

## ОСОБЕННОСТИ НАКОПЛЕНИЯ РТУТИ В ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЯХ ДВУХ АРКТИЧЕСКИХ ОЗЕР ЗАПАДНОЙ СИБИРИ

© 2022 г. Ю. Г. Тацкий<sup>а</sup> \*, Д. Ю. Баранов<sup>а</sup> \*\*

<sup>а</sup>Институт геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского РАН,  
ул. Косыгина, 19, ГСП-1, Москва, 119991 Россия

\*e-mail: yutatsy@mail.ru

\*\*e-mail: mitya.baranov.90@bk.ru

Поступила в редакцию 08.06.2020 г.

После доработки 12.08.2020 г.

Принята к публикации 15.10.2020 г.

Изучены особенности распределения и поступления ртути в датированные донные отложения арктических озер, расположенных на полуострове Ямал (Лонгтибейто) и полуострове Гьдан (Гольцовое). Концентрации Hg показали значительное увеличение в верхних слоях отложений, концентрационные коэффициенты обогащения 14 и 10, фоновые содержания 4.3 и 5.2 нг/г, соответственно. Скорости седиментации в обоих озерах достаточно высоки. Для Лонгтибейто она относительно постоянна, среднее значение  $660 \pm 75$  г/м<sup>2</sup> год, а для Гольцового снижается к верхним слоям с 791 до 513 г/м<sup>2</sup> год. Потоки общей Hg между озерами сильно различаются, но литогенный поток примерно одинаковый (5–7 мкг/м<sup>2</sup> год). Поток Hg в Лонгтибейто существенно превышает поток в Гольцовом и составляет 41.5 мкг/м<sup>2</sup> год. Послойный гранулометрический анализ с определением Hg в каждой фракции позволил выявить различия между озерами. В Гольцовом общую концентрацию в слое определяют высокие концентрации в самой мелкой (<0.045 мм) фракции, в Лонгтибейто эта фракция доминирует за счет высокой массовой доли. Показано появление в донных отложениях крупных (>0.2 мм) частиц с высоким содержанием Hg. Возможной причиной повышения концентраций Hg в верхних слоях может быть влияние нефте- и газодобычи в этом регионе.

**Ключевые слова:** арктические озера, Западная Сибирь, донные отложения, ртуть, скорость осадконакопления, потоки ртути, гранулометрия

DOI: 10.31857/S0016752522020091

Антропогенные выбросы ртути, способность длительное время находиться в атмосфере и переноситься на большие расстояния существенно изменили ее биогеохимический цикл в арктическом регионе. Способность ртути к биоаккумуляции в трофической структуре привело к ситуации, которая может представлять опасность для наземных и морских млекопитающих, рыб и человека (АМАР, 2011).

В отсутствие данных долгосрочного экологического мониторинга для отдаленных районов Арктики, озерные отложения являются неоценимым источником информации об изменении атмосферного осаднения ртути и о величине этого изменения, своего рода естественными палеолимнологическими архивами. Это позволяет отслеживать изменения в поступлении Hg и вклад антропогенных выбросов в ее накопление, что широко используется для реконструкции истории осаднения Hg (например, Biester et al., 2007; Fitzgerald et al., 2005; Johansson, 1985; Landers et al., 1998; Lockhart et al., 1998). В случае датирования

по <sup>210</sup>Pb профили накопления общей Hg представляют надежную запись изменений осаднения Hg на озеро и водосбор. При этом концентрации общей Hg в озерных отложениях не изменяются в результате диагенетического процесса, и озерные отложения являются надежным архивом для изучения нагрузки Hg на озеро (Rydberg et al., 2008).

В большинстве работ по накоплению Hg в озерных отложениях отмечалось почти повсеместное увеличение уровней накопления Hg с доиндустриального периода (до 1850 г.) до настоящего времени, однако степень увеличения варьируется. Это обусловлено различиями в физических и биологических характеристиках озер и водосборов. В термокарстовых озерах на поставку Hg существенно может влиять и деградация вечной мерзлоты.

