом. Второй этап позволил провести сопоставление динамик концентраций радионуклида в поверхностном слое вод в районе океанографической платформы в пос. Кацивели, полученных по натурным и модельным данным (см. подраздел 4.1).

Валидация термогидродинамического блока модели. Выполнено сопоставление результатов моделирования полей температуры и солёности, полученных на втором этапе первого численного эксперимента, с соответствующими натурными данными: ARGO [Архив ARGO] и материалы рейсов НИС «Профессор Водяницкий» [Халиулин и др., 2016]. Всего рассмотрено 450 профилей из них: 73 – ARGO № 6901832 (2 января – 27 декабря 2016 г.), 42 – ARGO № 6901833 (2 января – 29 декабря 2016 г.), 125 – 87 рейс НИС «Профессор Водяницкий» (30 июня – 18 июля 2016 г.), 104 – 89 рейс НИС «Профессор Водяницкий» (30 сентября – 19 октября 2016 г.), 107 – 91 рейс НИС «Профессор

Водяницкий» (16 ноября – 3 декабря 2016 г.). Пространственное распределение станций представлено на Рисунке 2.11.

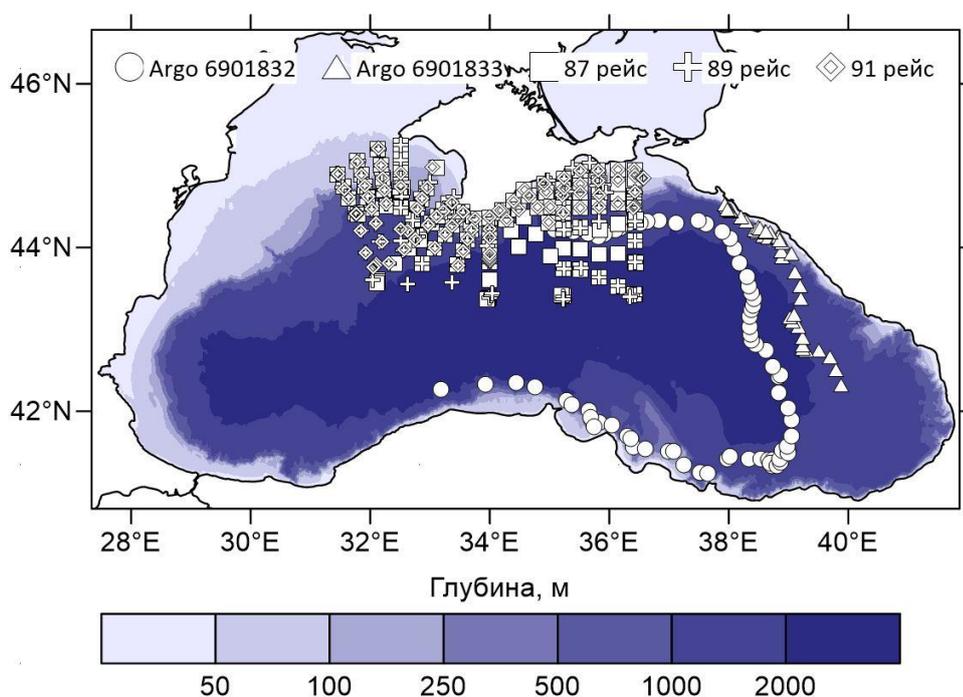


Рисунок 2.11 – Пространственное распределение станций

Для получения количественных характеристик результатов численного эксперимента были рассчитаны средние и среднеквадратические отклонения модельных значений температуры и солёности от измеренных для 6 интервалов глубин (Таблица 2.4). Положительные величины отклонения показывает превышение значений температуры и солёности, полученных из натуральных данных, над модельными, отрицательные – обратное. Такие интервалы глубин были выбраны исходя из гидрологии Черного моря и имеющихся данных наблюдений [Дымова и др., 2018]. Согласно полученным результатам, модули величин отклонения температуры и солёности изменялись от 0,01 до 1,28°C, и от 0,004 до 0,52‰ соответственно, а модули величин среднеквадратических отклонений – от 0,01 до 2,78°C и от 0,006 до 0,54‰ соответственно.

На Рисунке 2.12 представлена временная изменчивость рассчитанных величин отклонений температуры и солёности в слое 0–5 м. Получено, что для

большинства станций (~80%) модули величин отклонений результатов численного эксперимента от данных наблюдений не превышают  $1,3^{\circ}\text{C}$  и  $0,3\text{‰}$  для температуры и солёности соответственно.

Таблица 2.4 – Средние и среднеквадратические (СКО) отклонения рассчитанных по модели величин температуры и солёности от данных измерений

Глубина, м	Температура, $^{\circ}\text{C}$		Солёность, $\text{‰}$	
	Среднее	СКО	Среднее	СКО
0 – 5	-0,09	1,05	0,12	0,27
5 – 30	-1,28	2,78	0,14	0,42
30 – 100	0,25	0,66	0,11	0,39
100 – 300	0,26	0,27	0,52	0,54
300 – 800	0,01	0,01	0,10	0,10
800 – 1500	-0,02	0,02	0,004	0,006

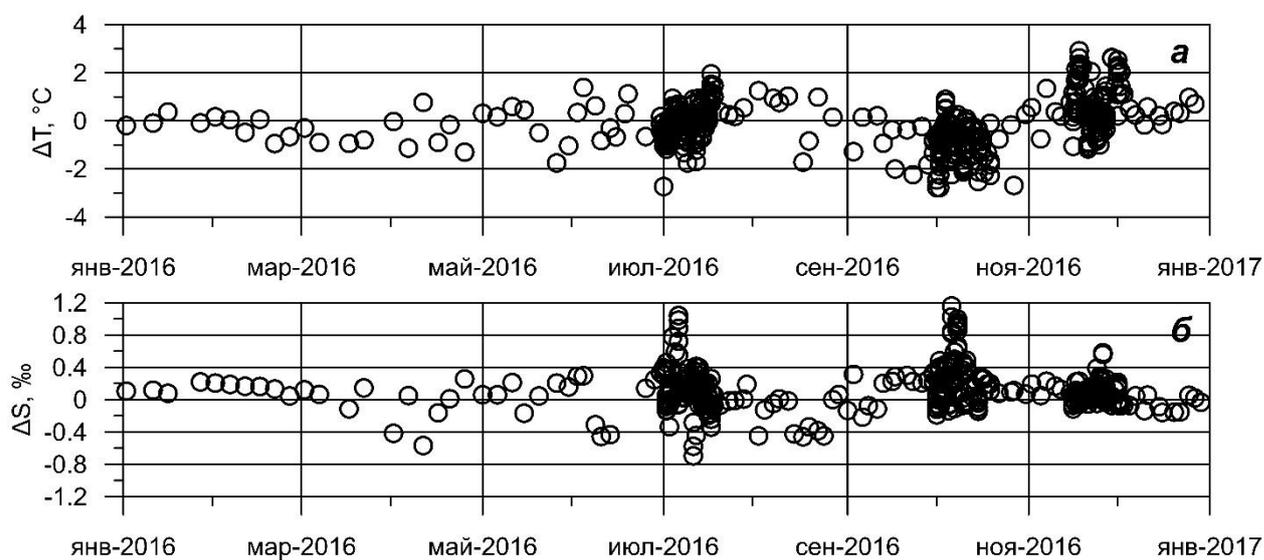


Рисунок 2.12 – Временная изменчивость отклонений температуры (а) и солёности (б) в слое 0–5 м

Проведены расчеты величин погрешности оценок температуры и солёности по материалам численного эксперимента. Эти погрешности были рассчитаны как отношение модулей величин отклонений температуры и солёности в слое 0–5 м к значениям, полученным в численном эксперименте. Установлено, что средняя относительная величина отклонения рассчитанных в численном эксперименте величин температуры и солёности от натуральных данных составляет 5,1% и 1,1% соответственно. Таким образом, средние относительные величины отклонений расчетов температуры и солёности, полученные в численном эксперименте, в 5 и более раз меньше средней относительной величины погрешности определения концентрации  ${}^7\text{Be}$  в морской воде равной 25%. (см. подраздел 2.1).

## Выводы к разделу 2

Используя литературные материалы были выбраны и освоены методики для определения содержания  ${}^7\text{Be}$  в морской воде и на взвеси, на атмосферных аэрозолях, в суммарных и влажных атмосферных выпадениях.

В период с 2011 по 2017 гг. автор принял участи в 6 экспедициях (в том числе 3 рейса на НИС «Профессор Водяницкий») по Черному морю, а также в проведении мониторинга содержания  ${}^7\text{Be}$  в приземной атмосфере и в атмосферных выпадениях. В общей сложности, было отобрано и обработано: 80 проб морской воды, 960 проб атмосферных аэрозолей, 64 пробы суммарных атмосферных выпадений, 231 проба влажных атмосферных выпадений. По результатам наблюдений установлено, что величина концентрации  ${}^7\text{Be}$  растворенного в морской воде изменялась от 0,6 до 8,7 Бк м<sup>-3</sup>, средняя составила  $(5,2 \pm 1,8)$  Бк м<sup>-3</sup>. Величина концентрации  ${}^7\text{Be}$  на взвеси – от 191 до 1688 Бк кг<sup>-1</sup>, средняя величина –  $(980 \pm 423)$  Бк кг<sup>-1</sup>. Концентрация  ${}^7\text{Be}$  в приземной атмосфере – от 0,2 до 10,2 мБк м<sup>-3</sup>, средняя величина –  $(3,5 \pm 1,7)$  мБк м<sup>-3</sup>. Величина суммарного потока  ${}^7\text{Be}$  из атмосферы на подстилающую поверхность – от 0,3 до 11,3 Бк м<sup>-2</sup> сутки<sup>-1</sup>, средняя величина –  $(2,5 \pm 2,1)$  Бк м<sup>-2</sup> сутки<sup>-1</sup>. Величина влажного потока  ${}^7\text{Be}$  – от 1,0 до 72,4 Бк м<sup>-2</sup> сутки<sup>-1</sup>, средняя величина –  $(11,4 \pm 9,7)$  Бк м<sup>-2</sup> сутки<sup>-1</sup>. Величина

концентрации  ${}^7\text{Be}$  в осадках – от 0,3 до 16 Бк л<sup>-1</sup>, средняя величина –  $(3,1 \pm 2,6)$  Бк л<sup>-1</sup>.

Для численного моделирования поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в водах Черного моря использовалась трехмерная термогидродинамическая модель (модель МГИ), дополненная блоком переноса пассивной примеси. В качестве граничных условий задавался поток  ${}^7\text{Be}$  из атмосферы на морскую поверхность и поток радионуклида со взвесью на морское дно. В начальный момент времени концентрация  ${}^7\text{Be}$  во всем бассейне Черного моря задавалась равной 0,01 Бк м<sup>-3</sup>.

Выполнена валидация гидродинамического блока математической модели по материалам контактных измерений температуры и солёности. Установлено, что средние относительные величины отклонений модельных оценок температуры и солёности от натуральных данных в 5 и более раз меньше средней относительной величины погрешности определения концентрации  ${}^7\text{Be}$  в пробах морской воды. Таким образом, этот блок может быть использован при проведении численных экспериментов с целью исследованию эволюции поля концентрации  ${}^7\text{Be}$ .

## РАЗДЕЛ 3 БЕРИЛЛИЙ-7 В ВОДАХ ЧЕРНОГО МОРЯ И В ПРИЗЕМНОЙ АТМОСФЕРЕ ЧЕРНОМОРСКОГО РЕГИОНА ПО НАТУРНЫМ ДАННЫМ

### 3.1 Пространственно-временная изменчивость концентрации $^7\text{Be}$ в водах Черного моря

#### 3.1.1 Вертикальное распределение концентрации $^7\text{Be}$ в море

Профили вертикального распределения концентрации  $^7\text{Be}$  в Черном море были получены на ряде станций, расположение которых приведено на Рисунке 3.1. Сами профили представлены на Рисунке 3.2. В целом, вертикальное распределение концентрации  $^7\text{Be}$  подобно вертикальному распределению температуры. В верхнем квазиоднородном слое колебания величин концентрации находятся в пределах погрешностей их измерений. В слое термоклина концентрация  $^7\text{Be}$  уменьшается примерно в 2–3 раза. В прибрежной зоне моря  $^7\text{Be}$  проникает до дна. В глубоководной зоне  $^7\text{Be}$  обнаруживается до глубин 60–70 м.

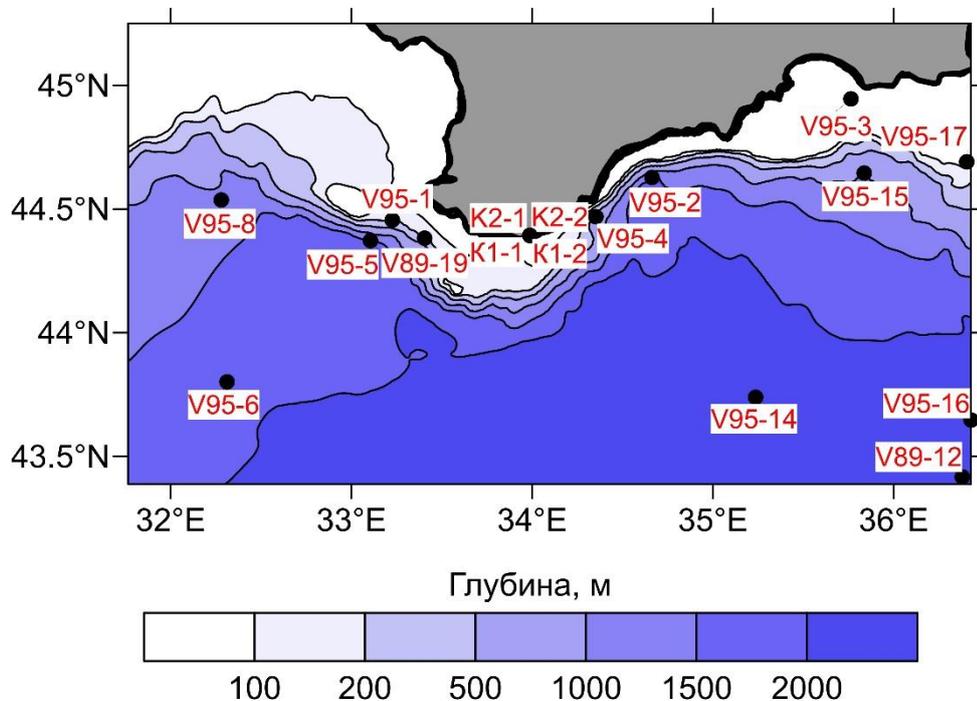


Рисунок 3.1 – Схема расположения станций отбора проб морской воды

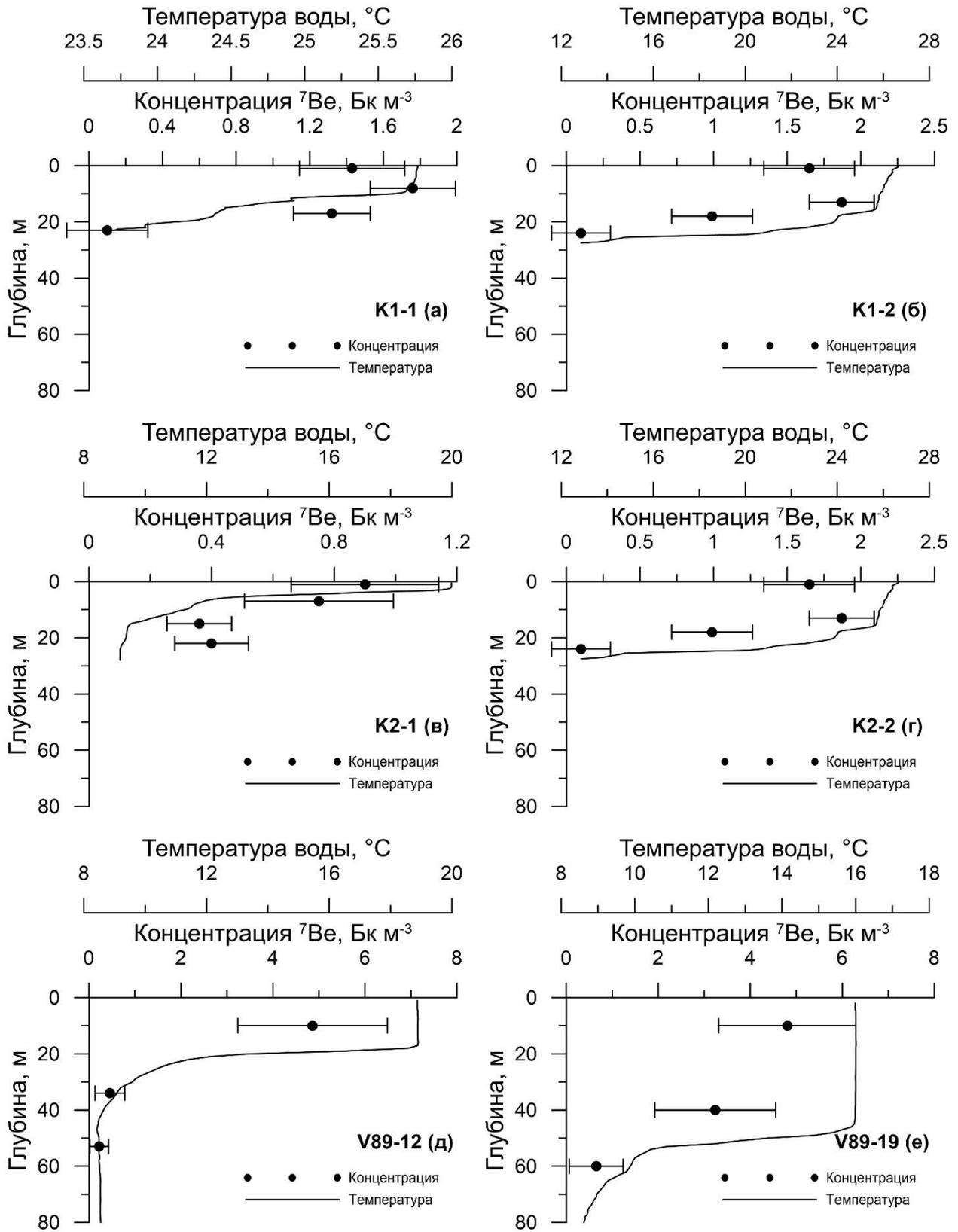


Рисунок 3.2 – Вертикальное распределение концентрации  $^7\text{Be}$  и температуры по натурным данным, с указанием номера станции отбора проб морской воды (см. Рисунок 3.1)

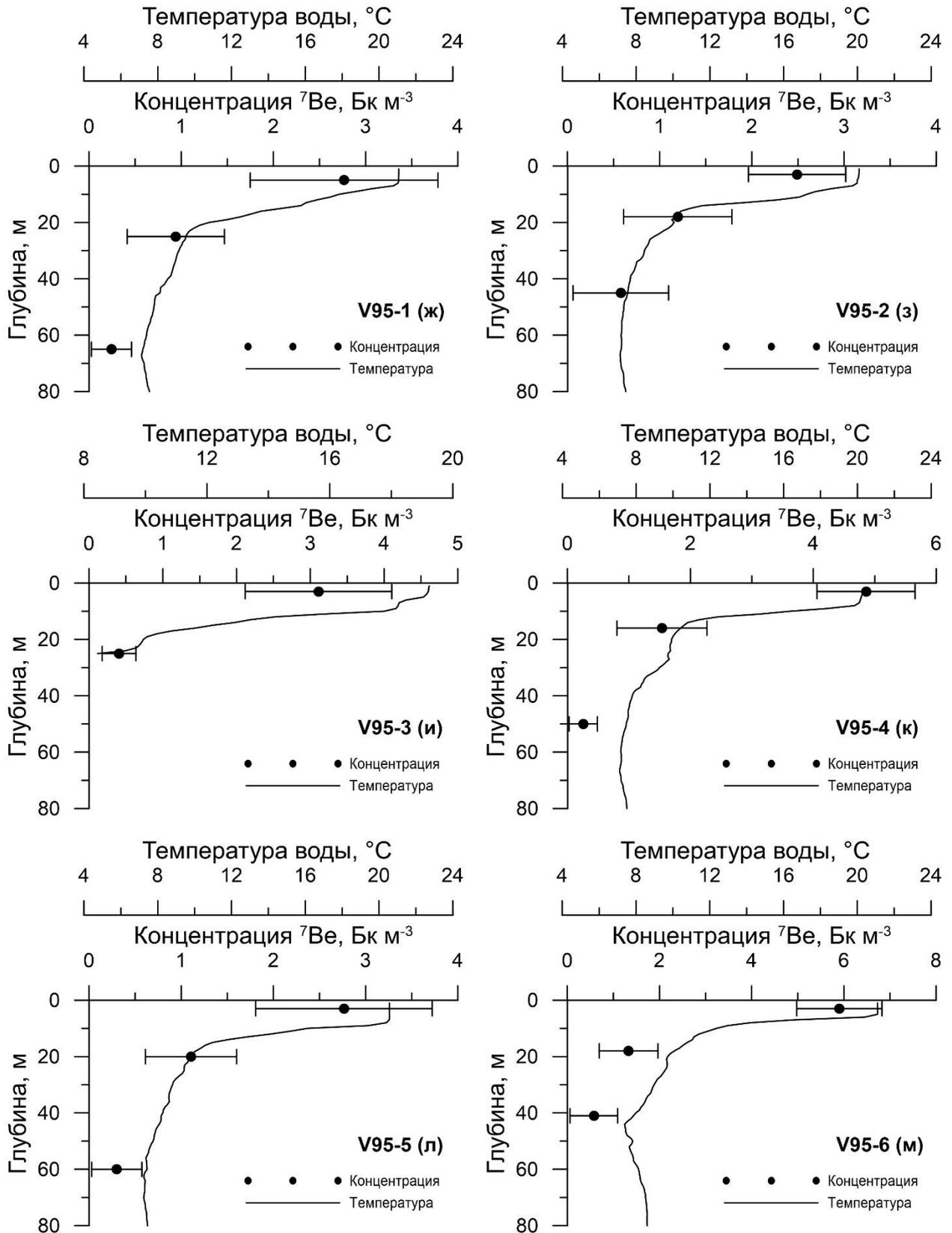


Рисунок 3.2 – Продолжение

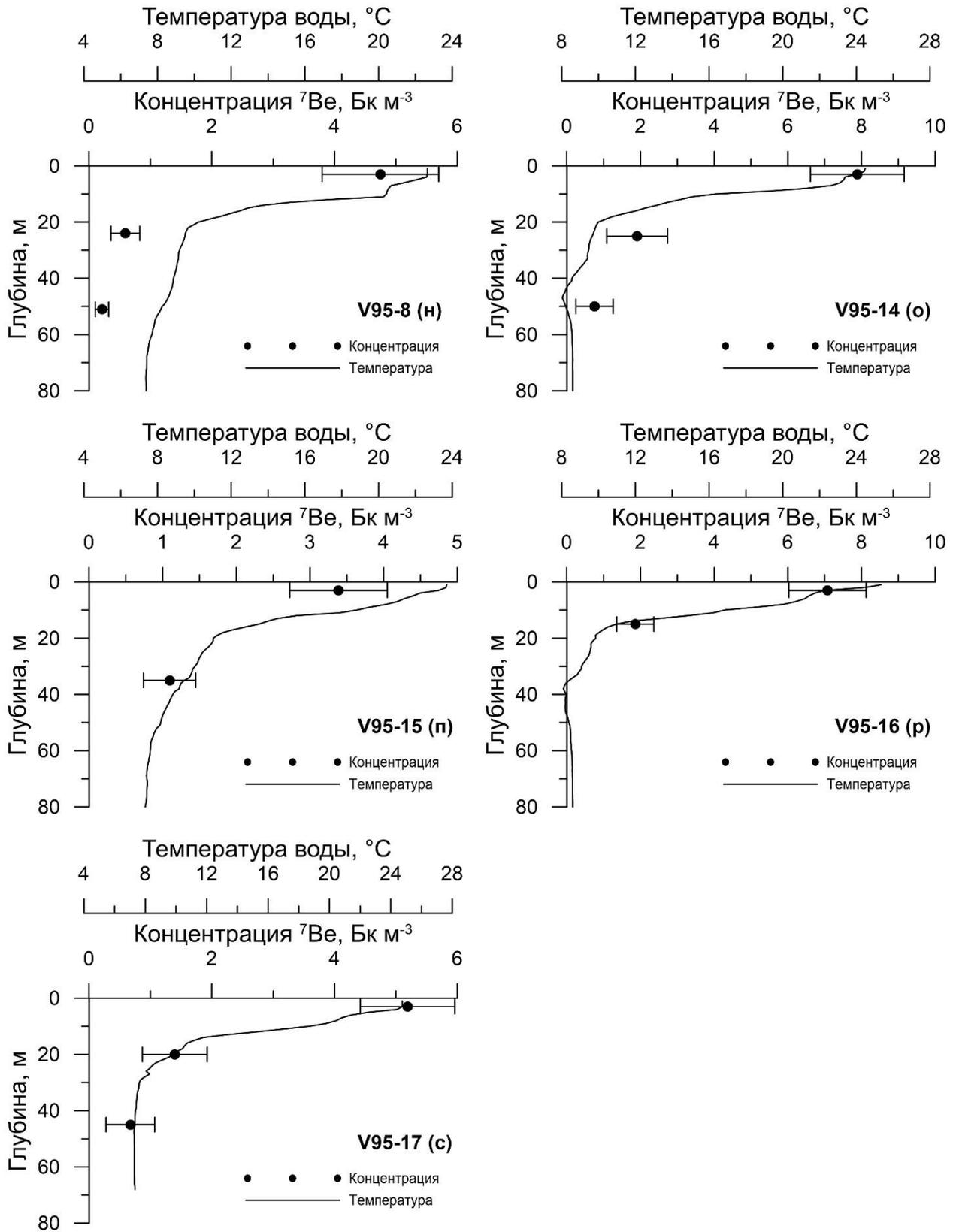


Рисунок 3.2 – Продолжение

### 3.1.2 Поле концентрации $^7\text{Be}$ в верхнем квазиоднородном слое моря

Поле концентрации  $^7\text{Be}$  в верхнем квазиоднородном слое вод Черного моря, полученное по результатам экспедиционных исследований, представлено на Рисунке 3.3. Максимальные величины концентрации отмечаются в глубоководной части моря ( $5,5\text{--}9,5 \text{ Бк м}^{-3}$ ), минимальные – в прибрежной зоне ( $1,2\text{--}3 \text{ Бк м}^{-3}$ ).

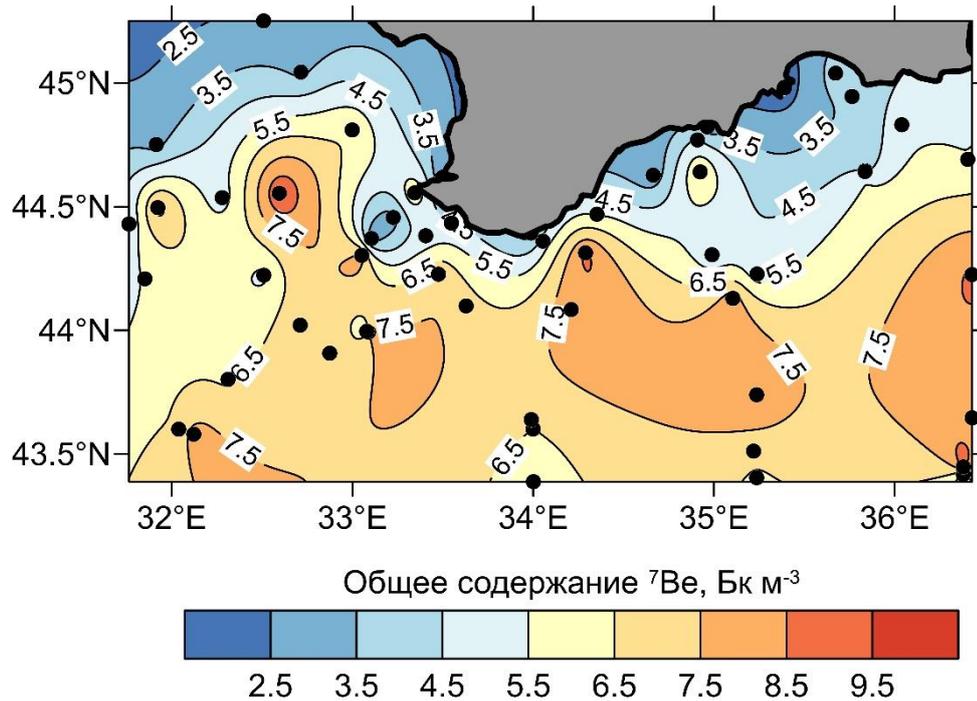


Рисунок 3.3 – Пространственное распределение общего содержания  $^7\text{Be}$  в верхнем квазиоднородном слое вод Черного моря. Точками показано расположение станций отбора проб морской воды

Установлено, что  $^7\text{Be}$  содержится преимущественно в растворенной форме (Рисунок 3.4). В глубоководной части моря на взвеси находится 7–11% от общего содержания  $^7\text{Be}$ . В прибрежном районе, доля  $^7\text{Be}$  на взвеси увеличивается и, в отдельных случаях, может достигать 50%. Объемная концентрация  $^7\text{Be}$  на взвеси изменяется от  $0,3\text{--}0,4 \text{ Бк м}^{-3}$  в прибрежном районе, до  $0,5\text{--}0,8 \text{ Бк м}^{-3}$  – в глубоководном (Рисунок 3.5).