В настоящее время время имеется мало информации об отложениях Hg в Арктике. Появившиеся в последние годы публикации по осаднению Hg в арктических и субарктических озерах Северной Америки на основе колонок донных отложений (Hermanson, 1998; Lockhart et al., 2000; Fitzgerald et al., 2005;

Outridge et al., 2005, 2011; Muir et al., 2009; Drevnick et al., 2016; Burke et al., 2018) отмечали недостаточность информации по этим регионам по сравнению со средними широтами. При этом публикации об отложении Hg в арктических озерах России почти отсутствуют, за исключением работ (Даувальтер и др., 2015; Даувальтер, Кашулин, 2018; Landers et al., 1998; Rognerud et al., 1998; Allen-Gil et al., 2003).

Крупнейшими точечными источниками Hg в российской Арктике являются атмосферные выбросы горно-металлургических предприятий, расположенных в Мурманской области и в районе Норильска. Данные по выбросам Hg с этих предприятий отсутствуют, так как Hg в Российской Федерации пока не отнесена к числу элементов, подлежащих обязательному контролю. Кроме того, в Ямало-Ненецком округе, в том числе на Ямале, в районе нефтяных и газо-конденсатных месторождений продолжают гореть факелы, сжигающие попутный газ, также являющийся источником поступления в атмосферу разнообразных загрязнителей (полициклических ароматических углеводородов, тяжелых металлов, в том числе ртути). Ртуть является одним из основных индикаторов воздействия факелов сжигания попутного нефтяного газа (Московченко, Бабушкин, 2012). При длительности периода с устойчивым снежным покровом 240–260 дней (Атлас..., 2004), серьезным источником может быть поступление Hg со снеговыми водами.

Целью работы было количественное определение потоков осаждения Hg, изучение возможных источников поступления Hg в донные отложения озер Западной Сибири и влияние гранулометрического состава на содержание общей Hg.

## МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Колонки донных отложений были отобраны из озер, расположенных на северо-западе Сибири, в Ямало-Ненецком автономном округе, в зоне арктической тундры. Озеро Гольцовое в северной части полуострова Гыдан (71°25.4' с.ш., 78°50.967' в.д.), озеро Лонгтибейто на севере полуострова Ямал (71°3.835' с.ш., 70°19.308' в.д.).

Описание озер, отбор, хранение и обработка проб, датирование по  $^{210}\text{Pb}$ , определение элементного состава и потерь при прокаливании описано в Тацый и др. (2020). Длина отобранных буром колонок на Лонгтибейто и Гольцовом составляла 57 и 48 см, стратометром — 10 и 23 см, соответственно

**Гранулометрический анализ** выполняли методом сухого ситования. Для слоев донных отложений толщиной 1 см, отобранных буром, рассев проводили на три фракции: >0.1 (песок), 0.1–0.045 (крупный алеврит) и <0.045 мм (алеврито-

пелит), а для отдельных наиболее характерных слоев толщиной 0.5 см, отобранных стратометром, рассев проводили на 5 фракций >0.5, 0.5–0.2, 0.2–0.1, 0.1–0.045 и <0.045 мм.

**Определение ртути.** Ртуть в донных отложениях каждого озера определяли, как в слоях толщиной 1 см, так и в слоях 0.5 см. Определения проводили из навески 20–100 мг сухого веса ( $n = 3$ ) методом пиролиза из твердой пробы с предварительным накоплением Hg на золотом коллекторе и последующей регистрацией на АА спектрометре. Предел обнаружения 0.5 нг/г (для 100 мг пробы). Калибровку осуществляли по насыщенным парам ртути при температуре 0°C (Тацый, Стахеев, 2001).