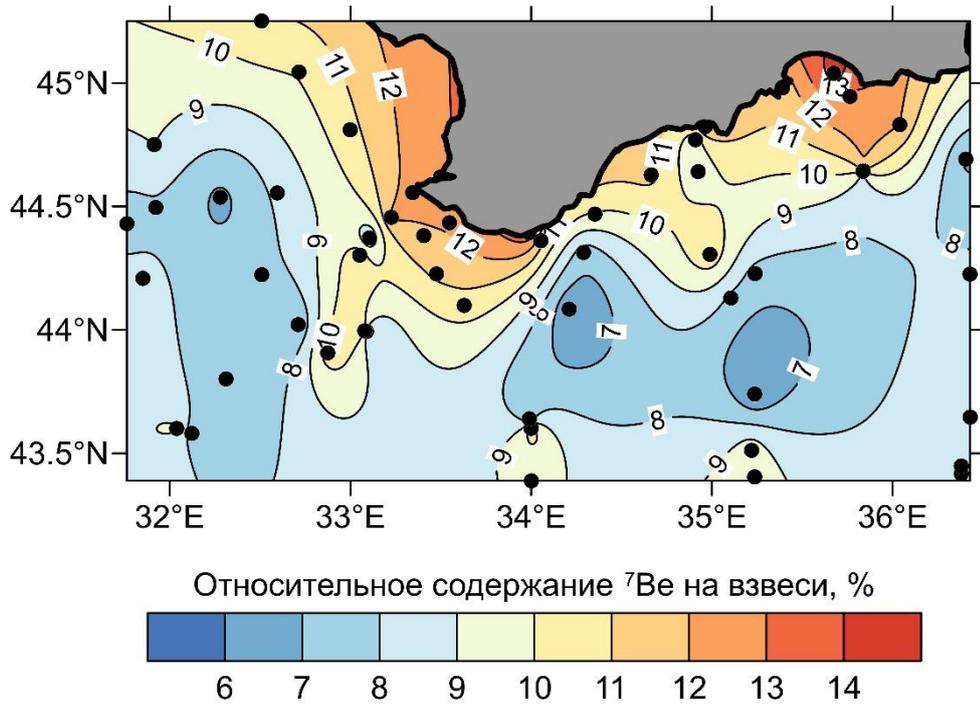


Рисунок 3.4 – Относительные содержания  $^7\text{Be}$  на взвеси в верхнем квазиоднородном слое вод Черного моря. Точками показано расположение станций отбора проб морской воды

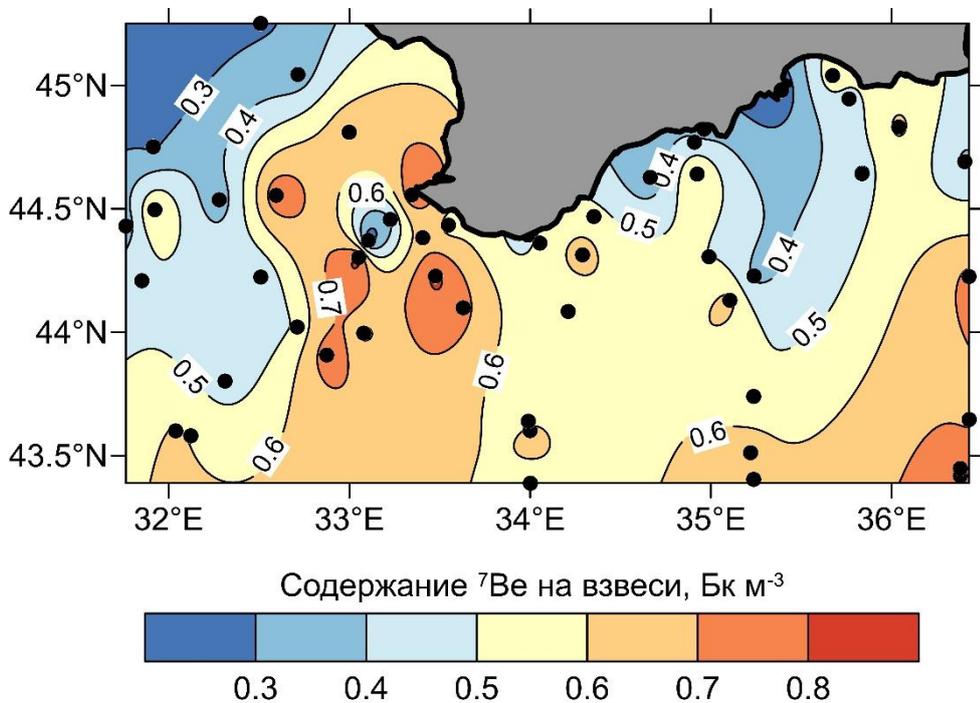


Рисунок 3.5 – Объемная концентрация  $^7\text{Be}$  на взвеси в верхнем квазиоднородном слое вод Черного моря. Точками показано расположение станций отбора проб морской воды

Массовая концентрация  ${}^7\text{Be}$  на взвеси изменяется от 200–600 Бк кг<sup>-1</sup> в прибрежном районе, до 900–1600 Бк кг<sup>-1</sup> – в глубоководном (Рисунок 3.6). Такая пространственная изменчивость содержания  ${}^7\text{Be}$  на взвеси, по-видимому, обусловлена пространственной неоднородностью поля концентрации взвешенного вещества (Рисунок 3.7): максимальные величины концентрации взвеси отмечаются в прибрежных районах моря (1–1,3 мг л<sup>-1</sup>), минимальные – в глубоководной части моря (0,24–0,6 мг л<sup>-1</sup>).

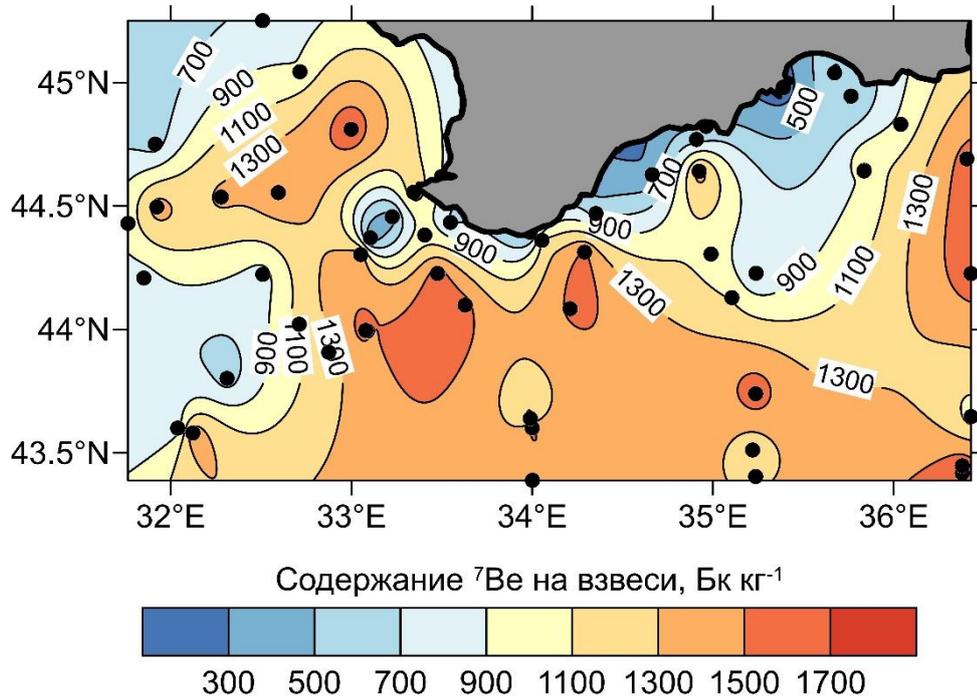


Рисунок 3.6 – Массовая концентрация  ${}^7\text{Be}$  на взвеси в верхнем квазиоднородном слое вод Черного моря. Точками показано расположение станций отбора проб морской воды

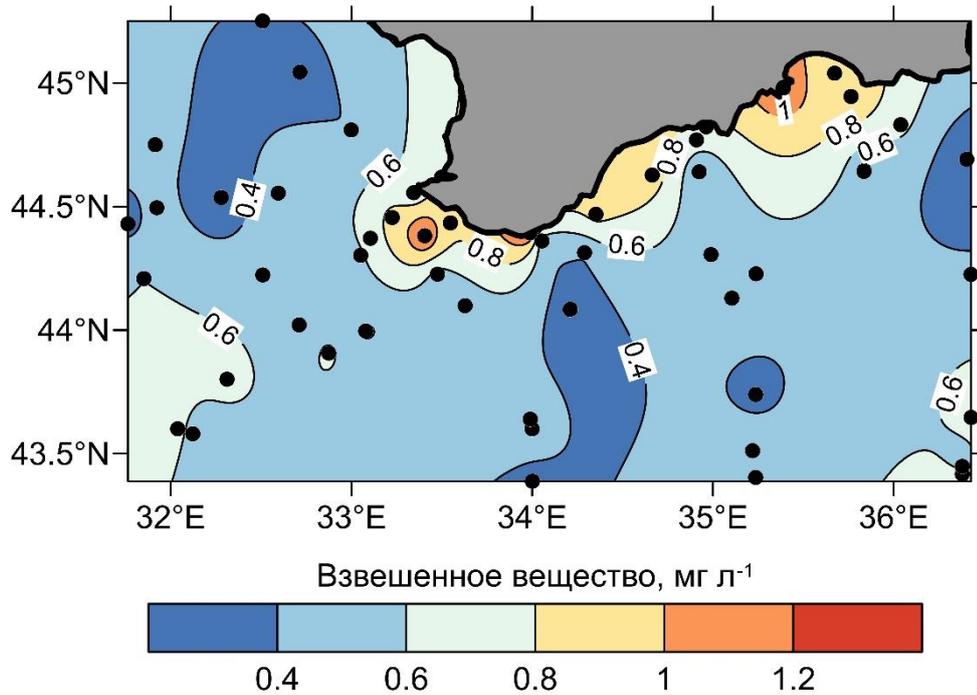


Рисунок 3.7 – Пространственное распределение концентрации взвеси в верхнем квазиоднородном слое Черного моря. Точками показано расположение станций отбора проб морской воды

Корреляционный анализ обсуждаемых выше параметров был проведен для получения количественных оценок связей между ними. Результаты представлены в Таблице 3.1. Из полученных результатов следует, что увеличение концентрации взвеси приводит к увеличению относительного содержания  $^{7}\text{Be}$  на взвеси (коэффициент корреляции 0,6) и уменьшению содержания  $^{7}\text{Be}$  в морской воде (коэффициент корреляции -0,45). Исходя из величин коэффициентов корреляции между концентрацией  $^{7}\text{Be}$  на взвеси (объемной и массовой) и величинами концентрации  $^{7}\text{Be}$  в растворенной форме (коэффициенты корреляции 0,75 и 0,78 соответственно), концентрации взвеси (коэффициенты корреляции -0,16 и -0,76 соответственно), можно говорить о том, что в морской воде количество свободных поверхностей для адсорбции  $^{7}\text{Be}$  находится в избытке. Отсутствие корреляционной связи между объемной концентрацией  $^{7}\text{Be}$  на взвеси и концентрацией взвеси (коэффициент корреляции -0,16) может быть связано с тем, что связь между этими параметрами не является линейной [Li et al., 1984]. Также, это может быть связано

с высокими скоростями протекающих процессов. Увеличение концентрации взвеси приводит к увеличению относительного содержания  ${}^7\text{Be}$  на взвеси (коэффициент корреляции 0,60) и, как следствие, к росту объемной концентрации  ${}^7\text{Be}$  на взвеси. Однако увеличение относительного содержания на взвеси приводит к уменьшению общего содержания  ${}^7\text{Be}$  в слое за счет процессов седиментации взвеси (коэффициент корреляции -0,52) и, как следствие, к уменьшению объемной концентрации  ${}^7\text{Be}$  на взвеси.

Таблица 3.1 – Парные коэффициенты корреляции Пирсона для общего содержания  ${}^7\text{Be}$  ( ${}^7\text{Be}_t$ ), его содержания в растворенной ( ${}^7\text{Be}_d$ ) и адсорбированной на взвеси формами ( ${}^7\text{Be}_{pv}$ ,  ${}^7\text{Be}_{pm}$ ), относительного содержания на взвеси ( ${}^7\text{Be}_r$ ) и концентрации взвеси (TSM)

Наименование параметра	${}^7\text{Be}_t$ , (Бк м <sup>-3</sup> )	${}^7\text{Be}_d$ , (Бк м <sup>-3</sup> )	${}^7\text{Be}_{pv}$ , (Бк м <sup>-3</sup> )	${}^7\text{Be}_{pm}$ , (Бк кг <sup>-1</sup> )	${}^7\text{Be}_r$ , (%)	TSM, (мг л <sup>-1</sup> )
${}^7\text{Be}_t$ , (Бк м <sup>-3</sup> )		0,99* p < 0,001	0,79* p < 0,001	0,79* p < 0,001	-0,52* p < 0,001	-0,45* p = 0,001
${}^7\text{Be}_d$ , (Бк м <sup>-3</sup> )	–		0,75* p < 0,001	0,78* p < 0,001	-0,57* p < 0,001	-0,47* p < 0,001
${}^7\text{Be}_{pv}$ , (Бк м <sup>-3</sup> )	–	–		0,67* p < 0,001	0,08 p = 0,559	-0,16 p = 0,267
${}^7\text{Be}_{pm}$ , (Бк кг <sup>-1</sup> )	–	–	–		-0,38* p = 0,005	-0,76* p < 0,001
${}^7\text{Be}_r$ , (%)	–	–	–	–		0,60* p < 0,001
TSM, (мг л <sup>-1</sup> )	–	–	–	–	–	

\*Корреляция значима на 99%-ом уровне достоверности

Поскольку взвешенное вещество играет важную роль в эволюции поля концентрации радионуклида, получим оценки коэффициента распределения ( $K_d$ ) между растворенной и адсорбированной на взвеси формами  ${}^7\text{Be}$ . Коэффициент распределения – это отношение массовой концентрации радионуклида на взвеси к величине его объемной концентрации в растворенной форме (формула (1.11) в подразделе 1.4).

По результатам оценок, полученных по формуле (1.11), величина коэффициента распределения  $K_d$  изменялась в интервале от  $0,7 \cdot 10^5$  до  $3,4 \cdot 10^5$  л кг<sup>-1</sup>, средняя величина составляла  $(1,7 \pm 0,3) \cdot 10^5$  л кг<sup>-1</sup> (Рисунок 3.8). Установлено, что увеличение концентрации взвеси приводит к уменьшению величины  $K_d$ . Следует отметить, что  $K_d$  не является константой равновесия, поскольку ее величина зависит от концентрации взвеси. Полученный результат хорошо согласуется с литературными данными [Hawley et al., 1986].

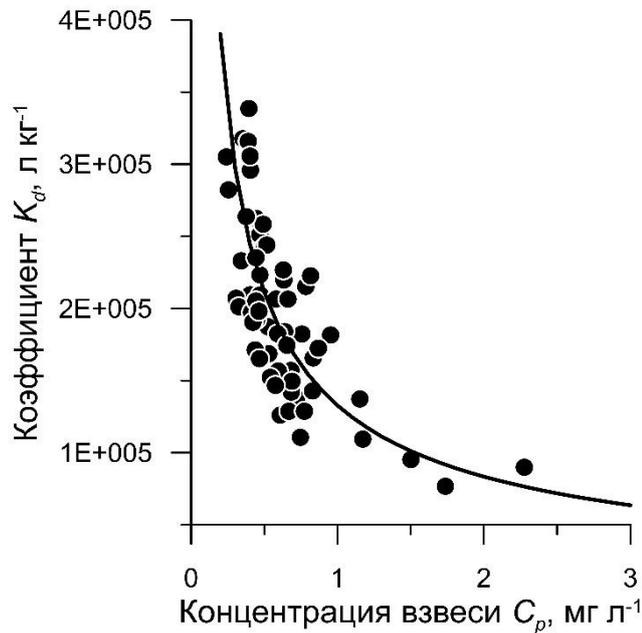


Рисунок 3.8 – Зависимость коэффициента распределения  $K_d$  от концентрации взвешенного вещества. Точки – результаты расчетов, линия – аппроксимирующая функция

Вид аппроксимирующей функции на Рисунке 3.8 был выбран согласно [Hawley et al., 1986]:

$$K_d = a \cdot C_p^{-b}, \quad (3.1)$$

где  $a$  – константа равновесия,  $a = (1,7 \pm 0,2) \cdot 10^5$ ;

$b$  – константа, учитывающая природы адсорбента и адсорбтива,  $b = 0,46 \pm 0,10$ ;

$C_p$  – концентрация взвеси, мг л<sup>-1</sup>.

Оценки резидентного времени нахождения  $^7\text{Be}$  в верхнем квазиоднородном слое вод Черного моря были получены согласно боксовой модели, предложенной в [Inoue et al., 2013]. Для это использовались данные о вертикальном распределении концентрации  $^7\text{Be}$  и глубине верхнего квазиоднородного слоя (Рисунок 3.2), вычисляемой как глубина, на которой величина колебаний температуры не превышает  $0,5^\circ\text{C}$  относительно температуры воды на поверхности [Kadko, 2017]. Расчет проводился по следующей формуле [Inoue et al., 2013]:

$$t_s = \frac{h_m I_s - h_s I_m}{h_m \lambda I_m}, \quad (3.2)$$

где  $h_s$  – глубина верхнего квазиоднородного слоя, м;

$h_m$  – глубина проникновения  $^7\text{Be}$  за вычетом глубины  $h_s$ , м;

$I_s$  – запас  $^7\text{Be}$  в верхнем квазиоднородном слое, Бк м<sup>-2</sup>;

$I_m$  – запас  $^7\text{Be}$  в водном столбе за вычетом  $I_s$ , Бк м<sup>-2</sup>;

$\lambda$  – постоянная распада,  $\lambda = 0,013$  сутки<sup>-1</sup>.

Результаты расчетов представлены на Рисунке 3.9. Минимальные величины резидентного времени нахождения  $^7\text{Be}$  в верхнем квазиоднородном слое наблюдались в летний период (станции V95-1–V95-17) в зоне сопряжения шельфа и континентального склона, характеризующейся повышенными скоростями течений. С учетом данных о средних скоростях течений в верхнем квазиоднородном слое вод Черного моря, полученных по результатам прогностических расчетов в работе [Демышев, 2011] (Рисунок 3.10), установлено, что  $^7\text{Be}$ , поступающий с осадками на морскую поверхность, переносится на расстояние от 80 до 300 км от места выпадения.

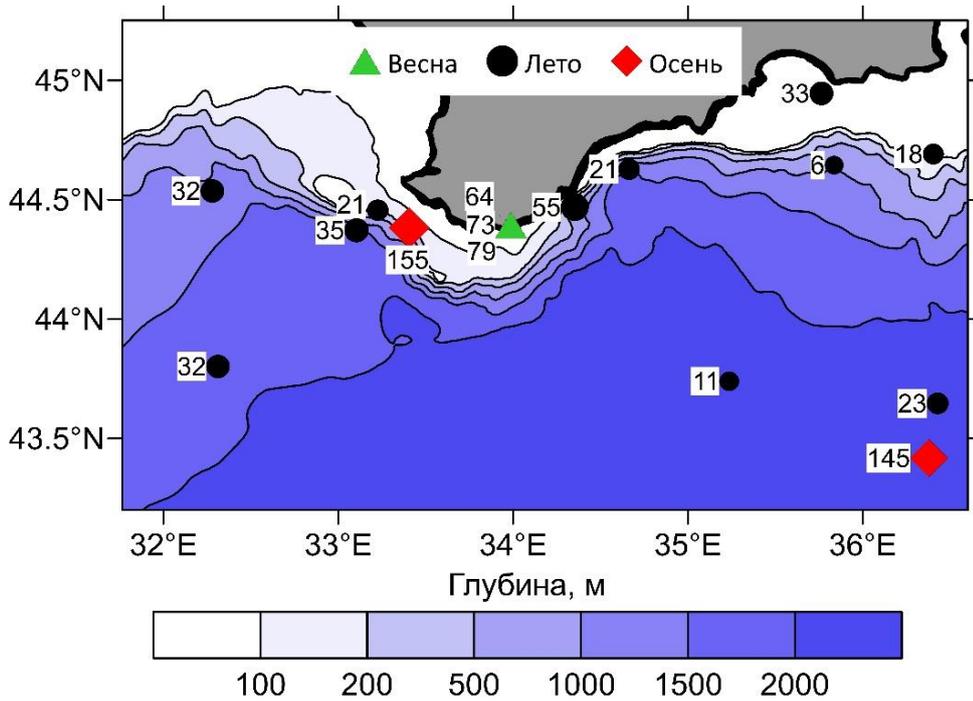


Рисунок 3.9 – Данные батиметрии и величин резидентного времени  ${}^7\text{Be}$  в верхнем квазиоднородном слое вод моря ( $t_s$ ). Размер маркера пропорционален величине  $t_s$



Рисунок 3.10 – Средняя скорость течений,  $\text{cm s}^{-1}$  в Черном море на глубине 5 м [Демьшев, 2011]

Максимальные величины резидентного времени наблюдались в осенний период (станции V89-12, 19), что связано с увеличением глубины верхнего квазиоднородного слоя в 4–10 раз по сравнению с летним периодом (Рисунок 3.2). Осенние величины резидентного времени выше летних в 4–7 раз. В весенний

период (станции К1-1, К1-2 и К2-2), относительно летнего, также наблюдались повышенные (примерно в 2 раза, если сравнивать со станцией V95-3) величины резидентного времени, что связано с различием в глубинах залегания границы верхнего квазиоднородного слоя на рассматриваемых станциях. Следует ожидать, что увеличение резидентного времени, связанное с ростом глубины перемешивания, приводит к соответствующему увеличению расстояния распространения  $^7\text{Be}$  от источника поступления. Но на практике, увеличение глубины залегания границы верхнего квазиоднородного слоя приведет к соответствующему снижению концентрации  $^7\text{Be}$  в слое и, как результат, к уменьшению расстояния, на котором повышенные величины концентрации радионуклида можно отследить.

Временная изменчивость концентрации  $^7\text{Be}$  в верхнем квазиоднородном слое моря была исследована по данным наблюдений в прибрежном районе взморья г. Севастополя и на океанографической платформе в пос. Кацивели (Таблицы 3.2 и 3.3). По материалам наблюдений, представленным в Таблицах 3.2 и 3.3, за исследуемый период было отобрано 4 пробы морской воды на следующий день после выпадения осадков (пробы от 24.05.2012, 25.05.2012, 02.08.2012, 06.08.2012) и 1 проба во время выпадения осадков (проба от 21.05.2012). Во всех пробах, которые были отобраны на следующий день после выпадения осадков, различия в величинах концентрации  $^7\text{Be}$  от значений, наблюдаемых в предыдущие или последующие дни без осадков, не превышали погрешности определения этого параметра. Концентрация бериллия в пробе, отобранной во время выпадения осадков (проба от 21.05.2012), превышала «фоновое» значение в ~2 раза [Кременчуцкий, 2012b]. Причин, по которым повышенные величины содержания  $^7\text{Be}$  в пробах морской воды не наблюдались, может быть несколько: адвективный перенос водных масс, диффузионный перенос  $^7\text{Be}$  по вертикали (в первую очередь, перераспределение радионуклида в пределах верхнего квазиоднородного слоя), адсорбция  $^7\text{Be}$  на взвеси и ее седиментация. При этом, ввиду особенностей

расположения мест отбора проб, первые две причины могут быть особенно актуальны для района Качивели, а третья – для севастопольского района.

Таблица 3.2 – Значения поверхностной концентрации  ${}^7\text{Be}$ , полученные для прибрежного района г. Севастополя

Дата	Время	Концентрация ${}^7\text{Be}$ , Бк м <sup>-3</sup>			Осадки, мм	Поток ${}^7\text{Be}$ , Бк м <sup>-2</sup>
		Растворенного	На взвеси	Суммарная		
20.05.2012	13:00–20:00	–	–	–	2	32
21.05.2012	08:30–13:30	1,9 ± 0,4	1,2 ± 0,2	3,1 ± 0,6	–	–
	13:30–17:00	4,4 ± 1,4		5,6 ± 1,6	2,1	20
22.05.2012	09:00–13:30	1,4 ± 0,4	0,7 ± 0,3	2,1 ± 0,7	–	–
	13:30–17:00	1,7 ± 0,3		2,4 ± 0,6	–	–
23.05.2012	02:00–05:00	–	–	–	1	34
24.05.2012	09:30–17:00	0,8 ± 0,5	0,4 ± 0,2	1,2 ± 0,7	–	–
25.05.2012	03:00–04:00	–	–	–	3,6	20
	11:00–17:00	0,6 ± 0,3	0,6 ± 0,1	1,2 ± 0,4	–	–

Таблица 3.3 – Значения поверхностной концентрации  ${}^7\text{Be}$ , полученные для района океанографической платформы в п. Качивели

Дата	Время	Концентрация ${}^7\text{Be}$ , Бк м <sup>-3</sup>			Осадки, мм
		Растворенного	На взвеси	Суммарная	
27.07.2012	14:30–24:00	2,7 ± 0,9	0,8 ± 0,2	3,5 ± 1,1	–
28.07.2012	07:00–12:00	4,1 ± 1,0	1,2 ± 0,4	5,3 ± 1,4	–
29.07.2012	08:00–20:30	2,3 ± 0,4	0,4 ± 0,1	2,7 ± 0,5	–
30.07.2012	07:15–23:40	2,5 ± 0,3	0,4 ± 0,1	2,9 ± 0,4	–
31.07.2012	23:00–07:00	–	–	–	2,5 мм
01.08.2012		–	–	–	
02.08.2012	06:40–11:30	1,4 ± 0,3	0,6 ± 0,2	2,0 ± 0,5	–
03.08.2012	10:30–02:20	1,7 ± 0,3	0,8 ± 0,1	2,4 ± 0,4	–
04.08.2012	15:30–07:50	1,3 ± 0,4	1,0 ± 0,2	2,3 ± 0,6	–
05.08.2012	14:00–15:00	–	–	–	1,2 мм
06.08.2012	07:00–13:00	1,7 ± 0,3	0,6 ± 0,1	2,3 ± 0,4	–

Отдельно следует отметить данные о содержании бериллия, полученные в конце июля 2012 года на океанографической платформе в пос. Кацивели. В указанный период осадки в районе платформы отсутствовали, но наблюдались относительно повышенные значения концентрации радионуклида в верхнем квазиоднородном слое Черного моря (проба от 28.07.2012). Согласно спутниковым данным (Рисунок 3.11), к востоку от исследуемого района наблюдалось выпадение осадков. Основываясь на данных пространственно-временной изменчивости поля концентрации хлорофилла а (Рисунок 3.12), можно предположить, что увеличение концентрации  $^{7}\text{Be}$  в этой пробе связано с адвективным переносом водных масс из региона, в котором осадки наблюдались.

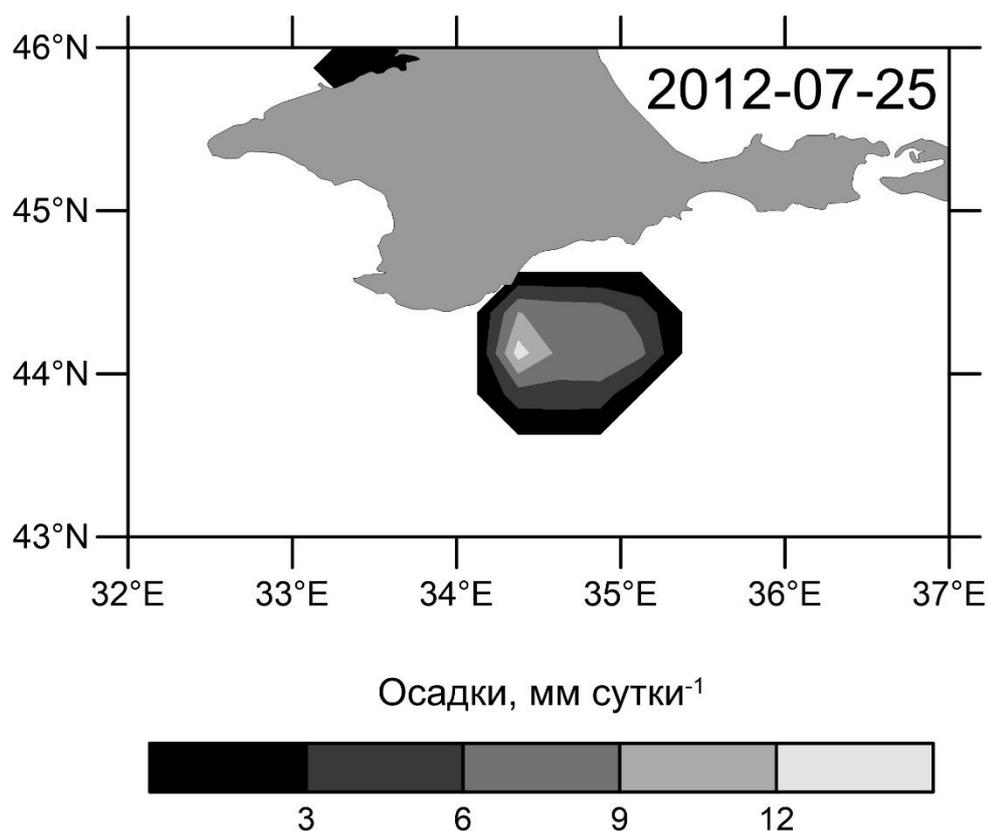


Рисунок 3.11 – Поле осадков в период с 24 по 28 июля 2012 г. по данным TRMM Multi-Satellite Precipitation Analysis TMPA [Архив Giovanni]

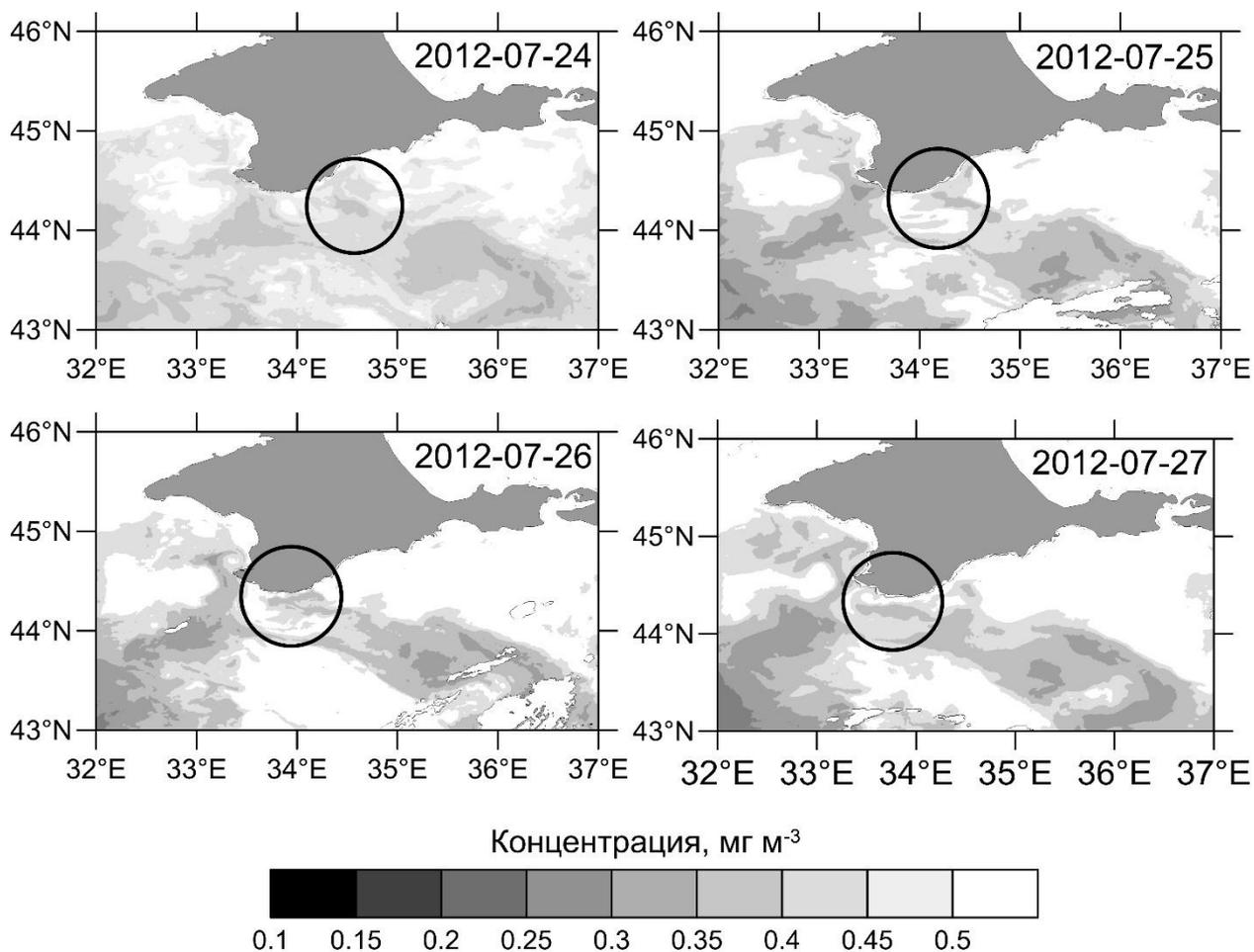


Рисунок 3.12 – Пространственно-временная изменчивость поля концентрации хлорофилла а по данным сканера цвета MODIS [Архив MODIS]

### 3.2 Поток <sup>7</sup>Ве на поверхность Черного моря

Для проведения численных экспериментов по формированию и эволюции поля концентрации <sup>7</sup>Ве в качестве граничного условия требуются данные о потоке радионуклида на поверхность Черного моря [Kremenchutskii et al., 2018]. В общем случае, поток <sup>7</sup>Ве с осадками на подстилающую поверхность определяется величинами концентрации радионуклида в атмосфере ( $C_a$ ), коэффициентом его вымывания осадками ( $\Lambda$ ) и количеством выпавших осадков ( $Pr$ ) (см. подраздел 1.3):

$$F_{wet} = \Lambda \cdot C_a \cdot Pr, \quad (3.3)$$

где  $F_{wet}$  – поток  ${}^7\text{Be}$ , Бк  $\text{м}^{-2}$  сутки $^{-1}$ ;

$A$  – эффективность (коэффициент) вымывания  ${}^7\text{Be}$  осадками, сутки $^{-1}$ ;

$C_a$  – концентрация  ${}^7\text{Be}$  в атмосфере, мБк  $\text{м}^{-3}$ ;

$Pr$  – количество выпавших осадков, мм.

### 3.2.1 Параметризация концентрации ${}^7\text{Be}$ в приземной атмосфере

Концентрация  ${}^7\text{Be}$  в атмосфере зависит от широты местоположения исследуемого региона, солнечной активности и метеопараметров. Влияние этих факторов определяет межгодовую, сезонную и суточную изменчивость концентрации радионуклида (см. подраздел 1.2).

Тренд сезонная декомпозиция ряда данных представляет собой удобный инструмент, позволяющий разложить исходный массив данных на составляющие: тренд-циклическую, сезонную и нерегулярную [Findley et al., 1998]. При этом тренд-циклическая компонента будет отражать межгодовую изменчивость концентрации радионуклида, сезонная – сезонную, а нерегулярная – временную изменчивость суточного масштаба времени. В результате разложения полученного в работе ряда данных концентрации  ${}^7\text{Be}$  в приземной атмосфере (см. подраздел 2.2) было установлено (Рисунок 3.13), что максимальная амплитуда тренд-циклической компоненты составляет 4,2 мБк  $\text{м}^{-3}$ , сезонной компоненты – 2,4 мБк  $\text{м}^{-3}$ , нерегулярной компоненты – 5,1 мБк  $\text{м}^{-3}$ .

Множественный регрессионный анализ был использован для оценки величины относительного вклада каждой из компонент ряда во временную изменчивость концентрации  ${}^7\text{Be}$  в приземной атмосфере [Green et al., 1978; Johnson, Lebreton, 2004]. Получено, что нерегулярная компонента оказывает наибольшее влияние на временную изменчивость концентрации  ${}^7\text{Be}$  и определяет 60% ее изменчивости. На втором месте по значимости сезонная компонента (29%), на третьем – тренд-циклическая (11%).

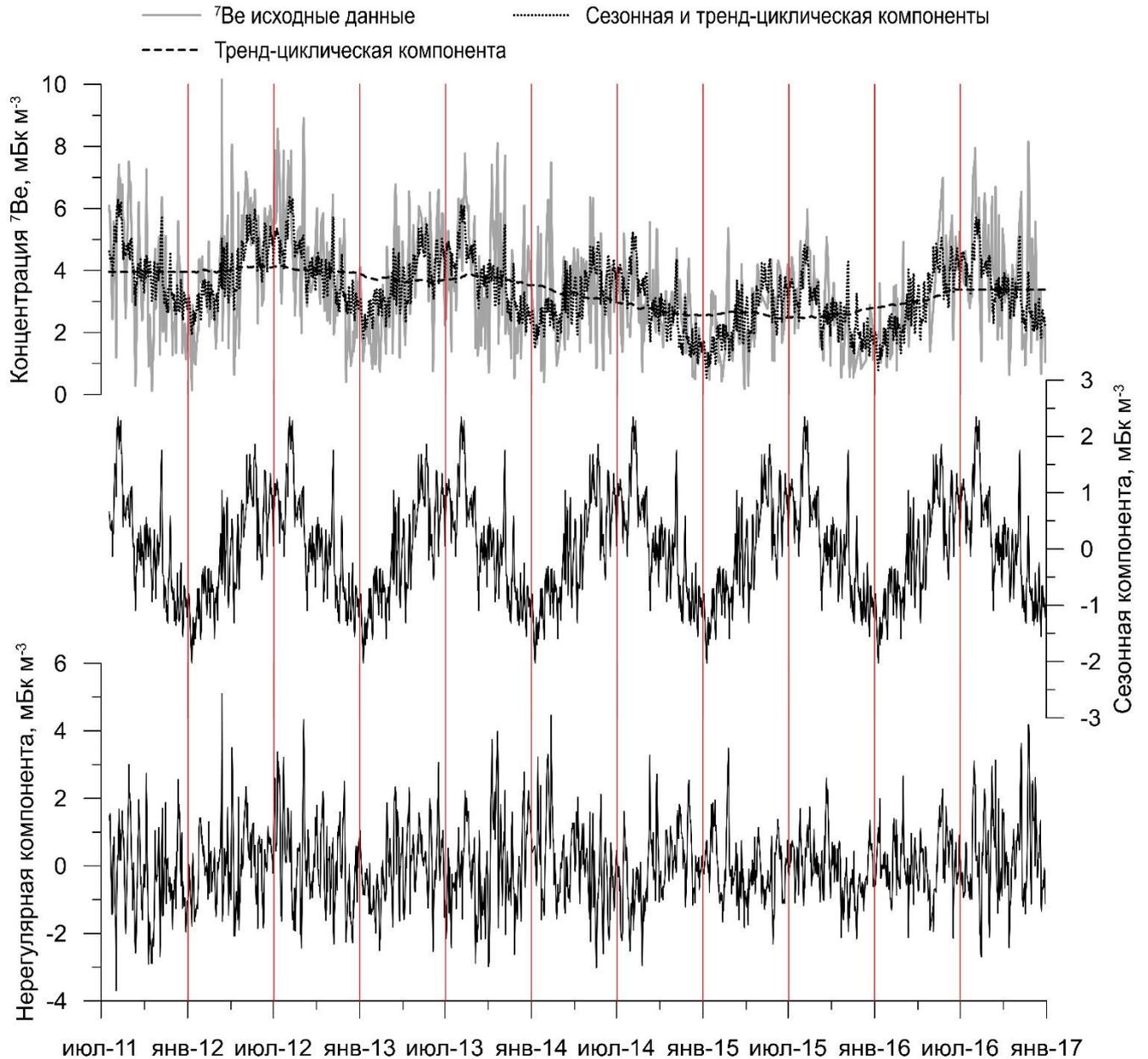


Рисунок 3.13 – Временная изменчивость концентрации  ${}^7\text{Be}$  в атмосфере и ее компонент

Корреляционный анализ был проведен для получения количественных оценок влияний солнечной активности и метеопараметров на временную изменчивость концентрации  ${}^7\text{Be}$  на различных масштабах времени, и выделения доминирующих факторов. Результаты представлены в Таблице 3.4.

Таблица 3.4 – Коэффициенты корреляции Пирсона между исходным рядом  $^7\text{Be}$  (и его компонентами) и солнечной активностью (SSN), скоростью ветра (W), температурой в приземной атмосфере (T), относительной влажностью (RH), атмосферным давлением (P), суточной суммой осадков (Pr)

Параметр	Описание	SSN	W	T	RH	P	Pr
$^7\text{Be}$	Исходный ряд	-0,02 p = 0,695	-0,23* p < 0,001	0,46* p < 0,001	-0,25* p < 0,001	-0,21* p < 0,001	-0,13 p = 0,025
$\hat{T}_t$	Тренд-циклическая компонента	-0,20* p < 0,001	0,13 p = 0,025	-0,07 p = 0,207	-0,08 p = 0,148	0,07 p = 0,214	0,13 p = 0,023
$\hat{S}_t$	Сезонная компонента	-0,06 p = 0,340	-0,25* p < 0,001	0,69* p < 0,001	-0,19* p = 0,001	-0,39* p < 0,001	0,02 p = 0,741
$\hat{I}_t$	Нерегулярная компонента	-0,08 p = 0,171	-0,18* p = 0,001	0,17* p = 0,002	-0,17* p = 0,003	-0,05 p = 0,417	-0,24* p < 0,001

\*Корреляция значима на 99%-ом уровне достоверности

Массив исходных данных концентрации  $^7\text{Be}$  в атмосфере имеет статистически значимую, слабую, положительную корреляционную связь с температурой и отрицательную со скоростью ветра, относительной влажностью и атмосферным давлением. Статистически значимая корреляция с солнечной активностью и осадками – отсутствует.

Необходимо отметить, что метеорологические факторы не оказывают влияния на скорость образования  $^7\text{Be}$  в атмосфере, но под их воздействием происходит перераспределение уже содержащегося в атмосфере  $^7\text{Be}$ . В частности, температура может оказывать влияние на интенсивность вертикального обмена в тропосфере. В результате, более легкий и теплый воздух из приземного слоя атмосферы, замещается более плотным воздухом из вышележащих слоев, последние, как правило, характеризуются относительно повышенными величинами концентрации  $^7\text{Be}$ . О наличии статистически значимой корреляционной связи между концентрацией  $^7\text{Be}$  и температурой сообщается в подавляющем

большинстве работ [García et al., 2012; Jiwen et al., 2013; Ioannidou et al., 2014; Kapala et al., 2018].

Увеличение скорости ветра приводит к уменьшению резидентного времени нахождения аэрозолей в атмосфере. Поскольку  $^7\text{Be}$  в приземной атмосфере преимущественно обнаруживается на аэрозолях, увеличение скорости ветра приводит к уменьшению концентрации  $^7\text{Be}$ . О наличии такой связи также сообщается в работах [Tositti et al., 2014; Kapala et al., 2018].

Как правило, увеличение относительной влажности воздуха сопровождается интенсификацией процесса коагуляции аэрозолей, что, в свою очередь, ведет к уменьшению их количества в атмосфере, в результате происходит уменьшение концентрации  $^7\text{Be}$ . Этот результат согласуется с литературными данными [García et al., 2012; Jiwen et al., 2013; Tositti et al., 2014; Kapala et al., 2018].

На синоптическом масштабе времени, изменения атмосферного давления связано с прохождением циклонов и антициклонов [Tositti et al., 2014]. Уменьшение величины атмосферного давления связано с циклонической активностью и может сопровождаться вымыванием  $^7\text{Be}$  из атмосферы в результате выпадения осадков. Увеличение величины атмосферного давления связано с антициклонической активностью, сопровождающейся сухой и ясной погодой, и повышенными величинами концентрации  $^7\text{Be}$  в атмосфере. На эту изменчивость синоптического масштаба времени накладывается сезонная изменчивость. Так, зимний период, относительно летнего, характеризуется пониженными величинами температуры и повышенными величинами плотности воздуха, и, как результат, повышенными величинами атмосферного давления. Таким образом сезонная изменчивость атмосферного давления находится в противофазе к сезонной изменчивости концентрации  $^7\text{Be}$ .

Тренд-циклическая компонента имеет статистически значимую, слабую, отрицательную корреляцию только с солнечной активностью. Изменения солнечной активности оказывают влияние на скорость образования  $^7\text{Be}$  в атмосфере: увеличение солнечной активности приводит к уменьшению потока

галактических космических лучей, характеризующихся энергиями на 3–10 порядков выше чем солнечные космические лучи. Уменьшение потока галактических космических лучей приводит к уменьшению скорости образования  ${}^7\text{Be}$ . На синоптическом масштабе времени влияние солнечной активности подавляется влиянием метеопараметров. Поскольку тренд-циклическая компонента объясняет межгодовую изменчивость концентрации  ${}^7\text{Be}$  в атмосфере, такая связь является ожидаемой. Этот результат согласуется с литературными данными [Duenas et al., 2015; Vas et al., 2016]. Статистически значимая корреляция между тренд-циклической компонентой и другими параметрами отсутствует.

Сезонная компонента имеет статистически значимую, сильную, положительную корреляцию с температурой и слабую, отрицательную корреляцию со скоростью ветра, относительной влажностью воздуха и атмосферным давлением. Необходимо отметить, что коэффициент корреляции между сезонной компонентой и температурой, атмосферным давлением выше, чем коэффициент корреляции между массивом исходных данных концентрации  ${}^7\text{Be}$  и обсуждаемыми параметрами.

Нерегулярная компонента имеет статистически значимую, слабую, положительную корреляцию с температурой и отрицательную корреляцию со скоростью ветра, относительной влажностью и осадками. Нерегулярная компонента отражает влияние случайных, нерегулярных процессов, и только она имеет статистически значимую связь с осадками.

Широтный эффект. В работе [Kulan et al., 2006] исследовалась связь между средней многолетней величиной концентрации  ${}^7\text{Be}$  в атмосфере и широтой местоположения региона. По результатам исследования для Северного полушария была установлена следующая функциональная зависимость:

$$C_{lat} = 2 + 3 \cdot \exp^{-0.5 \left( \frac{\varphi - 38,7}{8,4} \right)^2}, \quad (3.4)$$

где  $C_{lat}$  – концентрация  $^7\text{Be}$  на определенной широте, мБк м<sup>-3</sup>;

$\varphi$  – широта месторасположения станции.

Как было показано выше, на межгодовую изменчивость концентрации  $^7\text{Be}$  в атмосфере доминирующее влияние оказывает солнечная активность. В работе [Kulan et al., 2006] указывается, что при максимуме или минимуме солнечной активности, отклонение осредненной за год величины концентрации  $^7\text{Be}$  в атмосфере ( $C_{lat}$ ), в большинстве, случаев не превышает 20%.

Для широты 44,6° с.ш. (широта расположения г. Севастополя) формула (3.4) дает величину концентрации  $^7\text{Be}$  в атмосфере в интервале от 3,5 до 5,2 мБк м<sup>-3</sup> (20%-й интервал), средняя величина составляет 4,3 мБк м<sup>-3</sup>. Средняя величина концентрации по данным наблюдений –  $(3,5 \pm 1,7)$  мБк м<sup>-3</sup>. Таким образом, полученные оценки не противоречат натурным данным.

Если предположить, что межгодовая изменчивость отклонения (20%-й интервал) величины концентрации  $^7\text{Be}$  в атмосфере относительно величины  $C_{lat}$  может быть аппроксимирована функцией синуса, то, с учетом данных о годах начала и завершения последних 3 циклов солнечной активности по материалам Королевской обсерватории в Брюсселе [Архив Silso], можно получить следующее уравнение:

$$C_{ssn} = 1 - 0,2 \sin\left(\pi \frac{year + 1,13}{5,5}\right), \quad (3.5)$$

где  $C_{ssn}$  – поправка для  $C_{lat}$  на цикл солнечной активности;

$year$  – год, на который проводит расчет поправки.

Уравнение, описывающее сезонную изменчивость концентрации  $^7\text{Be}$  в приземной атмосфере ( $C_{atm}$ ), может быть получено путем аппроксимации сезонной компоненты ряда (Рисунок 3.13) функцией синуса:

$$C_{atm} = 1,03 \cdot \sin\left(\pi \frac{year + 0,273}{0,5}\right). \quad (3.6)$$

Как было показано выше, на суточном масштабе времени доминирующее влияние на временную изменчивость концентрации  ${}^7\text{Be}$  в приземном слое атмосферы оказывают осадки. Количественные оценки этого влияния были получены путем рассмотрения событий выпадения осадков продолжительностью не более суток. В каждом случае вычислялась величина отношения концентраций в период выпадения осадков и в последующие дни после их выпадения, к значению концентрации накануне выпадения осадков. На Рисунке 3.14 верхней и нижней границей «ящика» (термин из Excel) представлены первый и третий квартили (25-й и 75-й процентиля соответственно). Медиана представлена горизонтальной линией внутри «ящика», среднее арифметическое – точкой. Усы «ящика» представляют 10-й и 90-й процентиля. Минимальная и максимальная величины представлены крестом.

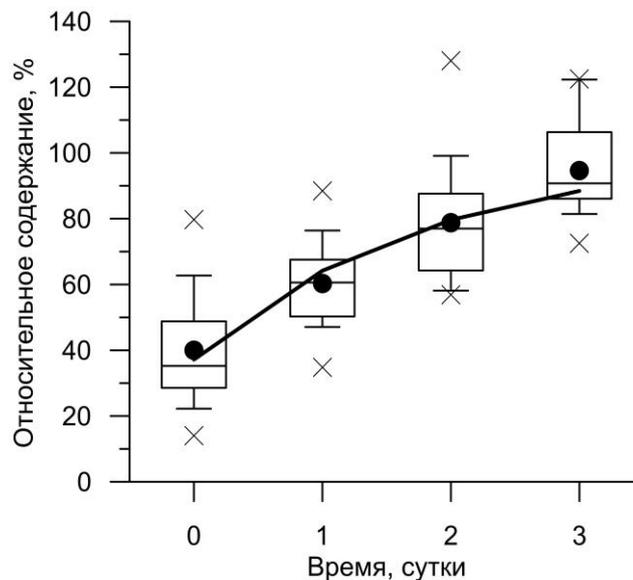


Рисунок 3.14 – Относительные величины концентрации  ${}^7\text{Be}$  в атмосфере во время выпадения осадков и в последующие трое суток.

Сплошная линия – результат аппроксимации

Согласно полученным результатам, выпадение осадков сопровождается уменьшением величины концентрации  ${}^7\text{Be}$  в атмосфере на 13–80% (среднее составляет 40%) относительно его начального содержания. В первый день после

выпадения осадков концентрация  ${}^7\text{Be}$  в атмосфере увеличивается до 35–88 % (среднее – 60%) относительно величины концентрации накануне выпадения осадков. Во второй день – 59–129% (среднее – 79%), в третий день – 72–122% (среднее – 94%). Этот результат согласуется с результатами, представленными в работах [Caillet et al., 2001; Kusmierczyk-Michulec et al., 2015]. Авторы работы [Caillet et al., 2001] провели оценки относительной величины скорости восстановления концентрации  ${}^7\text{Be}$  в атмосфере после выпадения осадков и получили, что в первый день восстанавливается в среднем 59%, во второй – 84%, в третий – 94%. Авторы работы [Kusmierczyk-Michulec et al., 2015] получили, что средняя относительная величина уменьшения концентрации  ${}^7\text{Be}$  в атмосфере в результате выпадения осадков составляет 50%.

Временная изменчивость, представленная на Рисунке 3.14, может быть аппроксимирована следующей функцией:

$$r = (1 - a \cdot \exp(-k \cdot t)) \cdot 100, \quad (3.7)$$

где  $r$  – относительное содержание  ${}^7\text{Be}$  в атмосфере;

$a$  – константа,  $0,63 \pm 0,05$ ;

$k$  – скорость восстановления,  $(0,56 \pm 0,10)$  сутки $^{-1}$ ;

$t$  – время, сутки.

Авторы работы [Caillet et al., 2001] сообщают, что величина, обратная к скорости восстановления ( $1/k$ ), дает оценку среднего времени, необходимого для восстановления концентрации  ${}^7\text{Be}$  в атмосфере после выпадения осадков. Согласно полученным результатам, в севастопольском регионе этот процесс занимает в среднем 2 дня. Этот результат хорошо согласуется с литературными данными: 2 суток [Bergametti et al., 1989] и 1,2 суток [Caillet et al., 2001].

Уравнение, описывающее временную изменчивость концентрации  ${}^7\text{Be}$  в приземном слое атмосферы, с учетом формул (3.4), (3.5), (3.6) и (3.7) может быть записано в следующем виде:

$$C_a = \left\{ \left[ \begin{array}{l} 2 + 3 \cdot \exp^{-0.5 \left( \frac{\phi - 38.7}{8.4} \right)^2} \\ + 1.03 \cdot \sin \left( \pi \frac{year + 0.273}{0.5} \right) \end{array} \right] \cdot \left[ 1 - 0.2 \sin \left( \pi \frac{year + 1.13}{5.5} \right) \right] + \right. \\ \left. \times [1 - 0.63 \cdot \exp(-0.56 \cdot t)] \right\} \times \quad (3.8)$$

### 3.2.2 Параметризация коэффициента вымывания $^7\text{Be}$ из атмосферы осадками

Коэффициент вымывания  $^7\text{Be}$  осадками можно оценить, как отношение величины потока к произведению концентрации в атмосфере на количество выпавших осадков.

В доступной литературе описано три возможных подхода к оценке величины влажного потока  $^7\text{Be}$  на подстилающую поверхность [Sakashita et al., 2002; Giorgi, Chameides, 1986; Kasibhatla et al., 1991]. Все они подробно изложены в подразделе 1.3. Здесь же приведено краткое обобщение.

Все три параметризации разделяют процесс влажной очистки атмосферы на два: вымывание атмосферных аэрозолей из подоблачного слоя (washout) и вымывание со слоя облаков (rainout). Первый процесс во всех трех случаях описывается с использованием параметризации, предложенной в работе [ArSimon et al., 1985]: зависимость коэффициента вымывания от интенсивности осадков. Влияние второго процесса (вымывание радионуклида со слоя облаков) в этих параметризациях учитывается с использованием различных подходов (формулы (1.5), (1.9) и (1.10) в подразделе 1.3).

Авторы работы [Sakashita et al., 2002] провели сопоставление результатов, получаемых с использованием указанных параметризаций, с натурными данными. В качестве входных параметров были использованы суммы осадков за каждый час и осредненные за месяц значения приземной концентрации радионуклида.

Рассчитывались суммарные за месяц величины потока  $^7\text{Be}$  и проводилось сопоставление с аналогичными величинами, полученными по результатам мониторинга. Главным недостатком стало то, что использование рассматриваемых параметризаций связано с переоценкой величины потока, в отдельных случаях достигающей 500%.

Поскольку при проведении численных экспериментов входные параметры несколько отличаются, автор провел подобное исследование, но использовал суточные суммы атмосферных осадков и среднесуточные величины концентрации  $^7\text{Be}$  в атмосфере. Сопоставление результатов расчетов проводилось по данным суточных величин потока  $^7\text{Be}$  с осадками (Рисунок 3.15). В исследовании использовались данные за период с 2011 по 2013 гг. Полученный результат, согласуется с тем, что был представлен в работе [Sakashita et al., 2002]: использование указанных параметризаций приводит к завышению величины потока  $^7\text{Be}$ .

Поскольку использование существующих параметризаций коэффициента вымывания приводит к завышению величины потока  $^7\text{Be}$  до 500% от его значения, автор провел их адаптацию используя литературные данные и результаты мониторинга содержания  $^7\text{Be}$  в приземной атмосфере и в атмосферных выпадениях (см. подразделы 2.2 и 2.3). Для этого, были выполнены расчеты коэффициента вымывания по результатам мониторинга и получена зависимость этого параметра от количества выпавших осадков. Согласно полученным данным (Рисунок 3.16), с увеличением количества выпадающих осадков коэффициент вымывания уменьшается. Величина коэффициента вымывания изменяется от 0,2 до 8,0 сутки<sup>-1</sup>.