**Коэффициент обогащения EF** (Enrichment Factor) определяли, как отношение концентраций в верхнем слое отложений к концентрациям в нижних слоях колонки, которые по результатам датирования относились к доиндустриальному периоду. Эти доиндустриальные концентрации рассматривали, как фоновые не только для Hg, но и для других элементов. Недавние и доиндустриальные горизонты в каждой колонке определяли по средним возрастам, присвоенным середине каждого слоя колонки при датировке по  $^{210}\text{Pb}$  и  $^{137}\text{Cs}$  с использованием модели CRS.

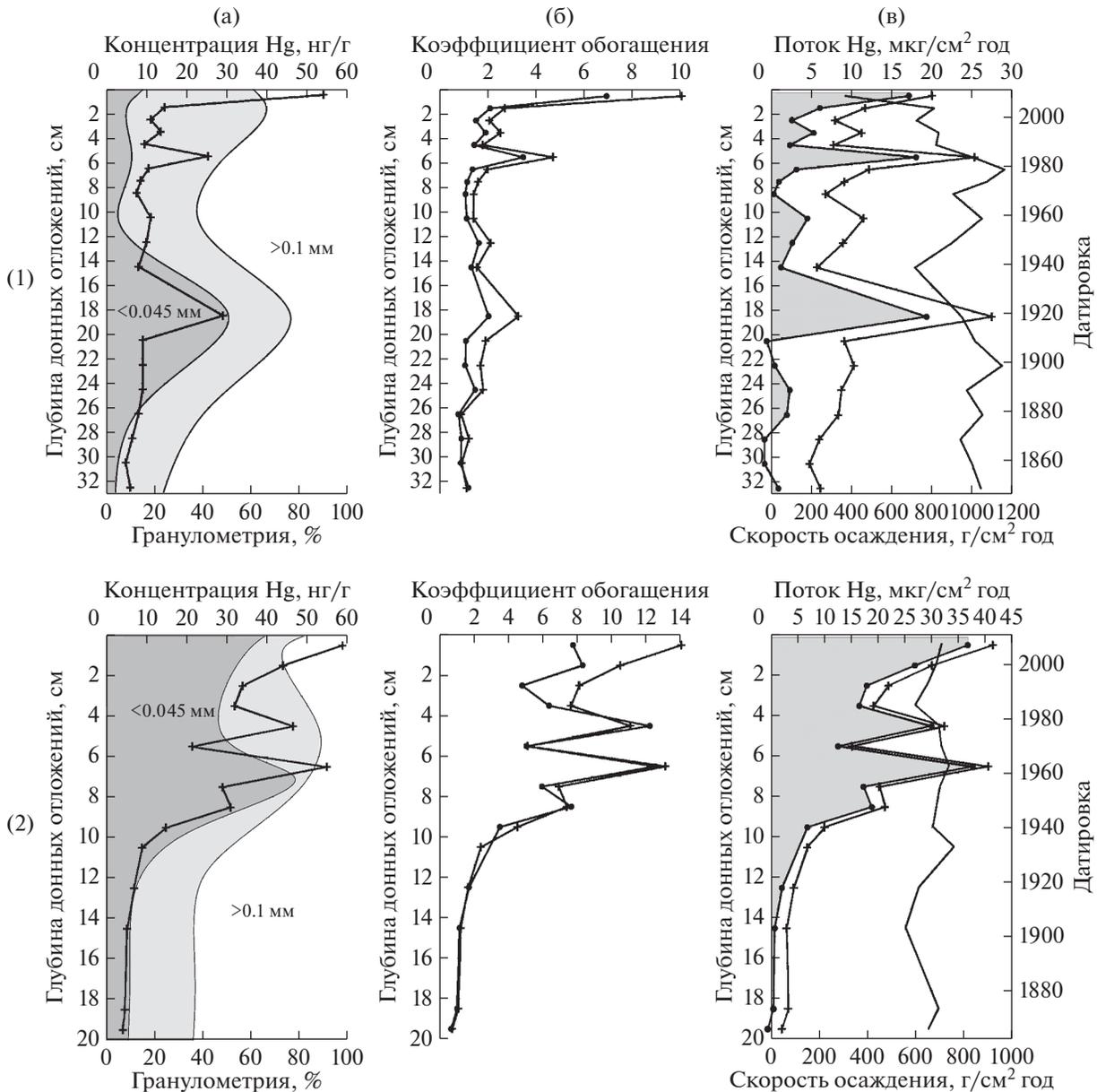
**Расчет потоков.** Общую скорость осаждения ( $F$ , г/см<sup>2</sup> год) определяли для каждого слоя по количеству материала в слое (г), объему слоя (см<sup>3</sup>) и данным датирования по  $^{210}\text{Pb}$  (см/год).