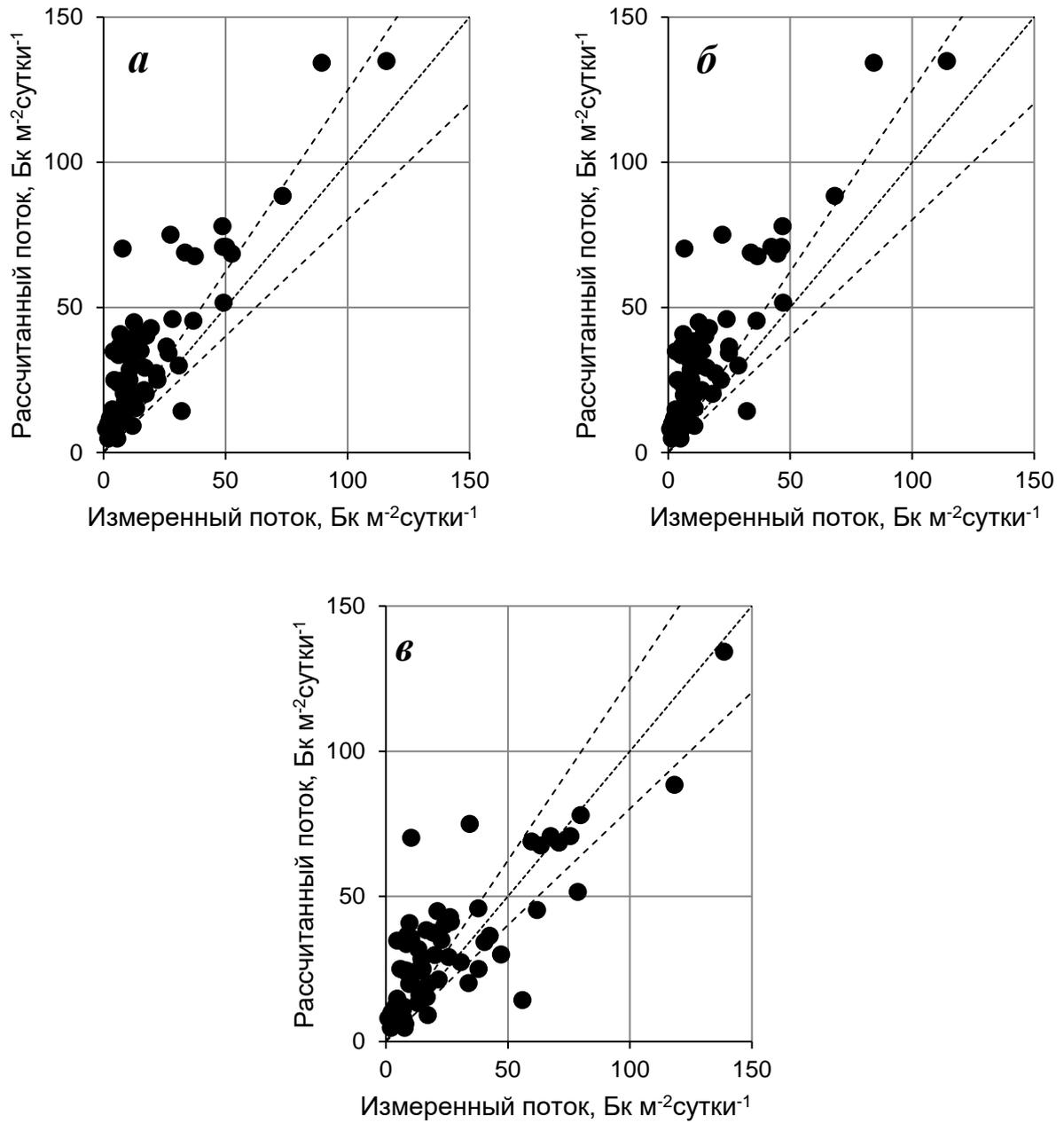


Рисунок 3.15 – Сопоставление данных измерений с результатами расчетов, при использовании *GC* схемы (*a*) [Giorgi, Chameides, 1986], *K* схемы (*б*) [Kasibhatla et al., 1991], *K\** схемы (*в*) [Sakashita et al., 2002].

Пунктирные линии – доверительный интервал

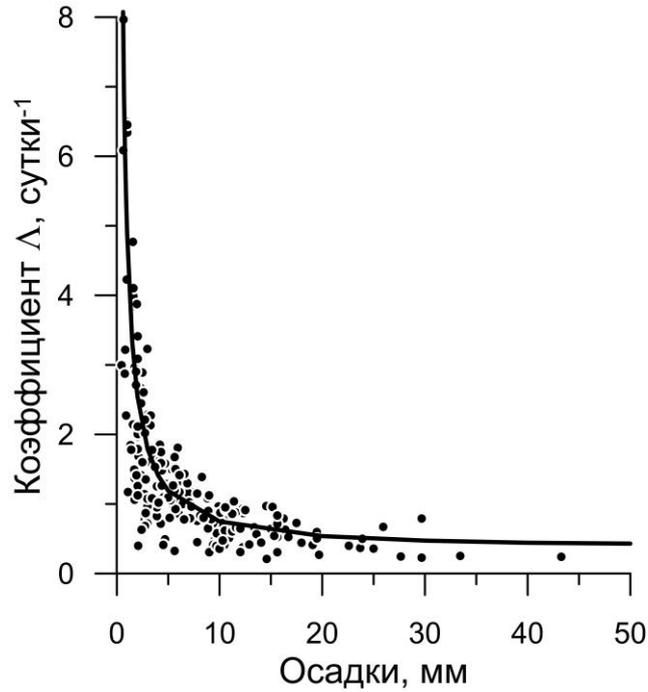


Рисунок 3.16 – Зависимость коэффициента вымывания  ${}^7\text{Be}$  ( $\Lambda$ ) от количества осадков. Точки – результаты оценок, сплошная линия – аппроксимирующая функция

Как отмечалось в ранее (см. подраздел 1.3), вымывание  ${}^7\text{Be}$  из атмосферы – определяют два протекающих одновременно процесса: подоблачное вымывание (washout) и вымывание со слоя облаков (rainout). Коэффициент вымывания в первом случае параметризуется степенной функцией [ArSimon et al., 1985], во втором – экспоненциальной [Sakashita et al., 2002]. На практике, разделить эти два процесса – задача не тривиальная, поэтому на Рисунке 3.16 представлен результат суперпозиции двух коэффициентов вымывания. Уравнение аппроксимирующей функции, записанное как суперпозиция экспоненциальной и степенной функций, имеет вид:

$$\Lambda = 4,75 \cdot \text{Pr}^{-0,83} + 0,2 \cdot \exp\left(\frac{\text{Pr} - 64,9}{129,9}\right). \quad (3.9)$$

Валидация результатов, полученных с использованием этой параметризации (формула (3.9)), была проведена аналогичным образом: в качестве входных параметров использовались суточные суммы осадков и среднесуточные величины концентрации  ${}^7\text{Be}$  в атмосфере. Сопоставлялись рассчитанные и измеренные величины потоков  ${}^7\text{Be}$  с осадками. Согласно полученным результатам (Рисунок 3.17), использование полученной параметризации позволило описать до 87% данных наблюдений, что значительно превосходит результаты, полученные ранее (Рисунок 3.15) для которых лучший показатель был 30%.

Исходя из данных, представленных на Рисунке 3.18, наибольшие величины отношения рассчитанных величин к измеренным были характерны для осадков объемом до 10 мм. Автор полагает, что эти отклонения вызваны использованием суточной суммы осадков (среднесуточной интенсивности), параметра, который не дает невозможно проводить их идентификацию по характеру выпадения (ливневые, обложные, морозящие). Так, ливневые осадки характеризуются высокой интенсивностью и низкой продолжительностью, и, как результат, пониженными величинами коэффициента вымывания (и потока  ${}^7\text{Be}$ ), по сравнению с обложными при эквивалентном объеме [Семенченко, 2002]. Морозящие же, напротив, являются мелкокапельными [Семенченко, 2002], то есть осадками с низкой интенсивностью, следовательно, характеризуются относительно повышенными величинами коэффициента вымывания и потока  ${}^7\text{Be}$  по сравнению с обложными, при эквивалентном объеме. Таким образом, для того чтобы повысить процент воспроизведенных данных, необходимо получить зависимость коэффициента вымывания от количества выпавших осадков для каждого типа осадков. При расчетах проводить сначала определение характера выпадения осадков, а затем использовать соответствующую параметризацию. В тоже время, полученная в данной работе параметризация позволяет описать высокий процент рассмотренных случаев выпадения осадков.

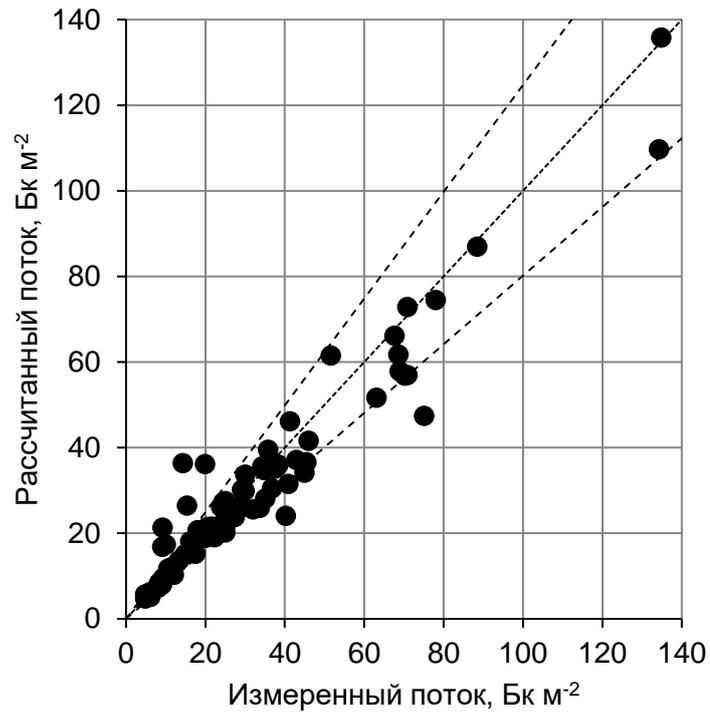


Рисунок 3.17 – Сопоставление результатов наблюдений с результатами оценок, полученных по формуле (3.9). Пунктирная линия – доверительный интервал

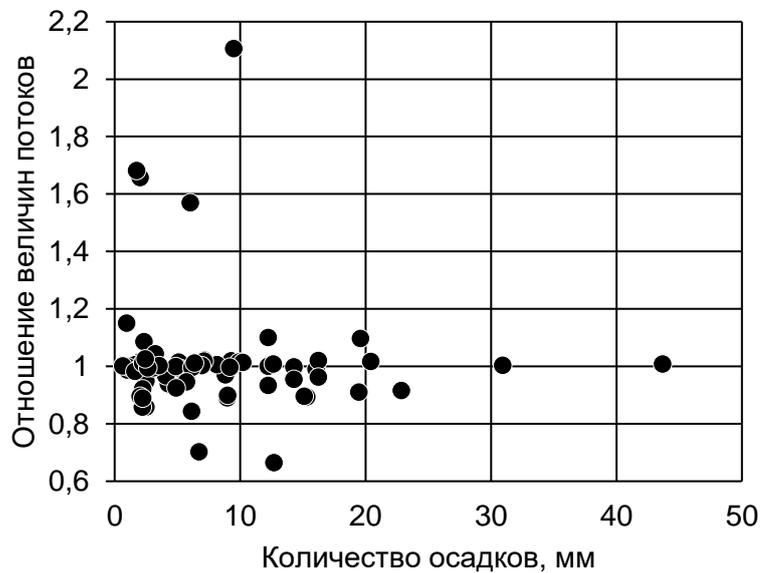


Рисунок 3.18 – Зависимость величины отношения рассчитанного потока к измеренному от количества выпадающих осадков

### 3.2.3 Параметризация потока $^7\text{Be}$ из атмосферы

Как уже отмечалось выше (см. подраздел 1.3), на подстилающую поверхность  $^7\text{Be}$  поступает в потоке сухих и влажных атмосферных выпадений. Для получения количественных оценок величин потока был проведен мониторинг содержания  $^7\text{Be}$  в суммарных и влажных атмосферных выпадениях.

Межгодовая изменчивость потока  $^7\text{Be}$  с сухими и влажными атмосферными выпадениями исследовалась в период с марта 2011 г. по декабрь 2013 г. в севастопольском регионе. По результатам мониторинга величина суммарного (сухого и влажного) за год потока изменялась в интервале от 609 до 740 Бк м<sup>-2</sup> год<sup>-1</sup>. Согласно литературным данным, величина суммарного за год потока  $^7\text{Be}$  может изменяться от ~400 [Dueñas et al., 2002; Ioannidou, Papastefanou, 2006] до 6350 Бк м<sup>-2</sup> год<sup>-1</sup> [Harvey, Matthews, 1989] в зависимости от количеств осадков, выпадающих в исследуемом регионе: 300–400 и 2634 мм год<sup>-1</sup> соответственно. В средних широтах Северного полушария эта величина изменяется в диапазоне от 400 до 3800 Бк м<sup>-2</sup> год<sup>-1</sup> [Turekian et al., 1983; Renfro et al., 2013]. Таким образом, полученные в данной работе величины потока согласуются с литературными данными.

Вклад сухих выпадений в суммарную величину потока  $^7\text{Be}$  вычислялся как разность между величинами суммарного и влажного потоков  $^7\text{Be}$  за аналогичный период, нормируемая на величину суммарного потока. По результатам мониторинга величина этого вклада изменяется в диапазоне от 3 до 100% (Рисунок 3.19), средняя величина – 20%. Максимальные величины наблюдаются в летний период, минимальные – в зимний [Кременчуцкий, Батраков, 2017].

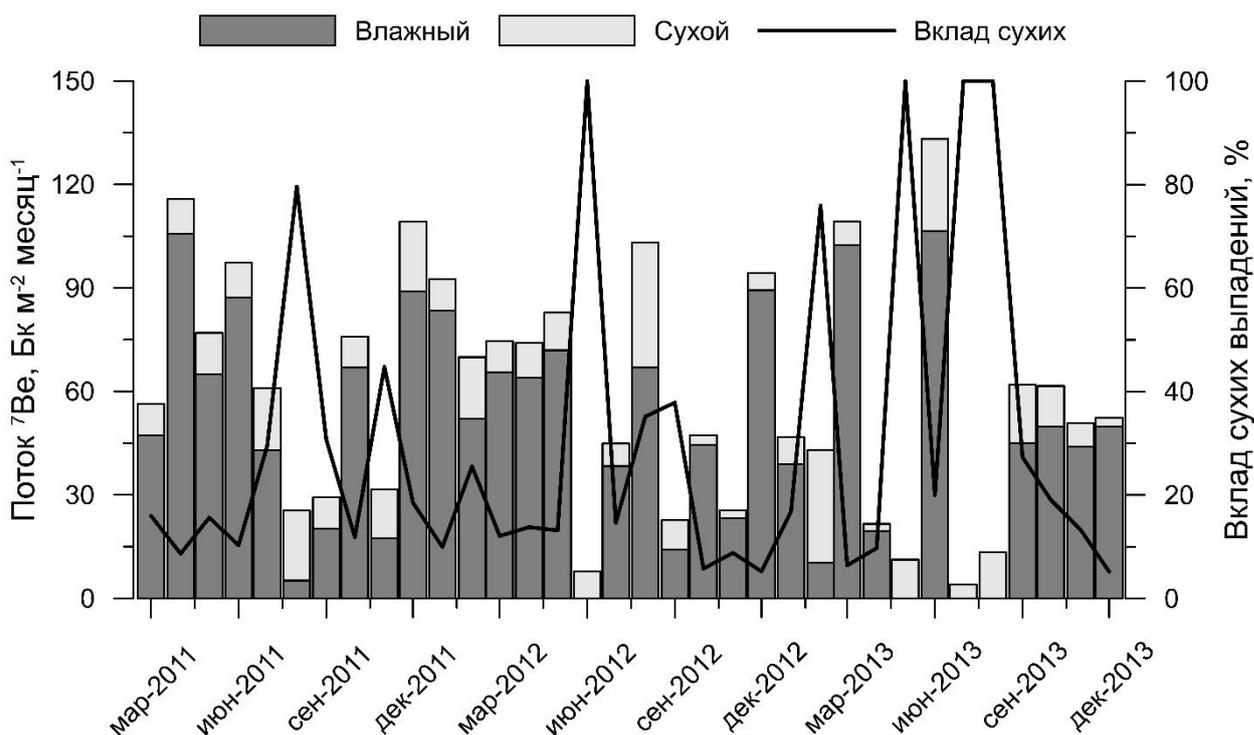


Рисунок 3.19 – Временная изменчивость суммарного, влажного и сухого потоков <sup>7</sup>Be и относительный вклад потока сухих выпадений в суммарный за месяц поток <sup>7</sup>Be

В других работах [Olsen et al., 1985; Todd et al., 1989; McNeary, Baskaran, 2003; Lozano et al., 2011; Baskaran, 2012] сообщается, что величина вклада сухих выпадений в суммарную за год величину потока изменяется от нескольких процентов до 15% в зависимости от количества и внутригодового распределения осадков. Отдельно выделяются регионы с относительно засушливым климатом для которых доля сухих выпадений может быть выше [Olsen et al., 1985; Todd et al., 1989; McNeary, Baskaran, 2003; Lozano et al., 2011; Baskaran, 2012]. Таким образом, результаты, полученные в данной работе, не противоречат литературным данным.

По результатам мониторинга абсолютная величина потока сухих выпадений составляет в среднем  $(0,5 \pm 0,3)$  Бк м<sup>-2</sup> сутки<sup>-1</sup>. Полученный результат согласуется литературными данными [Ioannidou, Papastefanou, 2006; Dueñas et al., 2011; Pham et al., 2013], согласно которым средняя величина потока сухих выпадений <sup>7</sup>Be изменяется в диапазоне от 0,3 до 1,2 Бк м<sup>-2</sup> сутки<sup>-1</sup>.

Поток  $^7\text{Be}$  с влажными атмосферными выпадениями. Подставляя формулы (3.9) и (3.10) в (3.4) получим уравнение для оценки величины влажного потока радионуклида с осадками [Кременчуцкий и др., 2015]:

$$F_{wet} = \left[ 4,75 \cdot \text{Pr}^{-0,83} + 0,2 \cdot \exp\left(\frac{\text{Pr}-64,9}{129,9}\right) \right] \times$$

$$\times \left\{ \left[ 2 + 3 \cdot \exp\left(-0,5 \left(\frac{\phi-38,7}{8,4}\right)^2\right) \right] \cdot \left[ 1 - 0,2 \sin\left(\pi \frac{year+1,13}{5,5}\right) \right] + \right.$$

$$\left. + 1,03 \cdot \sin\left(\pi \frac{year+0,273}{0,5}\right) \right\} \times$$

$$\times [1 - 0,63 \cdot \exp(-0,56 \cdot t)] \cdot \text{Pr}$$
(3.10)

Поскольку натурные данные о временной изменчивости потока  $^7\text{Be}$  с осадками в Черноморском регионе ограничены данными, представленными в диссертационной работе, для валидации результатов оценок, получаемых по формуле (3.10), привлекались результаты мониторинга потока  $^7\text{Be}$  ряда станций, расположенных в средних широтах Северного полушария (Рисунок 3.20, Таблица 3.5) [Кременчуцкий и др., 2015].

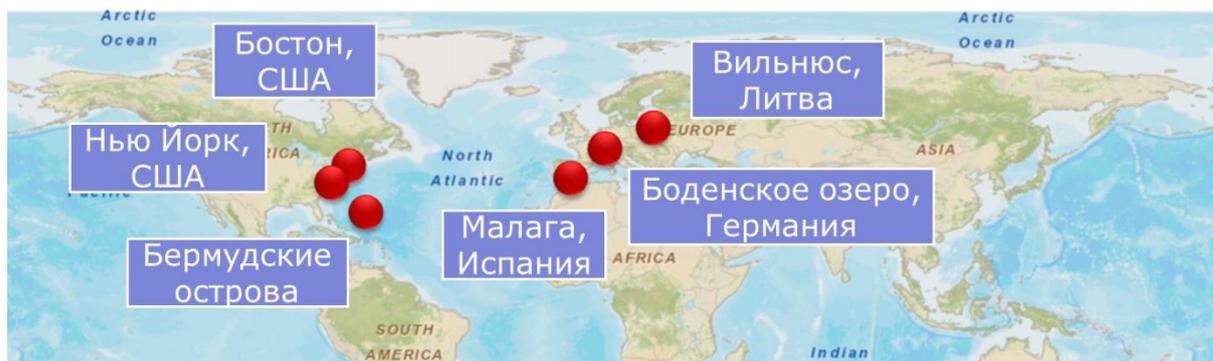


Рисунок 3.20 – Карта расположения станций

Как видно из Рисунка 3.20 и Таблицы 3.5 рассматриваемые станции полностью перекрывают диапазон широт, соответствующих расположению

Черного моря и расстояние между ними значительно превосходит его линейный размеры.

Таблица 3.5 – Расположение станций, период мониторинга, среднемесячные величины осадков и потоков  $^7\text{Be}$ , с указанием источника данных

Координаты		Название местности	Период		Осадки (мм мес <sup>-1</sup> )	Поток $^7\text{Be}$ (Бк м <sup>-2</sup> мес <sup>-1</sup> )	Источник данных
			начало	конец			
32° 15' с.ш.	64° 65' з.д.	Тудор-Хилл, Бермудские острова	04.2007	03.2008	160	153	[Kadko et al., 2011]
32° 22' с.ш.	64° 41' з.д.	Бермудский институт океанологических наук, Бермудские острова	08.2007	01.2009	110	240	[Kadko et al., 2011]
36° 43' с.ш.	4° 28' з.д.	Университет Малаги, Малага, Испания	01.2005	11.2011	47	161	[Duenas et al., 2011]
40° 54' с.ш.	73° 07' з.д.	Школа морских и атмосферных наук, Стони Брук, Нью-Йорк, США	04.2008	12.2009	108	229	[Renfro et al., 2013]
42° 18' с.ш.	71° 2' з.д.	Бостон, Массачусетс, США	09.2000	08.2007	82	216	[Zhu et al., 2009]
47° 40' с.ш.	9° 10' з.д.	Констанца, Германия	03.1993	12.1993	72	86	[Vogler et al., 1996]
54° 41' с.ш.	25° 15' з.д.	Институт физики, Вильнюс, Литва	01.1996	09.1998	39	160	[Lujanien, 2003]

Временные ряды суточных сумм атмосферных осадков были взяты из архива Национального центра климатических данных [Архив NCDC].

Часть результатов мониторинга не использовалась по причине несоответствия данных о количестве выпавших осадков, представленных в работах, и сведений Национального центра климатических данных. Исключением являлся Вильнюс, для которого суммы осадков в работе [Lujanien, 2003] не сообщались. Поскольку проводилась валидация параметризации, описывающей временную изменчивость влажного потока  $^7\text{Be}$ , периоды, для которых вариация

сухого потока радионуклида, рассчитываемая как произведение  $0,5 \text{ Бк м}^{-2} \text{ сутки}^{-1}$  на количество дней без осадков, превосходила 20% от величины влажного потока, не рассматривались. При расчетах учитывался радиоактивный распад  $^7\text{Be}$  за время экспозиции проб.

В результате был получен массив данных наблюдений, состоящий из 170 измерений величины потока за период в 12 лет.

Согласно полученным результатам, использование формулы (3.10) позволило верно оценить величину потока для 80% данных (Рисунок 3.21). Следует отметить, что максимальная величина отклонения рассчитанных величин от измеренных составляла 75%, при этом, в 40%-й диапазон укладывается 98% точек.

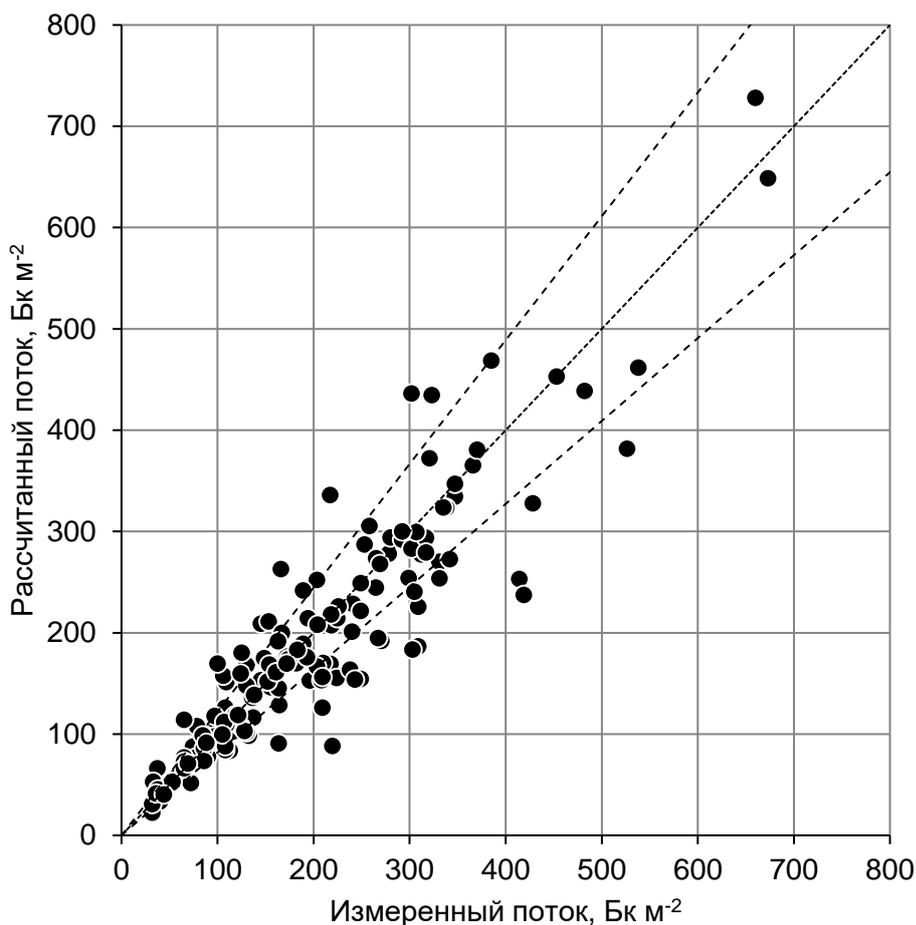


Рисунок 3.21 – Сопоставление результатов расчета с данными измерений.

Пунктирная линия – доверительный интервал

Параметризация также воспроизводит динамику поступления  $^7\text{Be}$  на подстилающую поверхность [Кременчуцкий и др., 2015]. На Рисунке 3.22 показан пример для станции, расположенной в Бостоне (США). Выбор станции обусловлен наличием наиболее продолжительного ряда наблюдений (7 лет).

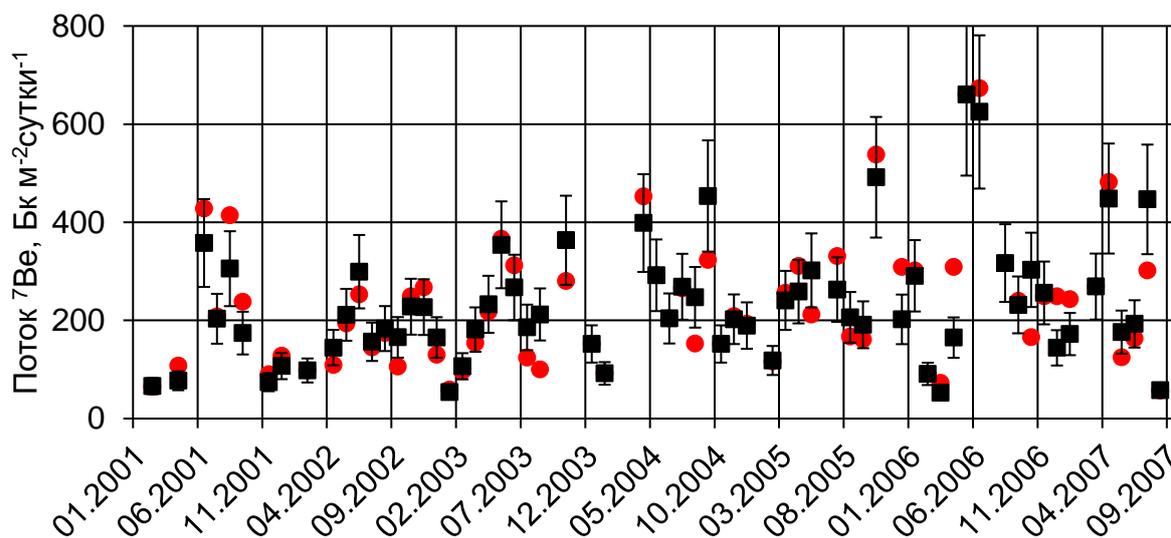


Рисунок 3.22 – Временная изменчивость потока  $^7\text{Be}$ . Точки – натурные данные, квадраты с планками погрешностей – результаты оценок

### Выводы к разделу 3

Вертикальное распределение концентрации  $^7\text{Be}$  в водах Черного моря подобно вертикальному распределению температуры. В открытых районах моря радионуклид обнаруживается до глубин 60–70 м.

Общее содержание  $^7\text{Be}$  в верхнем квазиоднородном слое Черного моря изменяется по пространству и во времени от 1,2 до 9,5 Бк м<sup>-3</sup>, средняя величина составляет  $(5,7 \pm 1,9)$  Бк м<sup>-3</sup>. Такая изменчивость обусловлена рядом факторов: вариацией потока  $^7\text{Be}$  из атмосферы, адвективным переносом водных масс, вариацией концентрации взвеси. Повышенные величины концентрации отмечаются в глубоководной части моря, пониженные – в прибрежной.

Резидентное время нахождения  $^7\text{Be}$  в верхнем квазиоднородном слое моря изменяется от 6 до 155 суток. Минимальные величины наблюдаются в летний сезон в областях наименьших глубин залегания границы верхнего квазиоднородного слоя. Максимальные величины наблюдаются в осенний сезон в областях наибольших глубин залегания границы верхнего квазиоднородного слоя. Пятна повышенной концентрации радионуклида, образующиеся в результате выпадения осадков, могут переноситься на десятки и сотни километров, в зависимости от района образования.

В морской воде  $^7\text{Be}$  распределен между растворенной и адсорбированной на взвеси формами. На взвеси содержится в среднем  $(10 \pm 4)\%$  от общего содержания  $^7\text{Be}$ . В абсолютных величинах концентрация  $^7\text{Be}$  на взвеси составляет в среднем  $(0,5 \pm 0,2)$  Бк  $\text{м}^{-3}$  или  $(980 \pm 423)$  Бк  $\text{кг}^{-1}$ . Максимальные величины концентрации  $^7\text{Be}$  на взвеси отмечаются в глубоководной части моря, минимальные – в прибрежной. Максимальные величины относительного содержания  $^7\text{Be}$  на взвеси наблюдаются на прибрежной части моря, минимальные – в глубоководной. Максимальные величины концентрации растворенного  $^7\text{Be}$  отмечаются в глубоководной части моря, минимальные – в прибрежной. Коэффициент распределения  $^7\text{Be}$  между растворенной и адсорбированной на взвеси формами изменяется от  $0,7 \cdot 10^5$  до  $3,4 \cdot 10^5$  л  $\text{кг}^{-1}$ , средняя величина составляет  $(1,7 \pm 0,3) \cdot 10^5$  л  $\text{кг}^{-1}$ . Установлена функциональная зависимость величины коэффициента распределения  $^7\text{Be}$  от концентрации взвеси для вод Черного моря.

Для использования модели переноса пассивной примеси в качестве модели переноса  $^7\text{Be}$  в водах Черного моря, были дополнительно проведены исследования временной изменчивости содержания  $^7\text{Be}$  в приземной атмосфере, в суммарных и влажных атмосферных выпадениях. Результатом этих исследований стала параметризация, позволяющая воспроизвести динамику поступления  $^7\text{Be}$  из атмосферы на подстилающую поверхность.

## РАЗДЕЛ 4 ПРОСТРАНСТВЕННО-ВРЕМЕННАЯ ИЗМЕНЧИВОСТЬ ПОЛЯ КОНЦЕНТРАЦИИ ${}^7\text{Be}$ В ЧЕРНОМ МОРЕ ПО РЕЗУЛЬТАТАМ ЧИСЛЕННЫХ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Информация, полученная автором в ходе проведения экспедиционных исследований, носит эпизодический и неоднородный по пространству характер. Поэтому, для исследования пространственно-временной изменчивости структуры поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в Черном море и получения количественных оценок влияния различных факторов на процесс эволюции этого поля, целесообразно привлекать методы математического моделирования.

### 4.1 Валидация результатов численных экспериментов

Валидация результатов моделирования суммарной концентрации  ${}^7\text{Be}$  в морской воде (см. подраздел 2.3) была проведена по материалам двух рейсов НИС «Профессор Водяницкий», проходивших в период с 30 июня по 20 июля 2016 г. (87 рейс) и с 30 сентября по 19 октября 2016 г. (89 рейс), а также по натурным данным, полученным на стационарной океанографической платформе в пос. Кацивели в период с 27 июля по 06 августа 2012 г.

Сопоставление результатов численного эксперимента с данными экспедиционных исследований на НИС «Профессор Водяницкий» показало, что модель воспроизводит пространственно-временную изменчивость поля концентрации радионуклида в Черном море (Рисунок 4.1). Модуль средней относительной величины отклонения рассчитанных значений концентрации от измеренных равен 20% и сопоставим со средней погрешностью определения содержания  ${}^7\text{Be}$  в воде (25%). Фактически, относительная величина отклонения результатов численного эксперимента от данных наблюдений не превосходит среднюю величину погрешности определения концентрации  ${}^7\text{Be}$  в морской воде в 80% случаев.

● Вод. 87 (30 июня - 20 июля 2016 г) ■ Вод. 89 (30 сентября - 19 октября 2016 г)

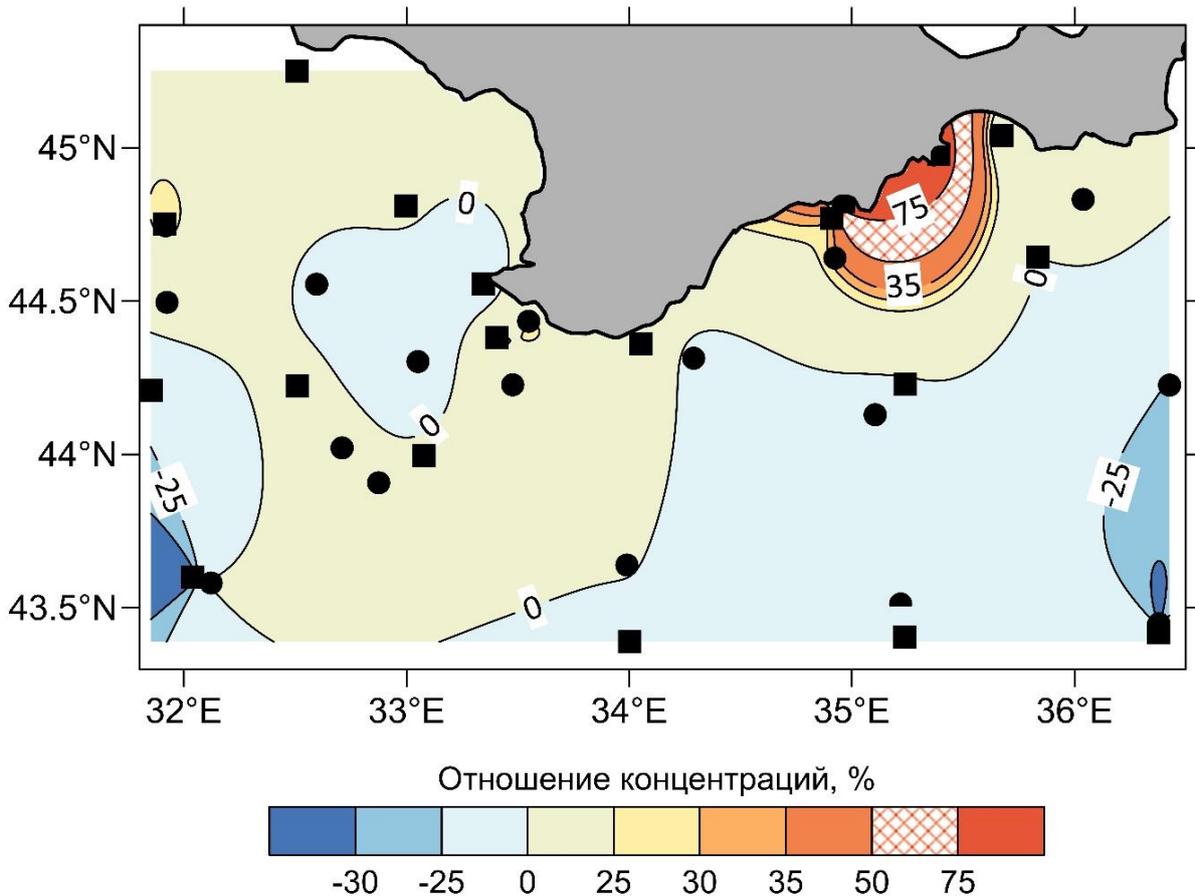


Рисунок 4.1 – Пространственное распределение величин отклонений рассчитанных по модели концентраций  $^7\text{Be}$  от измеренных в ходе 87 и 89 рейсов НИС «Профессор Водяницкий». Положительные величины – оценки концентрации по модели превосходят натурные данные, отрицательные – обратное

Максимальные относительные величины отклонения (~100%) наблюдались на двух прибрежных станциях, расположенных вблизи Феодосии и Судака. Автор полагает, что это связано с отбором проб в штормовых условиях в непосредственной близости к берегу. В таких условиях могут иметь место градиенты концентрации радионуклида, обусловленные пространственной неоднородностью поля концентрации взвеси. В связи с тем, что расчеты проводятся на сетки с шагом 4,8 км, такие особенности являются подсеточными эффектами для данной модели. В пользу этого свидетельствуют результаты

сопоставления данных второго численного эксперимента (см. подраздел 2.3) с материалами наблюдений, полученными на стационарной океанографической платформе (Рисунок 4.2) в летний период в отсутствии штормовых условий. Установлено, что модель воспроизводит временную изменчивость содержания  $^7\text{Be}$  в верхнем квазиоднородном слое моря, а количественные оценки концентрации радионуклида, полученные по модели, согласуются с наблюдениями в 75% случаев. Модуль средней относительной величины отклонения равен 21%, а максимальной – 35%.

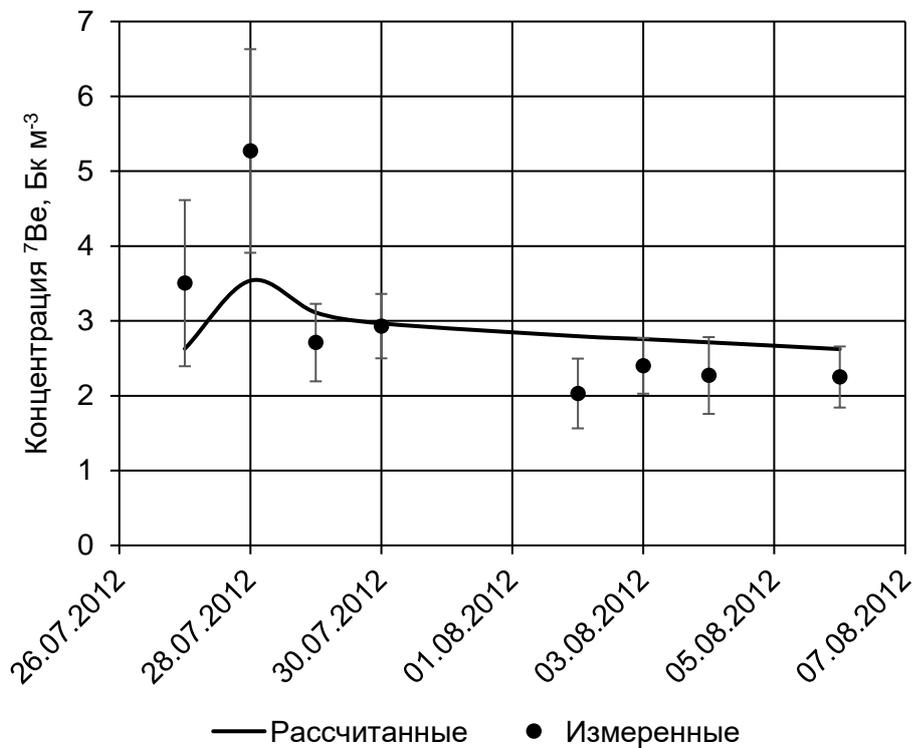


Рисунок 4.2 – Сопоставление натуральных и модельных данных о временной изменчивости концентрации  $^7\text{Be}$  в ВКС

Модель воспроизводит вертикальную структуру поля концентрации  $^7\text{Be}$ : профили концентрации  $^7\text{Be}$ , полученные по результатам численных экспериментов, согласуются с натурными данными (Рисунок 4.3).

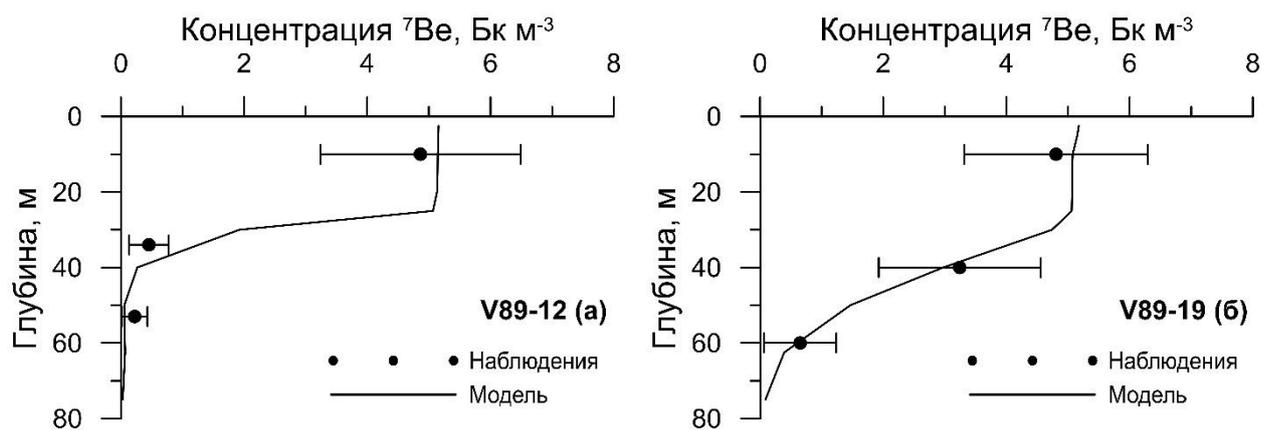


Рисунок 4.3 – Вертикальное распределение концентрации  $^7\text{Be}$  по результатам численных экспериментов и экспедиционных исследований

#### 4.2 Сезонная изменчивость поля концентрации $^7\text{Be}$

Для исследования сезонной изменчивости поля концентрации  $^7\text{Be}$  в верхнем квазиоднородном слое Черного моря использовались результаты второго этапа первого численного эксперимента, соответствующие периоду январь – декабрь 2016 г.

Концентрация  $^7\text{Be}$  в верхнем квазиоднородном слое Черного моря за этот период изменялась по пространству и во времени от 2 до 11  $\text{Bq m}^{-3}$  (Рисунок 4.4). Повышенные величины концентрации были характерны для глубоководной части моря, максимальные величины отмечались в осенний период в восточной части моря. Пониженные величины концентрации были типичны для прибрежных зон, минимальные величины наблюдались в зимний период в северной и западной частях моря. В течении года осредненные за сезон величины концентрации  $^7\text{Be}$  отличались практически в 2 раза.

Полученные результаты хорошо согласуются как с литературными данными, согласно которым концентрация  $^7\text{Be}$  в поверхностном слое вод Мирового океана, изменялась от 1 до 12  $\text{Bq m}^{-3}$  [Silker 1968, 1972a, 1972b; Gosink 1976; Andrews et al., 2008; Nakanishi et al., 2009; Haskell et al., 2015b; Kadko, 2017], так и с данными

экспедиционных исследований, представленными в подразделе 3.1 (от 1,2 до 9,5 Бк м<sup>-3</sup>).

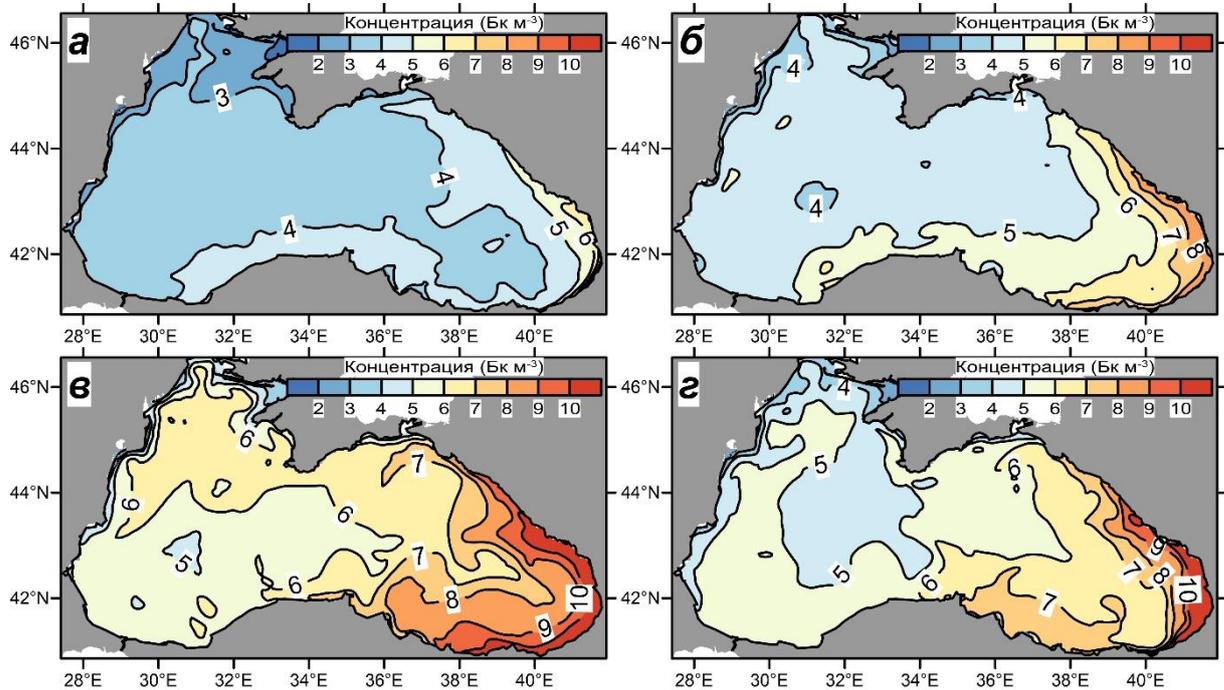


Рисунок 4.4 – Сезонная изменчивость концентрации  ${}^7\text{Be}$  (Бк м<sup>-3</sup>) в верхнем квазиоднородном слое Черного моря в 2016 г.:

*а* – зима, *б* – весна, *в* – лето, *г* – осень

Относительное содержание  ${}^7\text{Be}$  на взвеси за исследуемый период для большей части акватории моря изменялось от 6 до 14% (Рисунок 4.5). В приустьевых районах величины относительного содержания  ${}^7\text{Be}$  на взвеси достигали 27%. Повышенные величины были свойственны для прибрежных районов моря во все сезоны, максимальные величины наблюдались в зимний период в приустьевом районе Дуная. Пониженные величины были характерны для глубоководного района моря во все сезоны года, минимальные величины наблюдались в осенний период в центральной части моря.

Данные об относительном содержании  ${}^7\text{Be}$  на взвеси, как и об абсолютном содержании  ${}^7\text{Be}$  на взвеси, сильно ограничены. Из данных, представленных в работах В. Б. Силкера [Silker et al., 1968; Silker, 1969, 1972a, 1972b, 1977; Young & Silker, 1980] для открытых районов Мирового океана следует, что на взвеси

содержится порядка 6–10%  $^7\text{Be}$  от величины его общего содержания. Согласно материалам экспедиционных исследований (см. подраздел 3.1), относительное содержание  $^7\text{Be}$  на взвеси изменяется в интервале от 7 до 50%. В глубоководной части моря на взвеси содержалось в среднем 10% концентрации  $^7\text{Be}$ .

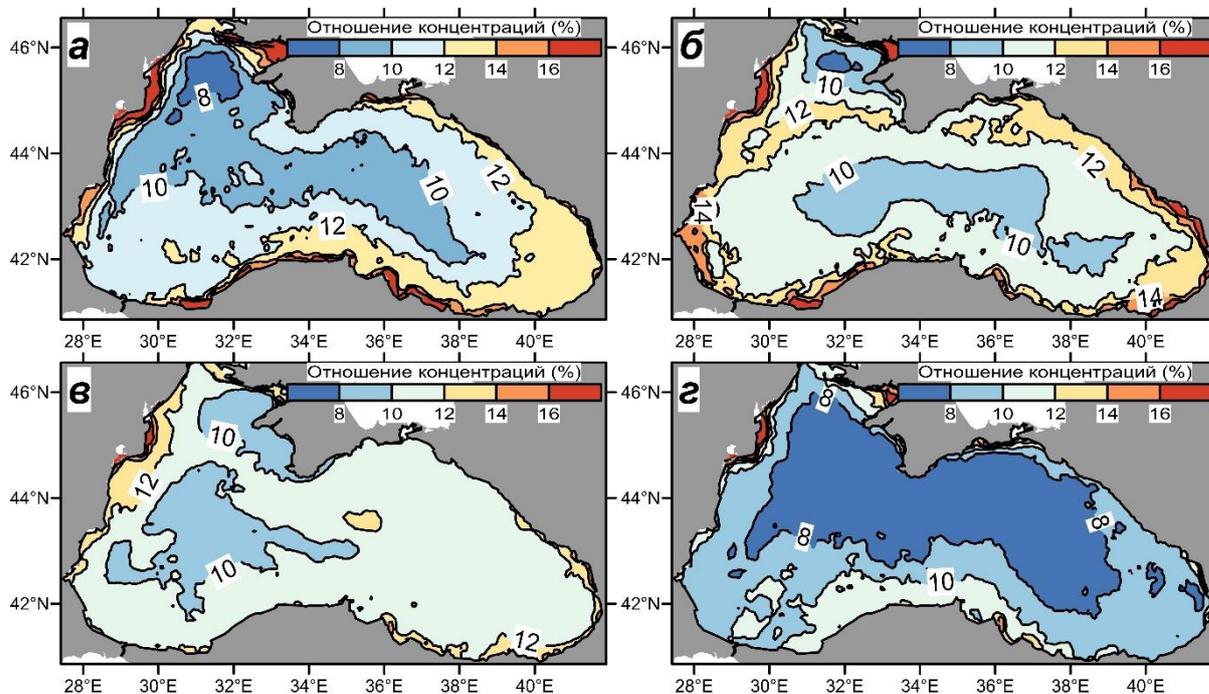


Рисунок 4.5 – Сезонная изменчивость относительного содержания  $^7\text{Be}$  на взвеси (%) в верхнем квазиоднородном слое Черного моря в 2016 г.:

*а* – зима, *б* – весна, *в* – лето, *з* – осень

Массовая концентрация  $^7\text{Be}$  на взвеси за исследуемый период для большей части акватории моря изменялась от 400 до 2100 Бк кг<sup>-1</sup> (Рисунок 4.6). Повышенные величины концентрации были характерны для глубоководной части моря, максимальные величины наблюдались в осенний период в его восточной части. Пониженные величины концентрации были свойственны для прибрежных районов, минимальные величины наблюдались в зимний период в приустьевом районе Дуная.

Полученные результаты хорошо согласуются с натурными данными. Авторы работы [Sommerfeld et al., 1999] проводили исследования содержания  $^7\text{Be}$  на взвеси в приустьевом районе и на шельфе севера Калифорнии. Ими было получено, что

величина концентрации  ${}^7\text{Be}$  на взвеси изменяется от 20 до 534 Бк кг<sup>-1</sup>. Минимум отмечался в устье реки, максимум – на шельфе. Согласно результатам экспедиционных исследований (см. подраздел 3.1), концентрация  ${}^7\text{Be}$  на взвеси изменяется от 200–600 Бк кг<sup>-1</sup> в прибрежном районе, до 900–1600 Бк кг<sup>-1</sup> в глубоководном.

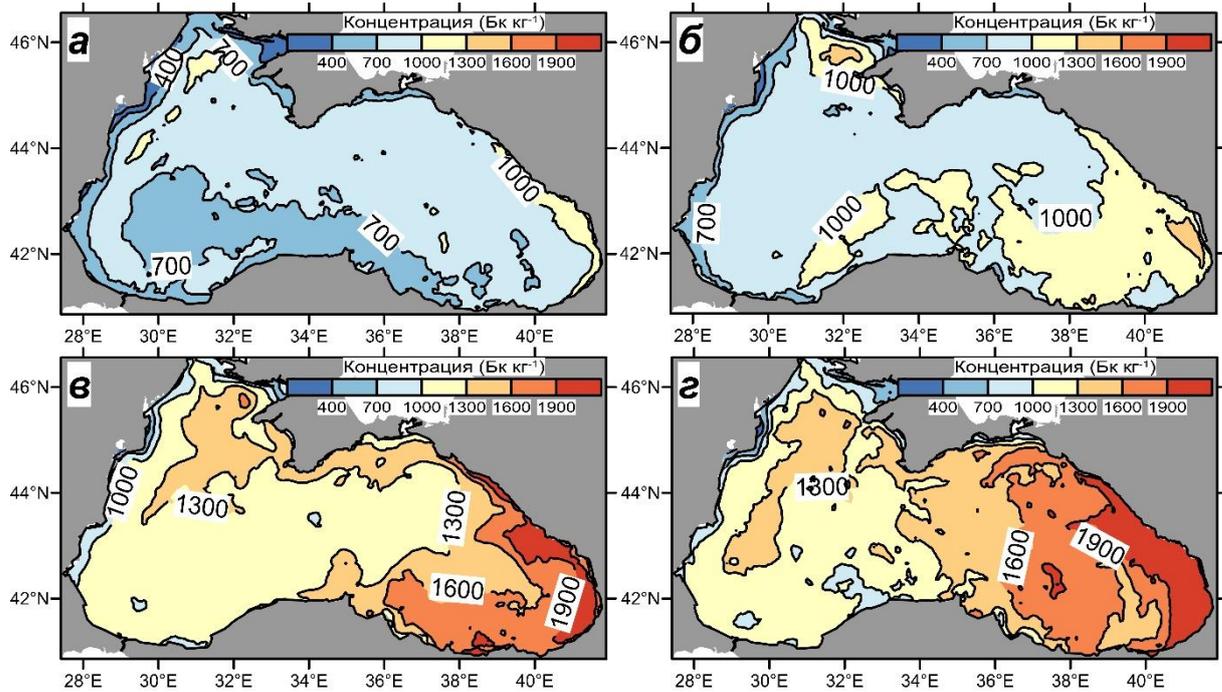


Рисунок 4.6 – Сезонная изменчивость массовой концентрации  ${}^7\text{Be}$  на взвеси (Бк кг<sup>-1</sup>) в верхнем квазиоднородном слое Черного моря в 2016 г.:

*а* – зима, *б* – весна, *в* – лето, *г* – осень

#### 4.3 Анализ факторов формирования поля концентрации ${}^7\text{Be}$ в поверхностном слое вод Черного моря

Пространственно-временная изменчивость поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в ВКС Черного моря происходит под воздействием потока радионуклида из атмосферы на верхнюю границу этого слоя, радиоактивного распада изотопа в слое, его

диффузионного и адвективного переноса в пределах слоя и из него, седиментации на взвеси.

Для исследования пространственной изменчивости поля концентрации  $^7\text{Be}$  в ВКС Черного моря по материалам численных экспериментов были получены поля среднегодового распределения концентрации  $^7\text{Be}$  в этом слое и суммарного за год распределения потока изотопа из атмосферы. Согласно полученным результатам (Рисунки 4.7 и 4.8), наблюдается рост величин концентрации и потока  $^7\text{Be}$  в направлении с северо-запада на юго-восток от  $2,2 \text{ Бк м}^{-3}$  до  $10 \text{ Бк м}^{-3}$  и от  $440 \text{ Бк м}^{-2} \text{ год}^{-1}$  до  $1880 \text{ Бк м}^{-2} \text{ год}^{-1}$  соответственно.

Установлено, наличие статистически достоверной корреляции (коэффициент корреляции  $0,87$ ,  $p < 0,001$ ) между пространственной изменчивостью этих параметров. Такое подобие обусловлено относительно небольшими расстояниями адвективного переноса радионуклида в пределах ВКС (см. подраздел 3.1). Пространственная неоднородность потока  $^7\text{Be}$  из атмосферы и осадков (Рисунок 4.9) также подобны (коэффициент корреляции  $0,92$ ,  $p < 0,001$ ), поскольку вымывание изотопа из атмосферы является доминирующим механизмом его удаления. Поле осадков, представленное на Рисунке 4.9, было получено в результате суммирования соответствующих суточных массивов данных атмосферного реанализа SKIRON [Архив SKIRON].

Отдельно выделяются прибрежные и приустьевые районы, характеризующиеся, как правило, минимальными величинами концентрации  $^7\text{Be}$  в воде ( $2\text{--}3 \text{ Бк м}^{-3}$ ). Такая пространственная изменчивость обусловлена неоднородностью поля взвеси (см. подраздел 3.1), концентрация которой в этих районах может возрасти на порядок по сравнению с глубоководной частью моря (Рисунок 4.10).