Поток Hg ( $F_{\text{Hg}}$ ) или скорость поступления Hg (мкг/см<sup>2</sup> год) определяли, как произведение концентрации Hg на скорость осаждения, т.е.  $F_{\text{Hg}} = C_{\text{Hg}}F$ .

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Распределение элементов в колонках донных отложений исследованных озер во многом определяется литологическими особенностями осадка, который четко разделяется на два слоя. Для верхнего слоя характерны более высокое содержание органического вещества и частиц мелких фракций (<0.1 мм). Нижний слой сложен литогенным материалом с низким содержанием органики и преобладанием песчаной фракции.

Как было отмечено в предыдущей публикации, поведение ртути в донных отложениях исследуемых озер отличается от распределения других элементов. В обоих озерах увеличение концентрации Hg начинается на участке резкого перехода от песчаной части колонки к суглинистой (рис. 1а). В оз. Лонгтибейто это увеличение носит более резкий характер. В распределении других элементов такого резкого перехода не наблюдается.



**Рис. 1.** Особенности распределения Hg в озерах Гольцовое (1) и Лонгтибейто (2). а – распределение Hg и гранулометрия; б – факторы обогащения (EF); в – скорость осаднения, скорость поступления (поток) Hg и датировка отложений. + – рассчитанные относительно фоновое значения; ● – скорректированные на Sc.

Полученные стратиграфические тренды концентраций Hg вполне вписываются в диапазон, приводимый в литературе для арктических и субарктических озерных отложений. Концентрации в приповерхностных слоях в большинстве озер выше, чем в нижних доиндустриальных горизонтах (Landers et al., 1998; Lockhart et al., 1998; Hermanson, 1998; Outridge et al., 2005, 2011; Muir et al., 2009; Sanei et al., 2012).

Похожие, но в меньшей, степени тренды наблюдаются и для других элементов, хотя все концентрации низки и даже их максимальные значе-

ния не превышают средние содержания для осадочных пород (глинистые сланцы). Более выражено это в оз. Лонгтибейто (Таций и др., 2020, рис. 4), где наблюдается медленное монотонное увеличение содержаний большинства элементов к поверхности отложений. В верхнем 2 см слое резко, примерно в 2 раза, увеличиваются концентрации Cu, Zn, Ni, Co, Cr, V, а также серы и  $Fe_2O_3$ . В донных отложениях оз. Гольцовое такого резкого увеличения содержания элементов в верхней части колонки не наблюдается. Однако в слоях с 15 по 20 см повышаются концентрации практически всех элементов, включая Hg.

Остается пока неясной причина резкого увеличения концентрации Hg в самых верхних слоях донных отложений, особенно в Гольцовом, где концентрация в верхнем 1 см слое увеличилась сразу почти в 4 раза. Если в Лонгтибейто менее резкое увеличение (в 1.5 раза) можно объяснить повышенным содержанием в этом слое серы, железа и марганца, около 8% потерями при прокаливании и 60% аргиллит-пелитовой фракции, то в Гольцовом эти факторы или отсутствуют, или незначительны.

*Коэффициенты обогащения* определяли для каждого слоя колонки, как отношение концентрации Hg в слое к фону. Проблема естественного фона является одной из основных при определении показателей загрязнения озерных донных отложений. Ее можно решать двумя способами – по общим геологическим данным (например, по средним содержаниям элементов в континентальной земной коре, так называемым “кларкам”) или по уровню содержания элементов в нижней части осадочной колонки, соответствующей доиндустриальному периоду (до 1850 г.). В первом случае не учитываются местные особенности, а во втором – учитываются в основном они. Второй способ является предпочтительным, т.к. в местных геологических условиях концентрации большинства элементов в подстилающих и коренных породах могут существенно отличаться от средних содержаний в земной коре. Для оценки изменений содержания Hg со временем, ее доиндустриальные значения можно рассматривать как фоновые, которые для каждого озера являются уникальными и определяются физическими, геологическими, биологическими и химическими характеристиками озера и его водосборного бассейна, а также расположением озера относительно атмосферного переноса природной Hg. Эти фоновые значения являются референтной точкой для каждого озера.

Локальные фоновые содержания ртути (и некоторых других элементов) в донных отложениях озер определяли, как среднее из измеренных значений в нескольких нижних слоях колонок. Эти содержания слегка варьировали от слоя к слою, но не показывали никакого определенного тренда. Фоновые содержания составили  $5.2 \pm 0.9$  нг/г для Гольцового (с 26 по 55 см) и  $4.3 \pm 0.9$  для Лонгтибейто (с 20 по 47 см). Согласно результатам уточненного датирования по  $^{210}\text{Pb}$  возраст этих слоев превышает 120 лет, то есть до 1890 г.

На рис. 16 приведены коэффициенты обогащения, рассчитанные относительно фоновых значений Hg, и скорректированные на Sc (т.е. на литогенную составляющую). Для оз. Гольцовое скорректированные коэффициенты обогащения не превышают 2 до глубины 2 см (исключение слой 5–6 см), но в самом верхнем 1-см слое EF

достигает значения 7.4. В оз. Лонгтибейто обе кривые начинают расти сразу после перехода от песчаной части колонки к суглинистой, практически совпадая до верхних 4 см. В верхнем слое скорректированный коэффициент обогащения показал значение 7.7.

Для оценки литогенного поступления Hg разные авторы использовали кроме Sc также Al, Ni, Zr (Muir et al., 2009; Fitzgerald et al., 2005; Reimann, de Caritat, 2005). Для сравнения нами были рассчитаны также EF с коррекцией по  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{TiO}_2$  и MgO. Они фактически совпали с кривой для Sc за исключением самых верхних слоев, где наблюдался небольшой разброс для разных элементов, но общая картина оставалась той же. Полученные значения EF могут свидетельствовать лишь о том, что верхние слои донных отложений Гольцового и Лонгтибейто имеют концентрации Hg в 10 и 14 раз, соответственно, превышающие фоновые значения. Максимальный коэффициент обогащения для Sc в Гольцовом составил 2.5 (слой 20–21 см), а для Лонгтибейто 1.8 (слой 0–1 см).

Конечно, коэффициенты обогащения, полученные для двух озер, не могут претендовать на какие-то региональные обобщения, но они в определенной степени могут характеризовать поступление и поведение Hg в арктических озерных донных отложениях.

**Потоки ртути.** При сравнении уровней Hg (как и любого элемента) вдоль колонки донных отложений, важно учитывать, что концентрации в исследуемом слое отложений являются скорее качественной характеристикой, так как не учитывают скорость седиментации, то есть количество отложенного материала и времени отложения конкретного слоя. По этой причине концентрационные профили лишь косвенно отражают характер поступления металла в донные отложения и его источник. Способом обойти некоторые трудности интерпретации поступления Hg при использовании только изменения концентрации является определение скорости седиментации или потока. Однако надежность показателей накопления, в свою очередь, зависит от точности разделения слоев и надежности определения возраста.