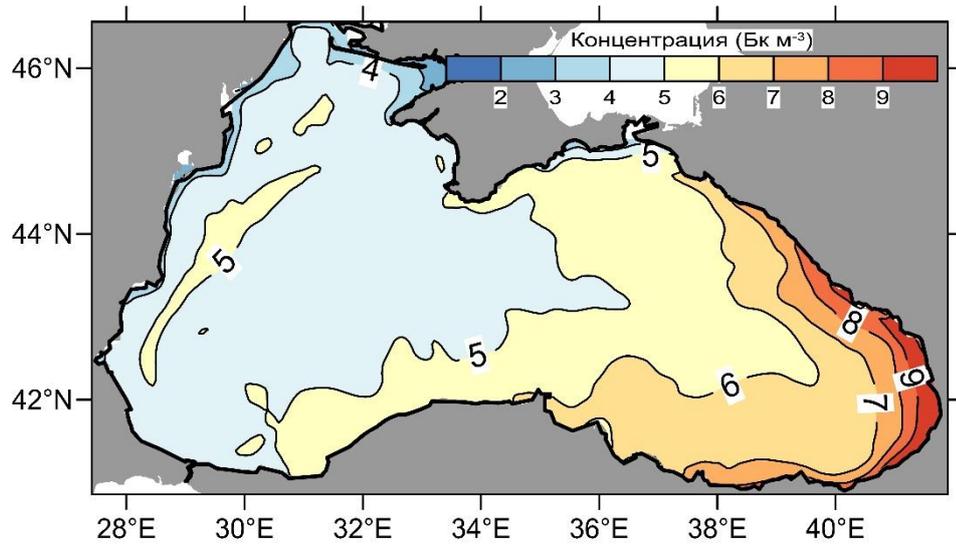


Рисунок 4.7 – Пространственное распределение осредненной за 2016 г. величины концентрации  ${}^7\text{Be}$  в верхнем квазиоднородном слое моря

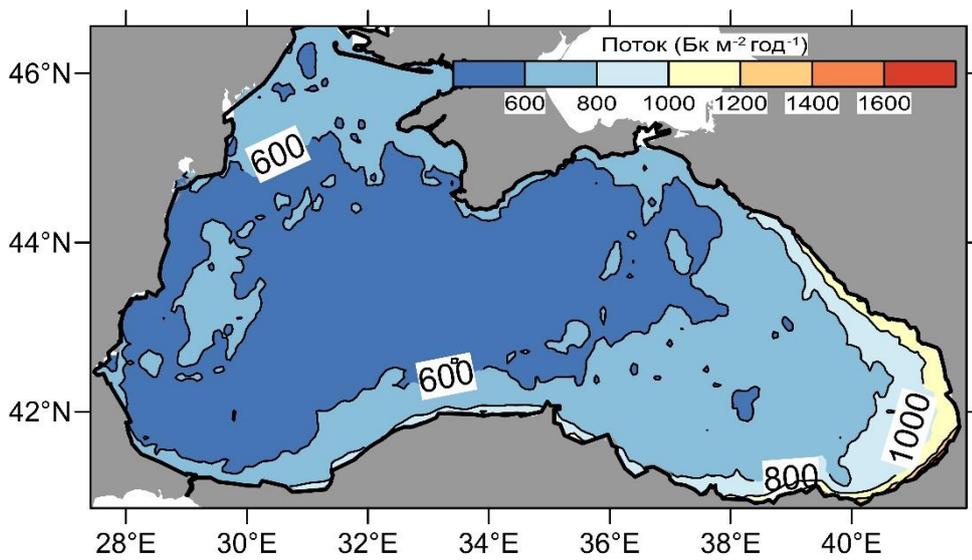


Рисунок 4.8 – Пространственное распределение суммарной за 2016 г. величины потока радионуклида на морскую поверхность

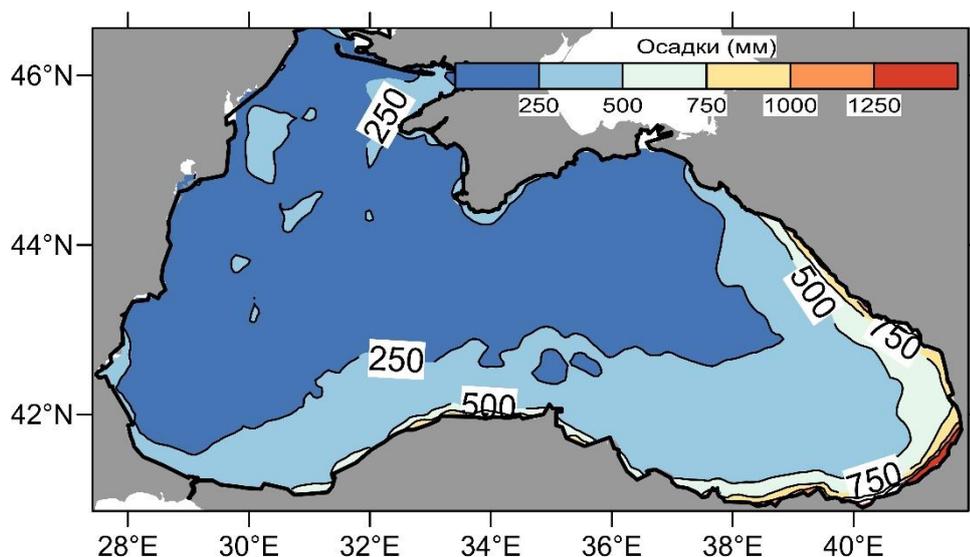


Рисунок 4.9 – Пространственное распределение суммарной за 2016 г. величины осадков

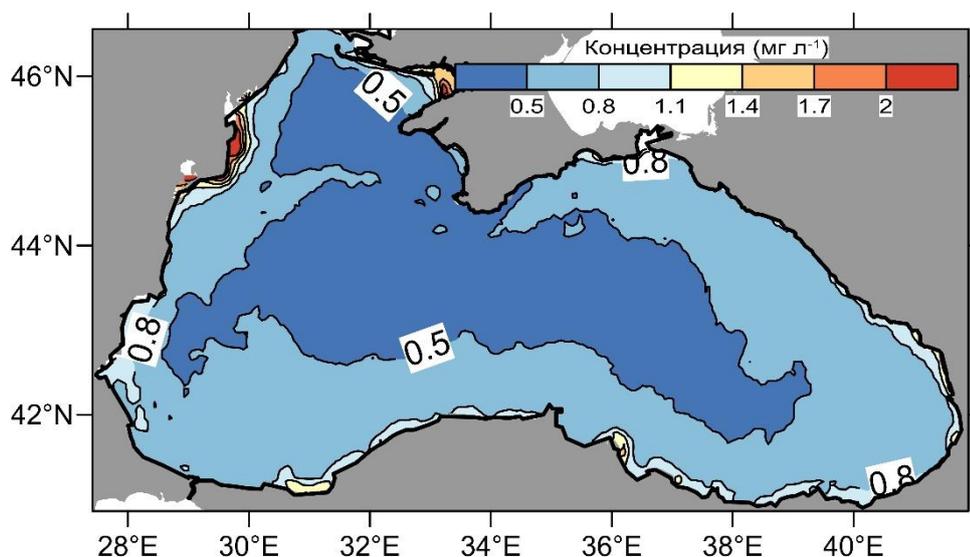


Рисунок 4.10 – Пространственное распределение осредненной за 2016 г. величины концентрации взвеси в поверхностном слое моря

Временная изменчивость поля концентрации  $^{7}\text{Be}$  определяется не только вариациями его потока из атмосферы и концентрации взвеси, поскольку максимумы и минимумы соответствующих параметров не совпадают по времени. Максимум концентрации  $^{7}\text{Be}$  в ВКС моря наблюдается в летний сезон (Рисунок 4.11, *a*), а не в осенний, характеризующийся максимальными величинами

потока радионуклида из атмосферы (Рисунок 4.11, б) и минимальными величинами концентрации взвеси (Рисунок 4.11, к).

По материалам численных экспериментов были получены потоки  ${}^7\text{Be}$  в ВКС и из него в нижележащий слой. Установлено, что 95% радионуклида, поступающего из атмосферы в ВКС, выводится из него в результате радиоактивного распада в самом слое, а также диффузионного переноса и седиментации на взвеси в нижележащие слои.

Таким образом, первый фактор временной изменчивости концентрации  ${}^7\text{Be}$  в ВКС Черного моря – это поток радионуклида из атмосферы на морскую поверхность (Рисунок 4.11, б). Временная изменчивость потока  ${}^7\text{Be}$  зависит нелинейно (см. подраздел 3.2) от концентрации радионуклида в атмосфере (Рисунок 4.11, з) и осадков (Рисунок 4.11, в).

Второй фактор – это глубина залегания границы ВКС (Рисунки 4.11, е и 4.12). Временная изменчивость первого и второго факторов определяют запас радионуклида в ВКС (Рисунок 4.11, з) и величину градиента концентрации  ${}^7\text{Be}$  между ВКС и нижележащим слоем (Рисунок 4.13). Вариация запаса  ${}^7\text{Be}$  и его градиента концентрации определяют вклад радиоактивного распада (Рисунок 4.11, ж) и диффузионного переноса (Рисунок 4.11, д), соответственно, в процесс удаления изотопа из ВКС. Согласно полученным результатам (Таблица 4.1), осредненные за год относительные величины вкладов диффузионного переноса и радиоактивного распада сопоставимы.

Третий фактор – это сорбция и седиментация  ${}^7\text{Be}$  на взвеси (Рисунок 4.11, и). Временная изменчивость этого фактора определяется вариацией концентрации взвешенного вещества (Рисунок 4.11, к) и радионуклида в ВКС (Рисунок 4.11, а).

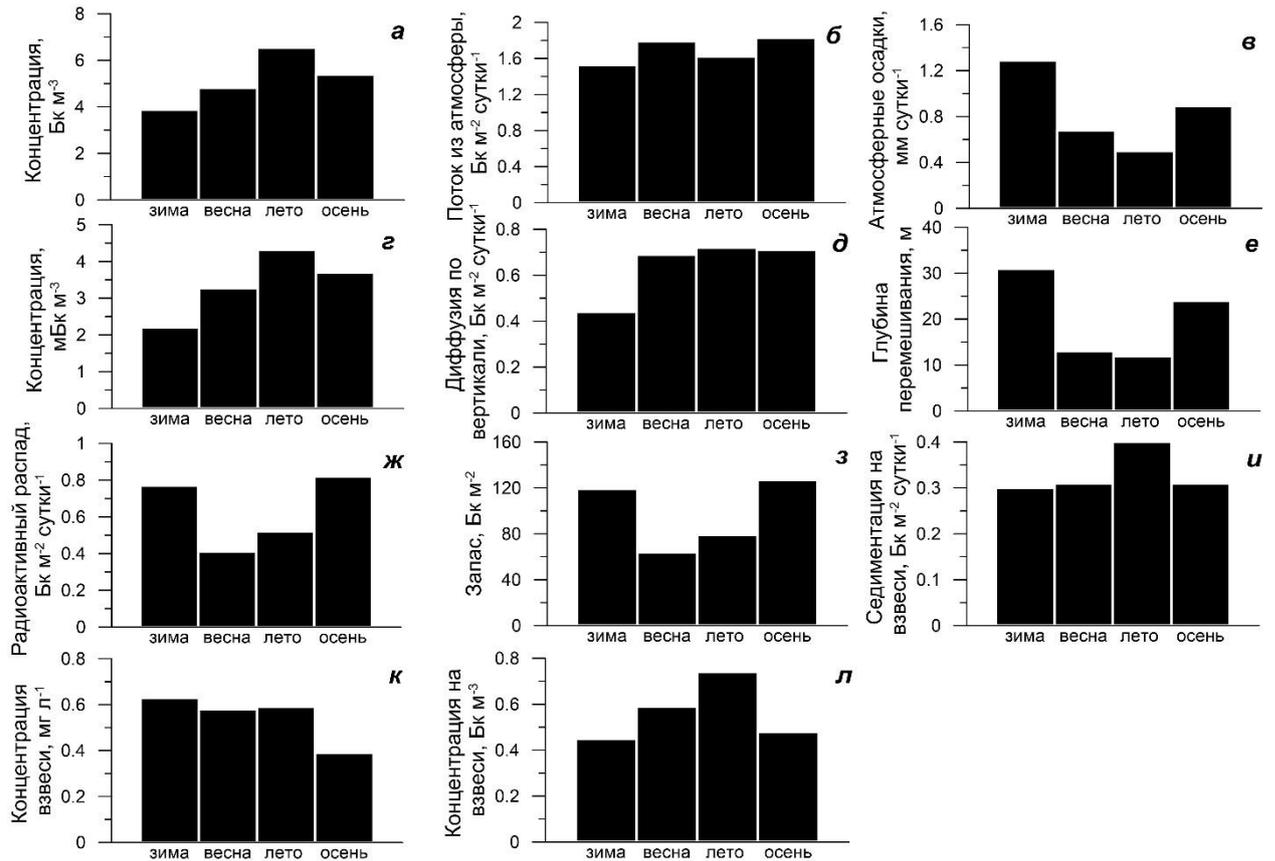


Рисунок 4.11 – Временная изменчивость различных параметров в течении 2016 г.: общей концентрации  ${}^7\text{Be}$  в ВКС (а), потока  ${}^7\text{Be}$  из атмосферы (б), атмосферных осадков (в), концентрации  ${}^7\text{Be}$  в атмосфере (з), диффузионного переноса  ${}^7\text{Be}$  через нижнюю границу ВКС (д), глубины перемешивания (е), радиоактивного распада  ${}^7\text{Be}$  в ВКС (ж), запаса  ${}^7\text{Be}$  в ВКС (з), седиментационного потока  ${}^7\text{Be}$  через нижнюю границу ВКС (и), концентрации взвеси в ВКС (к), концентрации  ${}^7\text{Be}$  на взвеси в ВКС (л)

Рассмотрим влияние выделенных факторов на временную изменчивость поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в ВКС Черного моря в различные сезоны 2016 г.

Зимний сезон характеризуется максимальными глубинами залегания границы ВКС (Рисунки 4.11, е и 4.12) и минимальными за сезон величинами потока  ${}^7\text{Be}$  из атмосферы (Рисунок 4.11, б). С одной стороны, это обуславливает сезонный минимум концентрации радионуклида в ВКС (Рисунок 4.11, а), с другой – приводит к уменьшению градиента концентрации (Рисунок 4.13). Снижение градиента обуславливает уменьшение роли диффузионного переноса в удалении

радионуклида из ВКС (Таблица 4.1). Увеличение глубины залегания границы ВКС способствует росту резидентного времени нахождения  $^7\text{Be}$  в этом слое (см. подраздел 3.1) и, соответственно, вклада радиоактивного распада (Таблица 4.1). В зимний сезон наблюдается максимум концентрации взвеси (Рисунок 4.11, *к*), но из-за минимальных величин общего содержания  $^7\text{Be}$  в воде (Рисунок 4.11, *а*), его концентрация на взвеси снижена (Рисунок 4.11, *л*).

В весенний сезон по сравнению с зимним наблюдается уменьшение глубины перемешивания (Рисунок 4.11), достигается ее годовой минимум (Рисунок 4.12) и увеличение потока  $^7\text{Be}$  из атмосферы (Рисунок 4.11, *б*). Первое приводит к снижению запаса радионуклида в ВКС (Рисунок 4.11, *з*) и, соответственно, вклада радиоактивного распада (Таблица 4.1), второе – к росту его градиента концентрации (Рисунок 4.13) и вклада диффузионного переноса (Таблица 4.1). Повышение вклада седиментационных процессов (Таблица 4.1) связано с ростом концентрации  $^7\text{Be}$  на взвеси (Рисунок 4.11, *л*) вследствие увеличения суммарной концентрации радионуклида в ВКС (Рисунок 4.11, *а*).

В летний сезон по сравнению с весенним наблюдается рост глубины залегания границы ВКС (Рисунок 4.12) и снижение потока  $^7\text{Be}$  из атмосферы (Рисунок 4.11, *б*). Первое приводит к увеличению запаса радионуклида (Рисунок 4.11, *з*) и вклада радиоактивного распада (Таблица 4.1), второе – к уменьшению роли диффузионного переноса (Таблица 4.1). Сезонный максимум концентрации  $^7\text{Be}$  в ВКС является результатом накопления изотопа в этом слое: в период с февраля по июнь поступление изотопа в слой превышает его вынос из него (Рисунок 4.14). Рост суммарной концентрации  $^7\text{Be}$  в слое приводит к росту его концентрации на взвеси (Рисунок 4.11, *л*) и увеличению вклада седиментационных процессов (Таблица 4.1).

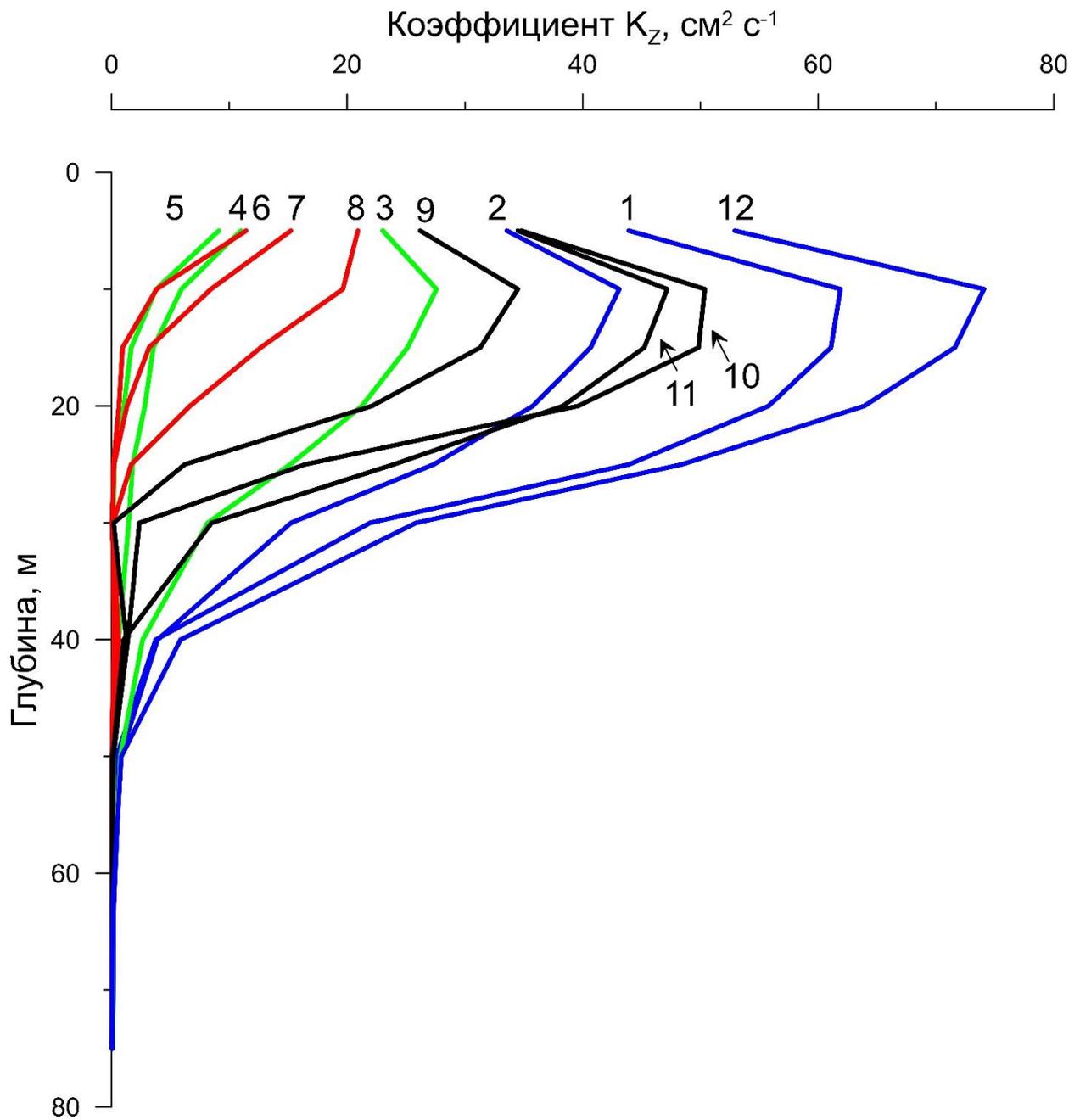


Рисунок 4.12 – Сезонная изменчивость вертикального распределения коэффициента вертикальной турбулентной диффузии ( $K_z$ ), осредненного для всей акватории моря. Цифры 1–12 соответствуют порядковому номеру месяца от начала 2016 г.

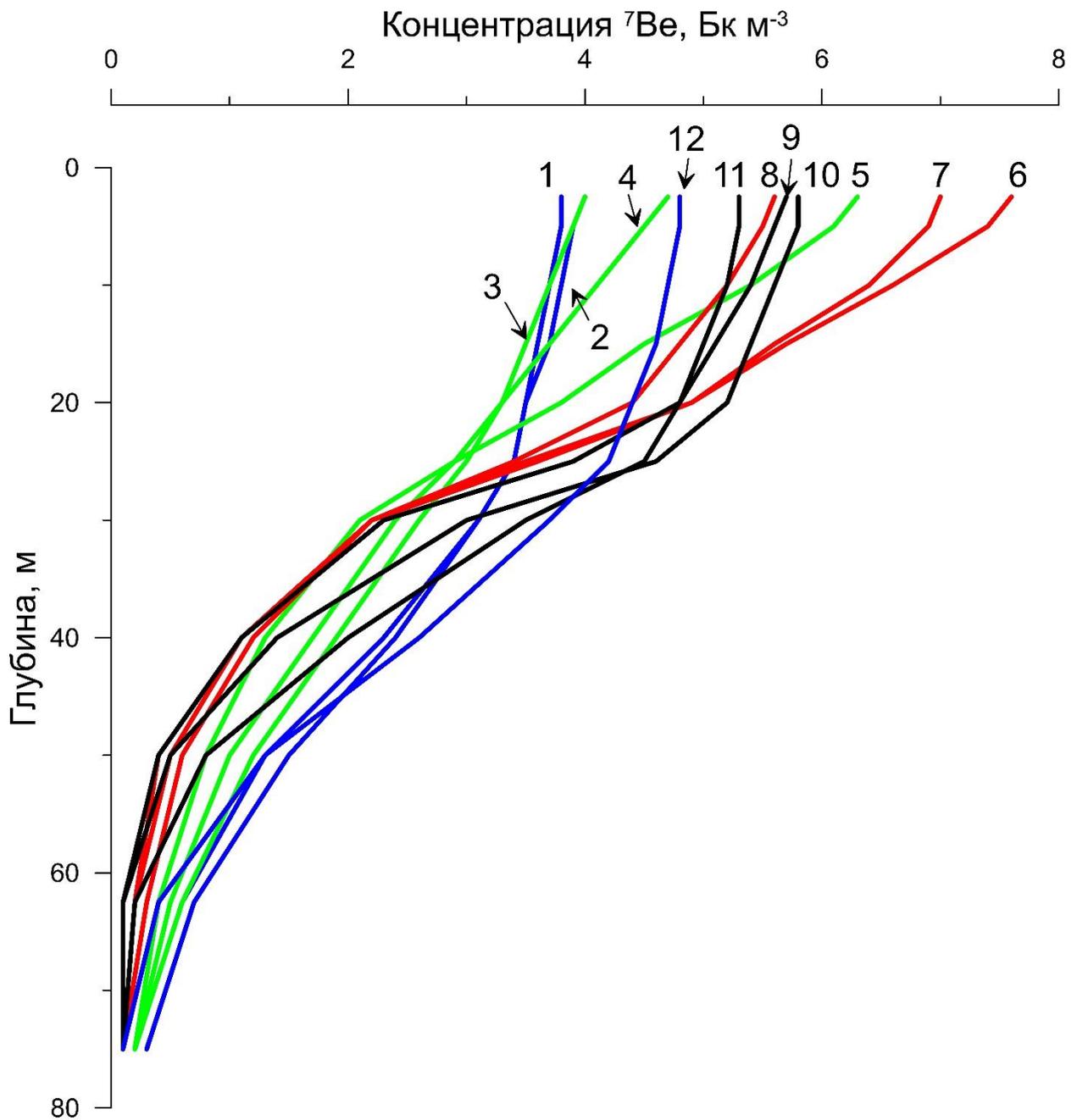


Рисунок 4.13 – Сезонная изменчивость вертикального распределения концентрации  ${}^7\text{Be}$ , осредненной для всей акватории моря. Цифры 1–12 соответствуют порядковому номеру месяца от начала 2016 г.

В осенний сезон по сравнению с летним наблюдается дальнейшее увеличение глубины залегания границы ВКС (Рисунок 4.12) и повышение величины потока  ${}^7\text{Be}$  из атмосферы (Рисунок 4.11, б). Это приводит к росту запаса радионуклида в слое (Рисунок 4.11, з) и вклада радиоактивного распада (Таблица 4.1), а также к

снижению вклада диффузионных процессов (Таблица 4.1). Суммарная концентрация  $^7\text{Be}$  по сравнению с летним сезоном уменьшается (Рисунок 4.11, а). Сезонный минимум концентрации взвеси (Рисунок 4.11, к) и пониженные величины концентрации  $^7\text{Be}$  на взвеси (Рисунок 4.11, л) обуславливают сезонный минимум относительного вклада седиментационного процесса (Таблица 4.1).

Таблица 4.1 – Сезонная изменчивость вклада различных факторов в удаление  $^7\text{Be}$  из ВКС моря

Факторы	Вклад, %				
	Зима	Весна	Лето	Осень	Год
Радиоактивный распад	51	29	32	44	39
Диффузия по вертикали	29	49	44	39	40
Седиментация на взвеси	20	22	24	17	21

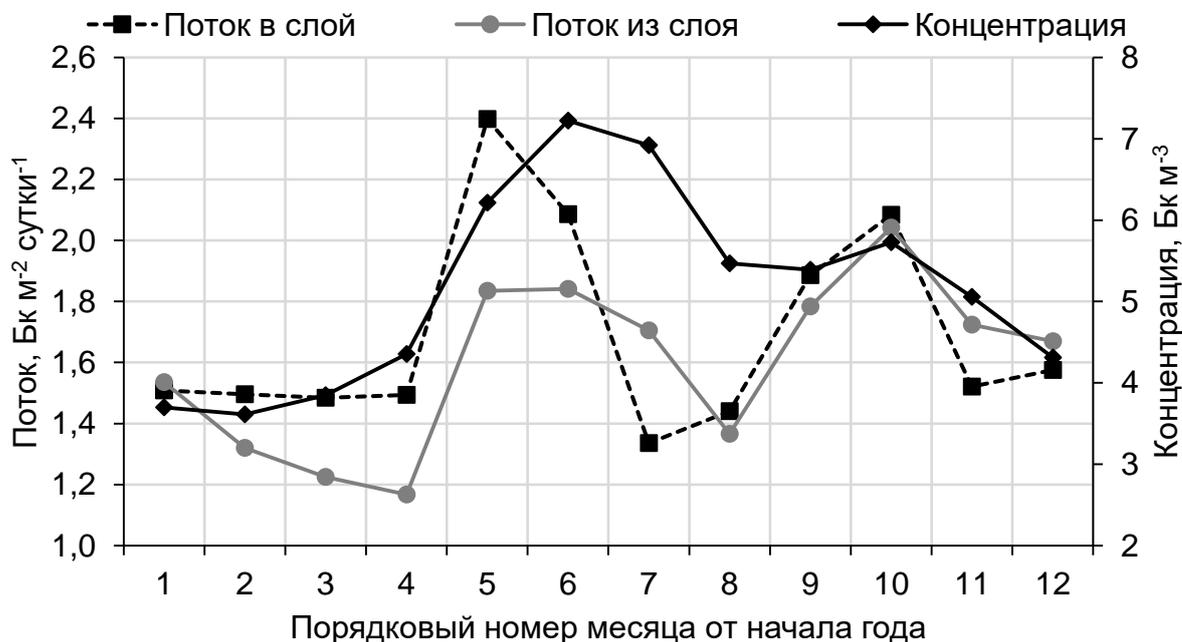


Рисунок 4.14 – Сезонная изменчивость среднесуточной величины потока  $^7\text{Be}$  в ВКС и из него, а также его концентрации в слое в 2016 г.

## Выводы к разделу 4

Проведены численные эксперименты по формированию и эволюции поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в водах Черного моря для периода 2011–2012 и 2015–2016 гг. Валидация результатов численных экспериментов показала, что модель воспроизводит пространственно-временную изменчивость поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в водах Черного моря: полученные оценки содержания радионуклида согласуются с натурными данными в пределах погрешности определения его концентрации в пробах морской воды.

Проведены исследования сезонной изменчивости структуры поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в верхнем квазиоднородном слое Черного моря по результатам численных экспериментов. Установлено, что концентрация  ${}^7\text{Be}$  в этом слое в период с января по декабрь 2016 г. изменялась по пространству и во времени от 2 до 11 Бк м<sup>-3</sup>. Повышенные величины концентрации были характерны для глубоководной части моря, пониженные – для прибрежной. Максимальные величины отмечались в летний период в юго-восточной части моря, минимальные – в зимний период в северо-западной. Величина относительного содержания  ${}^7\text{Be}$  на взвеси изменялась от 6 до 27%. Повышенные величины были свойственны для прибрежной зоны моря, пониженные – для глубоководной. Максимальные величины наблюдались в зимний период в приустьевом районе Дуная, минимальные – в осенний период в центральной части моря. Концентрация  ${}^7\text{Be}$  на взвеси изменялась от 400 до 2100 Бк кг<sup>-1</sup>. Повышенные величины концентрации были типичны для глубоководной части моря, пониженные – для прибрежной. Максимальные величины имели место в осенний период в восточной части моря, минимальные – в зимний период в приустьевом районе Дуная.

Выполнен анализ влияния различных факторов на пространственно-временную изменчивость поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в поверхностном слое вод Черного моря. Установлено, что эта изменчивость обусловлена, в первую очередь, вариациями потока  ${}^7\text{Be}$  из атмосферы, глубиной залегания границы верхнего

квазиоднородного слоя и концентрацией взвеси. Изменение глубины перемешивания и потока  ${}^7\text{Be}$  на морскую поверхность определяют, доминирующий механизм удаления радионуклида из верхнего квазиоднородного слоя: радиоактивный распад или диффузионный перенос. Повышенные величины концентрации  ${}^7\text{Be}$  в морской воде связаны с повышенными величинами потока изотопа из атмосферы, пониженными величинами концентрации взвеси и уменьшением глубины залегания границы верхнего квазиоднородного слоя.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Диссертационная работа посвящена комплексному изучению процесса формирования и эволюции поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в поверхностном слое вод Черного моря. Основные научные результаты представленной работы могут быть сформулированы следующим образом:

1. впервые получены натурные данные о пространственно-временной изменчивости концентрации  ${}^7\text{Be}$  в водах Черного моря. Установлено, что общее содержание  ${}^7\text{Be}$  в верхнем квазиоднородном слое вод Черного моря изменяется по пространству и во времени от 1,2 до 9,5 Бк м<sup>-3</sup>, средняя величина составляет  $(5,7 \pm 1,9)$  Бк м<sup>-3</sup>. Максимальные величины концентрации  ${}^7\text{Be}$  отмечаются в глубоководной части моря, минимальные – в прибрежной. Резидентное время нахождения радионуклида в верхнем квазиоднородном слое изменяется от 6 до 155 суток. Изотоп обнаруживается в тоще воды до глубин 60–70 м;

2. установлено, что в водах Черного моря  ${}^7\text{Be}$  распределен между растворенной и адсорбированной на взвеси формами. Среднее содержание на взвеси составляет  $(10 \pm 4)$  % от величины общего содержания радионуклида. Средняя величина коэффициента распределения ( $K_d$ )  ${}^7\text{Be}$  между растворенной и взвешенной формами равняется  $(1,7 \pm 0,3) \cdot 10^5$  л кг<sup>-1</sup>. Установлена функциональная зависимость между величиной коэффициента  $K_d$  и концентраций взвеси для вод Черного моря;

3. получены современные данные о временной изменчивости содержания  ${}^7\text{Be}$  в приземной атмосфере и в атмосферных выпадениях в Черноморском регионе в период с 2011 по 2016 гг. По этим данным, а также по материалам, представленным в доступной литературе, предложена параметризация, позволяющая рассчитывать поток  ${}^7\text{Be}$  с осадками на подстилающую поверхность. Проведены оценки поступления  ${}^7\text{Be}$  на поверхность Черного моря за периоды 2011–2012 и 2015–2016 гг.;

4. установлена функциональная зависимость между величинами общего содержания взвешенного вещества и обратного рассеяния взвесью для поверхностного слоя вод Черного моря. Рассчитаны поля концентрации взвеси в акватории Черного моря за периоды 2011–2012 и 2015–2016 гг.;

5. используя термогидродинамическую модель циркуляции Черного моря (модель МГИ), дополненную блоком распространения пассивной примеси, проведены численные эксперименты по формированию и эволюции поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в водах Черного моря для периодов 2011–2012 и 2015–2016 гг. Валидация результатов численных экспериментов проводилась по материалам экспедиционных исследований. Установлено, что модель воспроизводит пространственно-временную изменчивость поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в водах Черного моря в исследуемый период. Полученные оценки содержания радионуклида согласуются с натурными данными в пределах погрешности определения его концентрации в пробах морской воды;

6. по материалам численных экспериментов описана и проанализирована сезонная изменчивость концентрации  ${}^7\text{Be}$  в верхнем квазиоднородном слое Черного моря в период с января по декабрь 2016 г. Установлено, что концентрация  ${}^7\text{Be}$  изменялась по пространству и во времени от 2 до 11 Бк м<sup>-3</sup>, относительное содержание радионуклида на взвеси и его концентрации на взвеси – от 6 до 27% и от 400 до 2100 Бк кг<sup>-1</sup> соответственно. Повышенные величины концентрации  ${}^7\text{Be}$  были характерны для глубоководной части моря, пониженные – для прибрежной. Максимальные величины отмечались в летний период в юго-восточной части моря, минимальные – в зимний период в северно-западной;

7. выполнен анализ влияния различных факторов на пространственно-временную изменчивость поля концентрации  ${}^7\text{Be}$  в поверхностном слое вод Черного моря. Установлено, что эта изменчивость обусловлена вариациями потока  ${}^7\text{Be}$  из атмосферы, глубины залегания границы верхнего квазиоднородного слоя и концентрации взвеси. Временные изменчивости глубины перемешивания и потока  ${}^7\text{Be}$  на морскую поверхность определяют доминирующий механизм удаления

радионуклида из верхнего квазиоднородного слоя – радиоактивный распад или диффузионный перенос. Повышенные величины концентрации  ${}^7\text{Be}$  в морской воде связаны с повышенными величинами потока изотопа из атмосферы, пониженными величинами концентрации взвеси и уменьшением глубины залегания границы верхнего квазиоднородного слоя.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

Архив ARGO. – URL: <https://www.nodc.noaa.gov/argo/> (дата обращения 22.11.2018).

Архив CTBTO. – URL: <https://www.ctbto.org> (дата обращения 14.05.2018).

Архив Giovanni. – URL: <https://giovanni.gsfc.nasa.gov> (дата обращения 10.04.2018).

Архив MODIS. – URL: <https://modis.gsfc.nasa.gov> (дата обращения 10.04.2018).

Архив NCDC. – URL: <http://www.ncdc.noaa.gov> (дата обращения 14.03.2016).

Архив REM. – URL: <http://rem.jrc.ec.europa.eu> (дата обращения 14.05.2018).

Архив Silso. – URL: <http://www.sidc.be/silso/datafiles> (дата обращения 10.04.2018).

Архив SKIRON. – URL: <http://forecast.uoa.gr/forecastnewinfo.php> (дата обращения 20.02.2017).

Багаев А. В. Трехмерная гидрофизическая модель транспорта и трансформации антропогенного стойкого хлорорганического загрязнения на шельфе Черного моря / Дисс. на соиск. уч. ст. канд. физ.-мат. наук. – Севастополь. – 2012. – 147 с.

Багаев, А. В. Сопоставление результатов моделирования термохалинных полей Черного моря с данными буев-профилемеров ARGO / А. В. Багаев, С. Г. Демьшев, Г. К. Коротаев [и др.] // Экологическая безопасность прибрежной и шельфовой зон и комплексное использование ресурсов шельфа. – 2011. – № 24. – С. 78–90.

Арбузова, А. П. Временная изменчивость концентрации  $^7\text{Be}$  в приземной атмосфере и сухих выпадениях в севастопольском регионе / А. П. Арбузова, Г. Ф. Батраков, Т. М. Иванова, Д. А. Кременчуцкий, В. В. Семёнов, Т. В. Чудиновских // Системы контроля окружающей среды. – 2010. – № 14. – С. 173–181.

Батраков, Г. Ф. Исследование роли атмосферных аэрозолей в формировании полей природной и техногенной радиоактивности Черного моря / Г. Ф. Батраков, Т. В. Чудиновских, Т. М. Иванова, А. П. Арбузова, Д. А. Кременчуцкий, В. В. Семенов // Устойчивость и эволюция океанологических характеристик экосистемы Черного моря / под. ред. В.Н. Еремеев, С.К. Коновалов. – Севастополь: ЭКОСИ–Гидрофизика. – 2012. – Раздел 2.5. – С. 160–187.

Батраков, Г. Ф. Временная изменчивость потока бериллия-7 на подстилающую поверхность / Г. Ф. Батраков, Д. А. Кременчуцкий // Тезисы научно-технической конференции «Системы контроля окружающей среды-2017». – Севастополь: РИО ИПТС, 2017. – С. 78.

Виноградов, А. С. Вертикальная диффузия в океане космогенных изотопов / А. С. Виноградов // Океанология. – 1978. – № 1 (18). – С. 50–57.

Гедеонов, Л. И. Методики определения цезия-137 в морской воде / Л. И. Гедеонов, В. Н. Крылов, А. В. Степанов. – Л.: Радиевый ин-т им. В.Г. Хлопина, 1978. – 14 с.

Демышев, С. Г. Моделирование последствий возможного захоронения токсичных веществ в глубоководной зоне Черного моря / С. Г. Демышев, А. С. Запевалов, Т. В. Чудиновских [и др.] // Метеорология и гидрология. – 2003. – № 3. – С. 64–74.

Демышев, С. Г. Эволюции поля концентрации долгоживущих радионуклидов в Черном море после прохождения чернобыльского облака / С.Г. Демышев, А.С. Запевалов, А.И. Кубряков [и др.] // Метеорология и гидрология. – 2001. – № 10. – С. 49–61.

Демышев, С. Г. Численная энергосбалансированная модель бароклинных течений океана на сетке С / С. Г. Демышев, Г. К. Коротаев // Численные модели и результаты калибровочных расчетов течений в Атлантическом океане. - М.: ИВМ РАН, 1992. – С. 163–231.

Демышев, С. Г. Численное моделирование сезонного хода синоптической изменчивости в Черном море / С. Г. Демышев, Г. К. Коротаев // Известия РАН. Физика атмосферы и океана. – 1996. – № 1 (32). – С. 108–116.

Демышев, С. Г. Исследование чувствительности параметризации Меллора – Ямады к выбору конечно-разностных аналогов в численной трехмерной модели оперативного прогноза течений в Черном море / С. Г. Демышев // Морской гидрофизический журнал. – 2011. – № 3. – С. 66–76.

Демышев, С. Г. Численная модель оперативного прогноза течений в Черном море / С. Г. Демышев // Известия РАН. Физика атмосферы и океана. – 2012. – № 1 (48). – С. 137–149.

Демышев, С. Г. Моделирование возможных сценариев распространения фракций нефтяных углеводородов в результате аварийных выбросов на шельфе Черного моря / С. Г. Демышев, С. В. Довгая, О. А. Дымова // Системы контроля окружающей среды. – 2008. – С. 156–158.

Дорофеев, В. Л. Анализ изменчивости гидрофизических полей Черного моря в период 1993 – 2012 годов на основе результатов выполненного реанализа / В. Л. Дорофеев, Л. И. Сухих // Морской гидрофизический журнал. – 2016. – № 1. – С. 33–48.

Дымова, О. А. Моделирование мезо- и субмезомасштабных динамических процессов в прибрежных зонах Черного моря / О. А. Дымова // Труды Карельского научного центра РАН. – 2017. – № 8. – С. 21–30.

Дымова, О. А. Моделирование распространения пассивных загрязняющих примесей в Черном море для задач экологического мониторинга / О. А. Дымова, Д. А. Кременчуцкий // Материалы I Международного экологического форума в Крыму «Крым – эколого-экономический регион. Пространство ноосферного развития» – Севастополь: Филиал МГУ имени М.В. Ломоносова в г. Севастополе, 2017. – С. 165–169.

Дымова, О. А. Моделирование летнего режима глубоководной циркуляции Черного моря на примере 2013 г. / О. А. Дымова, Н. А. Миклашевская,

Н. В. Маркова // Физическое и математическое моделирование процессов в геосредах. – 2018. – С. 140–141.

Копелевич, О. В. Биооптические характеристики морей, омывающих берега западной половины России, по данным спутниковых сканеров цвета 1998-2017 гг. / О. В. Копелевич, И. В. Салинг, С. В. Вазюля [и др.] // М.: ООО «ВАШ ФОРМАТ», 2018. – 140 с.

Котеров, В. Н. Моделирование переноса взвешенных веществ на океаническом шельфе. Эффективная гидравлическая крупность полидисперсной взвеси / В. Н. Котеров, Ю. С. Юрезанская // Журнал вычислительной математики и математической физики – 2009. – № 7 (49). – С. 1306–1318.

Коновалов, Б. В. Спектральный анализ морской взвеси – альтернатива традиционным методам её определения при экологическом мониторинге / Б. В. Коновалов, М. Д. Кравчишина, Н. А. Беляев [и др.]. // Сборник трудов XII международной конференции «Экосистемы, организмы, инновации». – М: МГУ, 2010. – № 16. – С. 17.

Кременчуцкий, Д. А. Пространственно-временная изменчивость поступления бериллия-7 ( $^7\text{Be}$ ) на поверхность Черного моря / Д. А. Кременчуцкий, С. К. Коновалов, Г. Ф. Батраков, С. В. Станичный // Материалы научной конференции с международным участием «Современные проблемы гидрохимии и мониторинга качества поверхностных вод». – Ростов-на-Дону, 2015. – № 2. – С. 247–251.

Кременчуцкий, Д. А. Временная изменчивость содержания бериллия-7 ( $^7\text{Be}$ ) в Черном море по результатам численных экспериментов / Д. А. Кременчуцкий, О. А. Дымова, Н. А. Евстигнеева, Г. Ф. Батраков // Материалы научно-практической конференции с международным участием «Экологическая, промышленная и энергетическая безопасность». – Севастополь, 2017. – С. 694–697.

Кременчуцкий, Д. А. Исследование полей концентрации радионуклидов в Черном море методами численного моделирования на примере бериллия-7 ( $^7\text{Be}$ ) / Д. А. Кременчуцкий, О. А. Дымова, Г. Ф. Батраков [и др.] // Тезисы докладов

научной конференции «Мировой океан: модели, данные и оперативная океанология. – Севастополь: ФГБУН МГИ, 2016. – С. 171.

Кременчуцкий, Д. А. Определение концентрации взвешенного вещества в Черном море по данным спутника MODIS / Д. А. Кременчуцкий, А. А. Кубряков, П. О. Завьялов [и др.] // Экологическая безопасность прибрежной и шельфовой зон моря. – 2014. – № 29. – С. 5–9.

Кременчуцкий, Д. А. Факторы временной изменчивости концентрации бериллия-7 в Черном море / Д. А. Кременчуцкий, О. А. Дымова, Г. Ф. Батраков, С. К. Коновалов // Сборник тезисов IX Российской конференции с международным участием «Радиохимия 2018» – Санкт-Петербург, 2018. – С. 225.

Кременчуцкий, Д. А.  $^7\text{Be}$  в шельфовой зоне вод Черного моря: результаты измерений / Д. А. Кременчуцкий // Системы контроля окружающей среды. – 2012b. – № 18. – С. 149–152.

Кременчуцкий, Д. А. Внутригодовые изменения потока  $^7\text{Be}$  с атмосферными выпадениями в севастопольском регионе / Д. А. Кременчуцкий // Материалы Международного молодежного научного форума «ЛОМОНОСОВ-2012». [Электронный ресурс] – М.: МАКС Пресс, 2012с. – Электрон. опт. диск (CD-ROM).

Кременчуцкий, Д. А. Оценка потока  $^7\text{Be}$  с влажными атмосферными выпадениями / Д. А. Кременчуцкий // Системы контроля окружающей среды. – 2012a. – № 17. – С.148–152.

Кременчуцкий, Д. А. Пространственно-временная изменчивость поля концентрации бериллия-7 ( $^7\text{Be}$ ) в Черном море по результатам численных экспериментов / Д. А. Кременчуцкий // Тезисы докладов симпозиума «Чернобыль:30 лет спустя» и международной научной конференции студентов, аспирантов и молодых ученых «Ломоносов-2016» Подсекция радиохимия и радиоэкология. – М: МГУ, 2016. – С. 47.

Кременчуцкий, Д. А. Пространственно-временная изменчивость содержания  $^7\text{Be}$  в шельфовой зоне Черного моря: результаты измерений / Д. А. Кременчуцкий

// Збірник наукових праць Всеукраїнської конференції з міжнародною участю. – К.: Обрії, 2012d. – № 8. – С. 245–248.

Кременчуцкий, Д. А. Распределение бериллия-7 ( $^7\text{Be}$ ) между взвешенным веществом и морской водой в шельфовой зоне Черного моря / Д. А. Кременчуцкий // Экологическая безопасность прибрежной и шельфовой зон и комплексное использование ресурсов шельфа. – 2013. – № 27. – С. 306–311.

Кременчуцкий, Д. А. Временная изменчивость концентрации бериллия-7 ( $^7\text{Be}$ ) в атмосфере г. Севастополь за период 2011–2016 гг. / Д. А. Кременчуцкий, Г. Ф. Батраков // Тезисы докладов XXI Всероссийской школы-конференции молодых ученых / Геофизическая обсерватория «Борок» – филиал Института физики Земли им. О.Ю. Шмидта – Ярославль: Филигрань, 2017а. – С. 17.

Кременчуцкий, Д. А. Временная изменчивость поступления бериллия-7 ( $^7\text{Be}$ ) на подстилающую поверхность в Севастополе / Д. А. Кременчуцкий, Г. Ф. Батраков // Экологическая безопасность прибрежной и шельфовой зон моря. – 2016. – № 3. – С. 95–98.

Кременчуцкий, Д. А. Пространственная изменчивость содержания бериллия-7 в морской воде по данным 89 рейса Нис «Проф. Водяницкий» / Д. А. Кременчуцкий, Г. Ф. Батраков // Тезисы научно-технической конференции «Системы контроля окружающей среды-2017». – Севастополь, 06–09 ноября 2017 г. – Севастополь: РИО ИПТС, 2017б. – С. 77.

Кременчуцкий, Д. А.  $^7\text{Be}$  в прибрежной зоне Черного моря / Д. А. Кременчуцкий, Г. Ф. Батраков, В. В. Семенов // Системы контроля окружающей среды. – Севастополь: ЭКОСИ-Гидрофизика, 2011. – № 16. – С. 251–257.

Кременчуцкий, Д. А. Формування поля  $^7\text{Be}$  в поверхневому шарі Чорного моря: результати чисельних експериментів [Формирование поля  $^7\text{Be}$  в поверхностном слое Черного моря: результаты численных экспериментов] / Д. А. Кременчуцкий, О. А. Дымова // Програма і матеріали IV науково-практичної

конференції «Електроніка та інформаційні технології». – Л.: Видавничий центр Львівського національного університету імені Івана Франка, 2012. – С. 56–59.

Кременчуцкий, Д. А. Исследование полей концентрации радионуклидов в Черном море методами численного моделирования на примере бериллия-7 ( $^7\text{Be}$ ) / Д. А. Кременчуцкий, О. А. Дымова, Г. Ф. Батраков // Экологическая безопасность прибрежной и шельфовой зон моря. – 2017. – № 2. – С. 37–43.

Кременчуцкий, Д. А. Региональный алгоритм для оценки поступления бериллия-7( $^7\text{Be}$ ) с атмосферными осадками / Д. А. Кременчуцкий, С. К. Коновалов, Г. Ф. Батраков // Материалы международной научной конференции студентов, аспирантов и молодых ученых «Ломоносов-2015». – Севастополь: ООО «Экспресс-печать», 2015. – С. 45.

Лапицкий, А. В. Радиохимия / А. В. Лапицкий, А. Н. Несменов / под ред. В. И. Спицына. – М: МГУ, 1952. – 250 с.

Мамаев, О. И. Океанографический анализ в системе а-S-T-p / под ред. О. И. Мамаева. – М: МГУ, 1963. – 228 с.

Махонько, К. П. Наставления гидрометеорологическим станциям и постам. Вып.12. Наблюдения за радиоактивным загрязнением природной среды / ред. К. П. Махонько. – Л: Гидрометеиздат, 1982. – 61 с.

Попов, Н. И. К вопросу о сорбционной емкости фракции океанической воды / Н. И. Попов // Формы элементов и радионуклидов в морской воде. – М: Наука, 1974. – С. 39–46.

РД 52.18.826 – 2015. Наставление гидрометеорологическим станциям и постам Выпуск 12 Наблюдения за радиоактивным загрязнением компонентов природной среды. – М: ФГБУ "НПО "Тайфун", 2015. – 102 с.

Семенченко, Б. А. Физическая метеорология: учебник / Б. А. Семенченко. – М: Аспект Пресс, 2002. – 417 с.

Симонов, А. И. Черное море. Гидрометеорологические условия / А. И. Симонов, Э. Н. Альтман // Гидрология и гидрохимия морей СССР / под ред. А. И. Симонов, Э. Н. Альтман. – СПб: Гидрометеиздат, 1991. – № 1 (4). – 430 с.

Стен, Дж. Р. Бериллий / Дж. Р. Стен / под ред. Д. Уайта и Дж. Берка. – М: ИЛ, 1960. – 296 с.

Сухих, Л. И. Влияние параметризации вертикального турбулентного обмена на результаты реанализа гидрофизических полей Черного моря / Л. И. Сухих, В. Л. Дорофеев // Морской гидрофизический журнал. – 2018. – № 4 (34). – С. 283–301.

Франк-Каменецкий, Д. А. Диффузия и теплопередача в химической кинетике / Д. А. Франк-Каменецкий. – М: Наука, 1987. – 504 с.

Халиулин, А. Х. Банк океанографических данных Морского гидрофизического института: информационные ресурсы для поддержки исследований прибрежной зоны Черного моря / А. Х. Халиулин, Е. А. Годин, А. В. Ингеров, Е. В. Жук, Л. К. Галковская, Е. А. Исаева // Экологическая безопасность прибрежной и шельфовой зон моря. – 2016. – № 1. – С. 89–95.

Чудиновских, Т. В. Изучение роли процессов вертикального обмена в многолетней эволюции полей концентрации  $^{137}\text{Cs}$  в водах черного моря / Т. В. Чудиновских, О. А. Дымова // Экологическая безопасность прибрежной и шельфовой зон и комплексное использование ресурсов шельфа. – 2010. – № 22. – С. 98–204.

Шмельков, Б. С. Численная оценка масштабов возможного радиоактивного загрязнения акватории Карского моря при выносе из Оби и Енисея радионуклида  $\text{Cs}^{137}$  / Б. С. Шмельков, О. В. Степанец // Геохимия. – 2010. – № 6. – С. 664–669.

Aaboe, E.  $^7\text{Be}$  in Sargasso Sea and Long Island Sound waters / E. Aaboe, E. P. Dion, K. K. Turekian // Journal of Geophysical Research: Oceans. – 1981. – № 86. – P. 3255–3257.

Al-Azmi, D. Variations in  $^7\text{Be}$  concentrations in the atmosphere of Kuwait during the period 1994 to 1998 / D. Al-Azmi, A. M. Sayed, H. A. Yatim // Applied Radiation and Isotopes. – 2001. – № 3 (55). – P. 413–417.

Aldahan, A. Atmospheric impact on beryllium isotopes as solar activity proxy / A. Aldahan, J. Hedfors, G. Possnert [et al.] // *Geophysical Research Letters*. – 2008. – № 21 (35). – P. L21812.

Alonso-Hernández, C.M. Reconstruction of  $^{137}\text{Cs}$  signal in Cuba using  $^7\text{Be}$  as tracer of vertical transport processes in the atmosphere / C. M. Alonso-Hernandez, H. C. Aguila, M. D. Asencio [et al.] // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2004. – № 2 (75). – P. 133–142.

Andrews, J.E.  $^7\text{Be}$  analyses in seawater by low background gamma-spectroscopy / J. E. Andrews, C. Hartin, K.O. Buesseler // *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. – 2008. – № 1 (277). – P. 253–259.

Appenzeller, C. Seasonal variation of mass transport across the tropopause / C. Appenzeller, J. R. Holton, K. H. Rosenlof // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 1996. – № D10 (101). – P. 15071–15078.

Apsimon, H. M. Long-range atmospheric dispersion of radioisotopes-ii. application of the MESOS model / H. M. Apsimon, A. J. H. Goddard, J. Wrigley [et al.] // *Atmospheric Environment* (1967). – 1985. – № 1 (19). – P. 113–125.

Arkian, F. Analysis of gross alpha, gross beta activities and beryllium-7 concentrations in surface air: Their variations and statistical prediction model / F. Arkian, M. Salahinejad, A. A. Bidokhti [et al.] // *Environmental Monitoring and Assessment*. – 2008. – № 1–3 (140). – P. 325–330.

Arkian, F. The effects of large-scale atmospheric flows on beryllium-7 activity concentration in surface air / F. Arkian, A.-H. Meshkatee, A.A. Bidokhti // *Environmental monitoring and assessment*. – 2010. – № 1–4 (168). – P. 429–439.

Arnold, J. R. Beryllium-7 Produced by Cosmic Rays / J. R. Arnold, H. A. Al-Salih // *Science*. – 1955. – № 121 (3144). – P. 451–453.

Azahra, M. Atmospheric concentrations of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in Granada, Spain / M. Azahra, A. Camacho-García, C. Gonzalez-Gomez [et al.] // *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. – 2004. – № 2 (261). – P. 401–405.

Azahra, M. Seasonal  $^7\text{Be}$  concentrations in near-surface air of Granada (Spain) in the period 1993-2001 / M. Azahra, A. Camacho-Garcia, C. Gonzalez-Gomez [et al.] // *Applied Radiation and Isotopes*. – 2003. – № 2–3 (59). – P. 159–164.

Bas, M. C. Analysis of the influence of solar activity and atmospheric factors on  $^7\text{Be}$  air concentration by seasonal-trend decomposition / M. C. Bas, J. Ortiz, L. Ballesteros [et al.] // *Atmospheric Environment*. – 2016. – № 145. – P. 147–157.

Baskaran, M. *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry* / ed. M. Baskaran. – NY: Springer, 2012. – 951 p.

Baskaran, M. Atmospheric depositional fluxes of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  at Galveston and College Station, Texas / M. Baskaran, C. H. Coleman, P. H. Santschi // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 1993. – № D11 (98). – P. 20555.

Baskaran, M. *Radionuclide Analysis in Seawater* / M. Baskaran, G.-H. Hong, P. H. Santschi // *Practical guidelines for the analysis of seawater* / ed. O. Wurl. - FL: CRC Press, 2009. – Chap. 13. – P. 259–304.

Benitez-Nelson, C. R. Measurement of cosmogenic  $^{32}\text{P}$  and  $^{33}\text{P}$  activities in rainwater and seawater / C. R. Benitez-Nelson, K. O. Buesseler // *Analytical chemistry*. – 1998. – № 1 (70). – P. 64–72.

Bergametti, G. Seasonal variability of the elemental composition of atmospheric aerosol particles over the northwestern Mediterranean / G. Bergametti, A.-L. Dutot, P. Buat-Ménard [et al.] // *Tellus*. – 1989. – № 41B. – P. 353–361.

Blake, W. H. Fallout beryllium-7 as a tracer in soil erosion investigations / W. H. Blake, D. E. Walling, Q. He // *Applied Radiation and Isotopes*. – 1999. – № 5 (51). – P. 599–605.

Blake, W. H. Using cosmogenic beryllium-7 as a tracer in sediment budget investigations / W. H. Blake, D. E. Walling, Q. He // *Geografiska Annaler, Series A: Physical Geography*. – 2002. – № 2 (84). – P. 89–102.

Bleichrodt, J. F. Mean tropospheric residence time of cosmic-ray-produced beryllium-7 at north temperate latitudes / J. F. Bleichrodt // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 1978. – № C6 (83). – P. 3058.

Bloom, N. Solubility behavior of atmospheric  $^7\text{Be}$  in the marine environment / N. Bloom, E. A. Crecelius // *Marine Chemistry*. – 1983. – № 4 (12). – P. 323–331.

Bourcier, L. A new method for assessing the aerosol to rain chemical composition relationships / L. Bourcier, O. Masson, P. Laj [et al.] // *Atmospheric Research*. – 2012. – № 118. – P. 295–303.

Brost, R. A. Three-dimensional simulation of  $^7\text{Be}$  in a global climate model / R. A. Brost, J. Feichter, M. Heimann // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 1991. – № D12 (96). – P. 22423–22445.

Caillet, S. Factors controlling  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  atmospheric deposition as revealed by sampling individual rain events in the region of Geneva, Switzerland / S. Caillet, P. Arpagaus, F. Monna [et al.] // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2001. – № 2 (53). – P. 241–256.

Cannizzaro, F. Concentration measurements of  $^7\text{Be}$  at ground level air at Palermo, Italy - Comparison with solar activity over a period of 21 years / F. Cannizzaro, G. Greco, M. Raneli [et al.] // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2004. – № 3 (72). – P. 259–271.

Carder, K. L. Semi-analytic Moderate-Resolution Imaging Spectrometer algorithms for chlorophyll a and absorption with bio-optical domains based on nitrate-depletion temperatures / K. L. Carder, F. R. Chen, Z. P. Lee [et al.] // *Journal of Geophysical Research: Oceans*. – 1999. – № 104. – P. 5403–5422.

Chuang, C. Y. Binding of Th, Pa, Pb, Po and Be radionuclides to marine colloidal macromolecular organic matter / C.-Y. Chuang, P. H. Santschi, L.-S. Wen [et al.] // *Marine Chemistry*. – 2015. – № 173. – P. 320–329.

Demyshev, S. G. Analysis of the Black-Sea climatic fields below the main pycnocline obtained on the basis of assimilation of the archival data on temperature and salinity in the numerical hydrodynamic model. / S. G. Demyshev, V. A. Ivanov, N. V. Markova // *Physical Oceanography*. – 2009. – № 19 (1). – P. 1–12.

Dovhyi, I. I. Atmospheric depositional fluxes of marine radiotracers  $^{32}\text{P}$ ,  $^{33}\text{P}$  and  $^7\text{Be}$  in Sevastopol region / I. I. Dovhyi, D. A. Kremenchutskii, V. Yu. Proskurnin [et al.] // *Goldschmidt-2017*. – Paris, 2017 – P. 10m.

Dovhyi, I. I. Atmospheric depositional fluxes of cosmogenic  $^{32}\text{P}$ ,  $^{33}\text{P}$  and  $^7\text{Be}$  in the Sevastopol region / I. I. Dovhyi, D. A. Kremenchutskii, V. Yu. Proskurnin [et al.] // *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. – 2017. – № 3 (314). – P. 1643–1652.

Du, J. Seasonal distribution patterns of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in surface sediments in the Changjiang Estuary, China and their implication / J. Du, J. Du, D. Huang [et al.] // *Journal of Marine Systems*. – 2016. – № 154. – P. 41–49.

Dueñas, C. Atmospheric deposition of  $^7\text{Be}$  at a coastal Mediterranean station / C. Dueñas, M.C. Fernfindez, J. Carretero [et al.] // *Journal of Geophysical Research Atmospheres*. – 2002. – № D24 (106). – P. 34059–34065.

Dueñas, C. Gross alpha, gross beta activities and gamma emitting radionuclides composition of rainwater samples and deposition to ground / C. Dueñas, M. C. Fernández, E. Gordo [et al.] // *Atmospheric Environment*. – 2011. – № 4 (45). – P. 1015–1024.

Dueñas, C. Study of the cosmogenic factors influence on temporal variation of  $^7\text{Be}$  air concentration during the 23rd solar cycle in Málaga (South Spain) / C. Duenas, M. C. Fernandez, M. Cabello [et al.] // *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. – 2015. – № 3 (303). – P. 2151–2158.

Dutkiewicz, V. A. Stratospheric and tropospheric component of  $^7\text{Be}$  in surface air / V. A. Dutkiewicz, L. Husain // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 1985. – № D3 (90). – P. 5783–5788.

Feely, H. W. Factors that cause seasonal variations in Beryllium-7 concentrations in surface air / H. W. Feely, R. J. Larsen, C. G. Sanderson // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 1989. – № 3 (9). – P. 223–249.

Feng, H. Short- and long-term sediment transport in western Bohai Bay and coastal areas / H. Feng, W. Zhang, L. Jia [et al.] // *Chinese Journal of Oceanology and Limnology*. – 2010. – № 3 (28). – P. 583–592.

Gäggeler, H. W. Radioactivity in the atmosphere / H. W. Gäggeler // *Radiochimica Acta*. – 1995. – № 51 (70-71). – P. 345–353.

García, F. P. Exploratory data analysis in the study of  $^7\text{Be}$  present in atmospheric aerosols / F. P. García, M. A. F. García, J. Drożdżak // *Environmental science and pollution research international*. – 2012. – № 8 (19). – P. 3317–3326.

Gerasopoulos, E. A climatology of  $^7\text{Be}$  at four high-altitude stations at the Alps and the Northern Apennines / E. Gerasopoulos, P. Zanis, A. Stohl [et al.] // *Atmospheric Environment*. – 2001. – № 36 (35). – P. 6347–6360.

Giorgi, F. Rainout lifetimes of highly soluble aerosols as inferred from simulations with a general circulation model / F. Giorgi, W. L. Chameides // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* – 1986. – № 91. – P. 14367–14376.

Gordon, H. R. Retrieval of water-leaving radiance and aerosol optical thickness over the oceans with SeaWiFS: A preliminary algorithm / H. R. Gordon, M. Wang // *Applied Optics*. – 1994. – № 33. – P. 443–452.

Gosink, I. A. On the use of cosmogenic radionuclides of beryllium for ocean transport studies / I. A. Gosink // *Mar. Sci. Comm.* – 1976. – № 6 (2). – P. 413–417.

Green, P. E. A New Measure of Predictor Variable Importance in Multiple Regression / P. E. Green, J. D. Carroll, W. S. DeSarbo // *Journal of Marketing Research*. – 1978. – № 3 (15). – P. 356–360.

Gustafson, P. F. Comparison of beryllium-7 and caesium-137 radioactivity in ground-level air / P. F. Gustafson, M. A. Kerrigan, S. S. Brar // *Nature*. – 1961. – № 191. – P. 454–456.

Harvey, M. J.  $^7\text{Be}$  deposition in a high-rainfall area of New Zealand / M. J. Harvey, K. M. Matthews // *Journal of Atmospheric Chemistry*. – 1989. – № 4 (8). – P. 299–306.

Haskell, W. Z. Upwelling velocity and eddy diffusivity from  $^7\text{Be}$  measurements used to compare vertical nutrient flux to export POC flux in the Eastern Tropical South Pacific / W. Z. Haskell, D. Kadko, D. E. Hammond [et al.] // *Marine Chemistry*. – 2015a. – № 168. – P. 140–150.

Haskell, W. Z. A dual-tracer approach to estimate upwelling velocity in coastal Southern California / W. Z. Haskell, D. E. Hammond, M. G. Prokopenko // *Earth and Planetary Science Letters*. – 2015b. – № 422. – P. 138–149.

Hawley, N. The partitioning of  $^7\text{Be}$  in fresh water / N. Hawley, J. A. Robbins, B. J. Eadie // *Geochimica et Cosmochimica Acta*. – 1986. – № 50. – P. 1127–1131.

Hernández-Ceballos, M. A. A climatology of  $^7\text{Be}$  in surface air in European Union / M. A. Hernandez-Ceballos, G. Cinelli, M. Marín Ferrer [et al.] // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2015. – № 141. – P. 62–70.

Honeyman, B. D. A Brownian-pumping model for oceanic trace metal scavenging: Evidence from Th isotopes / B. D. Honeyman, P. H. Santschi // *Journal of Marine Research*. – 1989. – № 4 (47). – P. 951–992.

Hotzl, H. Correlation of  $^7\text{Be}$  Concentrations in Surface Air and Precipitation with the Solar Cycle / H. Hotzl, G. Rosner, R. Winkler // *Naturwissenschaften*. – 1991. – № 78. – P. 215–217.

Huang, D. Particle dynamics of  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and the implications of sedimentation of heavy metals in the Wenjiao/Wenchang and Wanquan River estuaries, Hainan, China / D. Huang, J. Du, J. Zhang // *Estuarine, Coastal and Shelf Science*. – 2011. – № 4 (93). – P. 431–437.

IAEA. Quantifying uncertainty in nuclear analytical measurements. IAEA-TECDOC-1401. – Vienna: IAEA, 2004. – 247 p.

Inoue, M.  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  ratio and  $^7\text{Be}$  concentration in the Sea of Japan as indicators for water transport: comparison with migration pattern of Fukushima Dai-ichi NPP-derived  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  / M. Inoue, Y. Furusawa, K. Fujimoto [et al.] // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2013. – № 126. – P. 176–187.

Ioannidou, A. Temporal changes of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  concentrations in surface air at temperate latitudes ( $40^\circ\text{N}$ ) / A. Ioannidou, M. Manolopoulou, C. Papastefanou // *Applied Radiation and Isotopes*. – 2005. – № 2 (63). – P. 277–284.

Ioannidou, A. Activity size distribution and residence time of  $^7\text{Be}$  aerosols in the Arctic atmosphere / A. Ioannidou, J. Paatero // *Atmospheric Environment*. – 2014. – № 88. – P. 99–106.

Ioannidou, A. Precipitation scavenging of  $^7\text{Be}$  and  $^{137}\text{Cs}$  radionuclides in air / A. Ioannidou, C. Papastefanou // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2006. – № 1 (85). – P. 121–136.

Ioannidou, A. Time lag between the tropopause height and  $^7\text{Be}$  activity concentrations on surface air / A. Ioannidou, A. Vasileiadis, D. Melas // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2014. – № 129. – P. 80–85.

Ishikawa, Y. Precipitation scavenging studies of radionuclides in air using cosmogenic  $^7\text{Be}$  / Y. Ishikawa, H. Murakami, T. Sekine [et al.] // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 1995. – № 1 (26). – P. 19–36.

Jiwen, L. Long-term variations in the surface air  $^7\text{Be}$  concentration and climatic changes / L. Jiwen, V. N. Starovoitova, D. P. Wells // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2013. – № 116. – P. 42–47.

Johnson, J. W. History and use of relative importance indices in organizational research / J. W. Johnson, J. M. LeBreton // *Organizational Research Methods*. – 2004. – № 3 (7). – P. 238–257.

Jordan, C. E.  $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$  tracer of atmospheric transport and stratosphere-troposphere exchange / C. E. Jordan, J. E. Dibb, R. C. Finkel // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 2003. – № 108 (D8). – P. 3-1-3-14.

Jungck, M. H. A. Determination of radionuclide levels in rainwater using ion exchange resin and  $\gamma$ -spectrometry / M. H. A. Jungck, J. L. Andrey, P. Froidevaux // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2009. – № 4 (100). – P. 361–365.

Junge, C. E. Studies of Global Exchange Processes in the Atmosphere by Natural and Artificial Tracers / C. E. Junge // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 1963. – № 13 (68). – P. 3849–3856.

Kadko, D. Rapid oxygen utilization in the ocean twilight zone assessed with the cosmogenic isotope  $^7\text{Be}$  / D. Kadko // *Global Biogeochemical Cycles*. – 2009. – № 4 (23). – P. GB4010.

Kadko, D. Upwelling and primary production during the U.S. GEOTRACES East Pacific Zonal Transect / D. Kadko // *Global Biogeochemical Cycles*. – 2017. – № 2 (31). – P. 218–232.

Kadko, D. Inferring upwelling rates in the equatorial Atlantic using  $^7\text{Be}$  measurements in the upper ocean / D. Kadko, W. Johns // *Deep-Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers*. – 2011. – № 6 (58). – P. 647–657.

Kadko, D. Beryllium-7 as a tracer of surface water subduction and mixed-layer history / D. Kadko, D. Olson // *Deep-Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers*. – 1996. – № 2 (43). – P. 89–116.

Kadko, D. Deposition of  $^7\text{Be}$  to Bermuda and the regional ocean: Environmental factors affecting estimates of atmospheric flux to the ocean / D. Kadko, J. Prospero // *Journal of Geophysical Research: Oceans*. – 2011. – № 2 (116). – P. C02013.

Kapala, J.  $^7\text{Be}$  concentration in the near-surface layer of the air in Bialystok (north-eastern Poland) in the years 1992–2010 / J. Kapala, M. Karpińska, S. Mnich [et al.] // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2018. – № 187. – P. 40–44.

Kasibhatla, P. S. The relative impact of stratospheric photochemical production on tropospheric  $\text{NO}_y$  levels: a model study / P. S. Kasibhatla, H. Levy, W. J. Moxim [et al.] // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* – 1991. – № D10 (96). – P. 18631–18646.

Kim, G. Factors influencing the atmospheric depositional fluxes of stable  $\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ , and  $^7\text{Be}$  into Chesapeake Bay / U. Kim, N. Hussain, J. R. Scudlark [et al.] // *Journal of Atmospheric Chemistry*. – 2000. – № 1 (36). – P. 65–79.

Koch, D. Beryllium-10/beryllium-7 as a tracer of stratospheric transport / D. Koch, D. Rind // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 1998. – № D4 (103). – P. 3907–3917.

Koch, D. M. Vertical transport of tropospheric aerosols as indicated by  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in a chemical tracer model / D. M. Koch, D. J. Jacob, W. C. Graustein // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 1996. – № D13 (101). – P. 18651–18666.

Koch, D. M. Spatial and temporal variability of Be-7 surface concentrations / D. M. Koch, M. E. Mann // *Tellus Series B-Chemical and Physical Meteorology*. – 1996. – № 3 (48). – P. 387–396.

Kremenchutskii, D. A. Distribution of beryllium-7 ( $^7\text{Be}$ ) in the Black Sea in the summer of 2016 / D. A. Kremenchutskii // *Environmental Science and Pollution Research*. – 2018. – № 31 (25). – P. 31569–31578.

Kremenchutskii, D. A. Concentration of beryllium-7 ( $^7\text{Be}$ ) in the surface layer of Black Sea: evolution and governing processes / D. A. Kremenchutskii, G. F. Batrakov, S. G. Demyshev [et al.] // *Book of abstracts 7th International Symposium on IN SITU Nuclear Metrology as a tool for radioecology INSINUME 2017, Ohrid, Macedonia, 2017*. – P. 36–37.

Kremenchutskii, D. A. Numerical simulation of the intra-annual evolution of beryllium-7 ( $^7\text{Be}$ ) in the surface layer of the Black Sea / D. A. Kremenchutskii, O. A. Dymova, G. F. Batrakov [et al.] // *Environmental Science and Pollution Research*. – 2018. – № 11 (25). – P. 11120–11127.

Kulana, A. Distribution of  $^7\text{Be}$  in surface air of Europe / A. Kulana, A. Aldahana, G. Possnertb [et al.] // *Atmospheric Environment*. – 2006. – № 21 (40). – P. 3855–3868.

Kusmierczyk-Michulec, J. Influence of precipitation on  $^7\text{Be}$  concentrations in air as measured by CTBTO global monitoring system / J. Kusmierczyk-Michulec, A. Gheddou, M. Nikkinen // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2015. – № 144. – P. 140–151.

Laguionie, P. Simultaneous quantification of the contributions of dry, washout and rainout deposition to the total deposition of particle-bound  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  on an urban catchment area on a monthly scale / P. Laguionie, P. Roupsard, D. Maro [et al.] // *Journal of Aerosol Science*. – 2014. – № 77. – P. 67–84.

Lal, D. An overview of five decades of studies of cosmic ray produced nuclides in oceans / D. Lal // *The Science of the Total Environment*. – 1999. – № 237-238. – P. 3–13.

Lal, D. A method for the extraction of trace elements from sea water / D. Lal, J. R. Arnold, B. L. K. Somayajulu // *Geochimica et Cosmochimica Acta*. – 1964. – № 7 (28). – P. 1111–1117.

Lal, D. Cosmic Ray Produced Radioactivity on the Earth / D. Lal, B. Peters // *Handbook of Physics*. – 1967. – № 2 (46). – P. 551–612.

Lee, H.-I. Time series study of a 17-year record of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  fluxes in northern Taiwan using ensemble empirical mode decomposition / H. - I. Lee, C. - A. Huh, T. Lee [et al.] // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2015. – № 147. – P. 14–21.

Lee, T. Studies of vertical mixing in the Southern California Bight with cosmogenic radionuclides  $^{32}\text{P}$  and  $^7\text{Be}$  / T. Lee, E. Barg, D. Lal // *Limnology and Oceanography*. – 1991. – № 5 (36). – P. 1044–1052.

Li, Y. H. Partition of radiotracers between suspended particles and seawater / Y. H. Li, L. Burkhardt, M. Buchholtz, P. O'Hara [et al.] // *Geochimica et Cosmochimica Acta*. – 1984. – № 10 (48). – P. 2011–2019.

Lozano, R. L. Depositional fluxes and concentrations of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in bulk precipitation and aerosols at the interface of Atlantic and Mediterranean coasts in Spain / R. L. Lozano, E. G. San Miguel, J. P. Bolívar [et al.] // *Journal of Geophysical Research Atmospheres*. – 2011. – № 18 (116). – P. D18213.

Lujanien, G. Study of removal processes of  $^7\text{Be}$  and  $^{137}\text{Cs}$  from the atmosphere / G. Lujanien // *Czechoslovak Journal of Physics*. – 2003. – № 53. – P. 57–65.

Masarik, J. Origin and Distribution of Radionuclides in the Continental Environment / J. Masarik // *Environmental radionuclides: tracers and timers of terrestrial processes* / ed. K. Froehlich. – Elsevier, 2010. – Chap. 1. – P. 1–25.

McNeary, D. Depositional characteristics of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in southeastern Michigan / D. McNeary, M. Baskaran // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 2003. – № D7 (108). – P. 4210.

Medici, F. The IMS radionuclide network of the CTBT / F. Medici // *Radiation Physics and Chemistry*. – 2001. – № 161. – P. 689–690.

Megumi, K. Factors, especially sunspot number, causing variations in surface air concentrations and depositions of  $^7\text{Be}$  in Osaka, Japan / K. Megumi, T. Matsunami, N. Ito [et al.] // *Geophysical Research Letters*. – 2000. – № 3 (27). – P. 361–364.

Mellor, G. L. Development of a turbulence closure model for geophysical fluid problems / G. L. Mellor, T. Yamada // *Reviews of Geophysics and Space Physics*. – 1982. – № 20. – P. 851–875.

Nakanishi, T. Simultaneous measurements of cosmogenic radionuclides  $^{32}\text{P}$ ,  $^{33}\text{P}$  and  $^7\text{Be}$  in dissolved and particulate forms in the upper ocean / T. Nakanishi, M. Kusakabe, T. Aono [et al.] // *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. – 2009. – № 3 (279). – P. 769–776.

Nijampurkar, V. N. Polar fallout of radionuclides  $^{32}\text{Si}$ ,  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  and past accumulation rate of ice at Indian station, Dakshin Gangotri, East Antarctica / V. N. Nijampurkar, D. K. Rao // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 1993. – № 2 (21). – P. 107–117.

Olsen, C. R. Atmospheric Fluxes and Marsh-Soil Inventories of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  / C. R. Olsen, I. L. Larsen, P. D. Lowry [et al.] // *Journal of Geographical Sciences*. – 1985. – № D5 (90). – P. 10487–1095.

Olsen, C. R. Geochemistry and Deposition of  $^7\text{Be}$  in River-Estuarine and Coastal Waters / C. R. Olsen, I. L. Larsen, P. D. Lowry [et al.] // *Journal of Geophysical Research: Oceans*. – 1986. – № C1 (91). – P. 896–908.

Othman, I. Fallout of  $^7\text{Be}$  in Damascus City / I. Othman, M. S. Al-Masri, M. Hassan // *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. – 1998. – № 2 (238). – P. 18–191.

Palinkas, C. M. The use of  $^7\text{Be}$  to identify event and seasonal sedimentation near the Po River delta, Adriatic Sea / C. M. Palinkas, C. A. Nittrouer, R. A. Wheatcroft [et al.] // *Marine Geology*. – 2005. – № 222-223. – P. 95–112.

Papastefanou, C. Radioactive aerosols / C. Papastefanou / ed. M.S. Baxter. – UK: Elsevier, 2008. – 187 p.

Papastefanou, C. Residence time of tropospheric aerosols in association with radioactive nuclides / C. Papastefanou // Applied Radiation and Isotopes. – 2006. – № 1 (64). – P. 93–100.

Papastefanou, C. Aerodynamic size association of  $^7\text{Be}$  in ambient aerosols / C. Papastefanou, A. Ioannidou // Journal of Environmental Radioactivity. – 1995. – № 3 (26). – P. 273–282.

Papastefanou, C. Beryllium-7 and solar activity / C. Papastefanou, A. Ioannidou // Applied Radiation and Isotopes. – 2004. – № 6 (61). – P. 1493–1495.

Peirson, D. H. Beryllium 7 in air and rain / D. H. Peirson // Journal of Geophysical Research: Atmospheres. – 1963. – №13 (68). – P. 3831–3832.

Pham, M. K. Dry and wet deposition of  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in Monaco air during 1998–2010: Seasonal variations of deposition fluxes / M. K. Pham, P. P. Povinec, H. Nies, M. Betti // Journal of Environmental Radioactivity. – 2013. – № 120. – P. 45–57.

Porto, P. Use of  $^7\text{Be}$  measurements to estimate rates of soil loss from cultivated land: Testing a new approach applicable to individual storm events occurring during an extended period / P. Porto, D. E. Walling // Water Resources Research. – 2014. – № 10 (50). – P. 8300–8313.

Raisbeck, G. M. Cosmogenic  $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$  as a probe of atmospheric transport processes / G. M. Raisbeck, F. Yiou, M. Fruneau [et al.] // Geophysical Research Letters. – 1981. – № 9 (8). – P. 1015–1018.

Rajačić, M. M. The Fourier analysis applied to the relationship between  $^7\text{Be}$  activity in the Serbian atmosphere and meteorological parameters / M. M. Rajacic, D. J. Todorovic, J. D. Krneta Nikolic [et al.] // Environmental Pollution. – 2016. – № 216. – P. 919–923.

Rangarajan, B. C. Seasonal variation of Beryllium-7 relative to Caesium-137 in surface air at tropical and sub-tropical latitudes / B. C. Rangarajan, S. M. T. S. Gopalakrishnan, A. M. Section // *Tellus*. – 1970. – № 22. – P. 115–121.

Rangarajan, C. The use of natural radioactive tracers in a study of atmospheric residence times / C. Rangarajan, C. D. Eapen // *Tellus B*. – 1990. – № 1 (42). – P. 142–147.

Rehfeld, S. Three dimensional atmospheric transport simulation of the radioactive tracers  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{10}\text{Be}$ , and  $^{90}\text{Sr}$  / S. Rehfeld, M. Heimann // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 1995. – № D12 (100). – P. 26141.

Renfro, A. A. Atmospheric fluxes of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  on monthly time-scales and during rainfall events at Stony Brook, New York (USA) / A. A. Renfro, J. K. Cochran, B. A. Colle // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2013. – № 116. – P. 114–123.

Saito, C. Distribution of cosmogenic  $^7\text{Be}$  and  $^{10}\text{Be}$  in the East Pacific Ocean / C. Saito, T. Yamagata, H. Matsuzaki [et al.] // *Nihon University*. – 2005. – № 40. – P. 209–215.

Sakashita, T. Test of wet scavenging parameterization schemes by simulation of monthly depositions of  $^7\text{Be}$  using normally available data on environmental monitoring and local meteorology / T. Sakashita, Y. Nakamura, M. Doi // *Journal of Nuclear Science and Technology*. – 2002. – № 2 (39). – P. 180–186.

Schulze, J. Low level radioactivity measurement in support of the CTBTO / J. Schulze, M. Auer, R. Werzi // *Applied Radiation and Isotopes*. – 2000. – № 53. – P. 23–30.

Schumann, G. Beryllium-7 in the atmosphere / G. Schumann, M. Stoepler // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 1963. – № 13 (68). – P. 3827–3830.

Shiau, B. - S. Numerical study on the far field diffusion of ocean dumping for liquid waste / B. - S. Shiau, J. - J. Juang // *The Eighth International Offshore and Polar Engineering Conference*. – Montreal, Canada, 1988. – P. 327–334.

Silker, W. B. Beryllium-7 in ocean water / W. B. Silker, D. E. Robertson, H. G. Rieck [et al.] // *Science*. – 1968. – № 3844 (161). – P. 879–880.

Silker, W. B. Beryllium-7 and fission products in the Geosecs II water column and applications of their oceanic distributions / W. B. Silker // *Earth and Planetary Science Letters*. – 1972a. – № 1 (16). – P. 131–137.

Silker, W. B. Horizontal and vertical distributions of radionuclides in the North Pacific Ocean / W. B. Silker // *Journal of Geophysical Research: Oceans*. – 1972b. – № 6 (77). – P. 1061–1070.

Silker, W. B. Surface concentration of radionuclide in the North Pacific Ocean / W. B. Silker // *USA. EC BNWL – 1051. – 1969*. – № 2. – P. 27–31.

Silker, W. B. A sampler for concentrating radionuclides from natural waters / W. B. Silker, R. W. Perkins, H. G. Rieck // *Ocean Engineering*. – 1971. – № 2 (2). – P. 49–55.

Silker, W. B. Oceanic distribution and relationships of  $^7\text{Be}$  and fission products / W. B. Silker, J. A. Young, M. R. Patersen // *Radioact. Contam. Mar. Envir.* – Vienna: IAEA-SM-158/46. – 1973. – P. 687–699.

Sommerfield, C. K.  $^7\text{Be}$  as a tracer of flood sedimentation on the northern California continental margin / C. K. Sommerfield, C. A. Nittrouer, C. R. Alexander // *Continental Shelf Research*. – 1999. – № 3 (19). – P. 335–361.

Tanaka, N. Behavior of  $^7\text{Be}$  in Funka Bay, Japan, with reference to those of in soluble nuclides,  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  / N. Tanaka, S. Tsunogai // *Geochemical Journal*. – 1983. – № 17. – P. 9–17.

Tanaka, N. Determination of the Dry Deposition Flux of  $\text{SO}_2$  Using Cosmogenic S-35 and Be-7 Measurements / N. Tanaka, K. K. Turekian // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 1995. – № D2 (100). – P. 2841–2848.

Taylor, A. Temporal variability of beryllium-7 fallout in southwest UK / A. Taylor, M. J. Keith-Roach, A. R. Iurian [et al.] // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2016. – № 160. – P. 80–86.

Thomas, A. J. Geochemistry of natural and artificial radionuclides: application to the study of the continent-ocean interface / A. J. Thomas // *Ph.D. thesis*. – Paris: Paris State University, 1988. – 409 p.

Thomas, C. W. The measurement and behavior of airborne radionuclides since 1962 / C. W. Thomas, J. A. Young, N. A. Wogman, [et al.] // *Radionuclides in the Environment* / ed. R.F. Gould. American. – Washington D.C.: Chemical Society. – 1970. – P. 158–172.

Todd, J. F. Atmospheric depositional characteristics of beryllium-7 and lead-210 along the southeastern Virginia coast / J. F. Todd, G. T. F. Wong, C. R. Olsen [et al.] // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 1989. – № 94. – P. 11106–11116.

Tositti, L. 12 years of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in Mt. Cimone, and their correlation with meteorological parameters / L. Tositti, E. Brattich, G. Cinelli [et al.] // *Atmospheric Environment*. – 2014. – № 87. – P. 108–122.

Turekian, K. K.  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  total deposition fluxes at New Haven, Connecticut and at Bermuda / K. K. Turekian, L. K. Benninger, E. P. Dion // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 1983. – № C9 (88). – P. 5411–5415.

Turekian, K. K. The use of atmospheric cosmogenic  $^{35}\text{S}$  and  $^7\text{Be}$  in determining depositional fluxes of  $\text{SO}_2$  / K. K. Turekian, N. Tanaka // *Geophysical Research Letters*. – 1992. – № 17 (19). – P. 1767–1770.

Usoskin, I. G. Cosmogenic isotope  $^7\text{Be}$  as a tracer for air mass dynamics / I. G. Usoskin, C. V. Fieldy, G. A. Schmidt [et al.] // *Proceedings of the 31st ICRC*. – Poland: ŁODZ, 2009. – P. 1–4.

Vogler, S. Scavenging of  $^{234}\text{Th}$  and  $^7\text{Be}$  in Lake Constance / S. Vogler, M. Jung, A. Mangini // *Limnology and Oceanography*. – 1996. – № 7 (41). – P. 1384–1393.

Wilson, C. G. Short-term erosion rates from a  $^7\text{Be}$  inventory balance / C. G. Wilson, G. Matisoff, P. J. Whiting // *Earth Surface Processes and Landforms*. – 2003. – № 9 (28). – P. 967–977.

Yoshimori, M. Beryllium-7 radionuclide as a tracer of vertical air mass transport in the troposphere / M. Yoshimori // *Advances in Space Research*. – 2005. – № 36. – P. 828–832.

Young, J. A. Aerosol deposition velocities on the Pacific and Atlantic oceans calculated from  $^7\text{Be}$  measurements / J. A. Young, W. B. Silker // *Earth and Planetary Science Letters*. – 1980. – № 1 (50). – P. 92–104.

Zanis, P. Factors controlling beryllium-7 at Jungfraujoch in Switzerland / P. Zanis, E. Schuepbach, H. W. Gaggeler [et al.] // *Tellus*. – 1999. – № 4B (51). – P. 789–805.

Zhu J. Beryllium-7 atmospheric deposition and sediment inventories in the Neponset River estuary, Massachusetts, USA / J. Zhu, C. R. Olsen // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2009. – № 2 (100). – P. 192–197.