Скорости седиментации представлены на рис. 1в. Для обоих озер они достаточно высоки и средние значения различаются примерно в полтора раза –  $953 \pm 128$  г/м<sup>2</sup> год для Гольцового (без учета верхнего 1 см слоя) и  $660 \pm 75$  г/м<sup>2</sup> год для Лонгтибейто. Разброс значений составил 370–1154 и 513–791 г/м<sup>2</sup> год для Гольцового и Лонгтибейто, соответственно. Вариации скорости седиментации в Гольцовом существенно выше, чем в Лонгтибейто. В какой-то степени, это можно объяснить различием в размере озер, так как площадь Гольцового примерно в 3 раза меньше Лонгтибейто. Ни одно из озер не показало устойчиво-

го повышения скорости седиментации от нижних слоев к верхним. Более того, в Гольцовом за последние примерно 30 лет она снизилась примерно в 3 раза.

Потоки общей Hg, рассчитанные по концентрации Hg в каждом слое и скорости седиментации, также представлены на рис. 1в. Для учета количества Hg, поступающей с водосбора, Perry et al. (2005) предложили формулу, основанную на изменении количества поступающего в озеро материала, то есть скорости седиментации. Однако эта формула работает только в случаях, когда скорость седиментации постоянно увеличивается, что подразумевает либо хозяйственную деятельность, либо какие-то физические изменения на водосборе. В нашем случае скорость седиментации в озере Лонгтибейто с доиндустриального периода остается примерно на одном уровне, в озере Гольцовое она снижается. Предложенная формула скорее относится к озерам, в которых потоки поступления Hg коррелируют со скоростью седиментации. В нашем случае в обоих озерах потоки слабо коррелируют со скоростью седиментации и довольно сильно с концентрациями, потерями при прокаливании и гранулометрией.

Фоновые потоки общей Hg (до 1890 г.) в исследованных озерах оказались похожими и оценены как  $5.1 \pm 0.9$  мкг/м<sup>2</sup> год для Гольцового и  $2.5 \pm 0.5$  мкг/м<sup>2</sup> год для Лонгтибейто. Поток Hg по сравнению с доиндустриальным периодом увеличился в Гольцовом в 3.9 раза. В Лонгтибейто это увеличение составило 16.4 раза, что необычно много для полярных озер и может свидетельствовать о возможном сильном антропогенном влиянии.

Для выявления условно “антропогенного” (не литогенного) потока была использована формула, предложенная Norton и Kahl (1987) для выделения антропогенных концентраций. Мы ее использовали для выделения потоков Hg не литогенного происхождения:

$$F_{HgA} = F_{HgT} - [F_{Sc}/F_{ScФ}]F_{HgФ},$$

где  $F_{HgA}$ ,  $F_{HgT}$  и  $F_{HgФ}$  – потоки “антропогенной” и общей Hg и фоновый поток Hg,  $F_{Sc}$  и  $F_{ScФ}$  – поток Sc в каждом слое и фоновый поток Sc.

Полученные результаты отражает нижняя кривая на рис. 1в. Аналогичные кривые были рассчитаны и построены для Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub> и MgO. Они практически совпали с кривой для Sc.

Заштрихованную область можно представить, как условно антропогенный поток Hg, то есть не литогенный. Этот поток помимо прямого атмосферного осаждения включает поступления с водосбора, а также поступления в результате оттаивания вечной мерзлоты.

Начало “антропогенного” атмосферного вклада Hg для разных озер варьирует и исследуемые озера не являются исключением. В Гольцовом

“антропогенный” поток до 1970-х годов незначителен, не превышает 3 мкг/м<sup>2</sup> год, за исключением периода начала XX века, когда поток Hg возрос почти до 20 мкг/м<sup>2</sup> год и сопоставим с современным потоком. Возможным объяснением этого повышения может быть потепление, затронувшее этот регион в начале века, когда граница вечной мерзлоты отступила на север, а температура мерзлых грунтов повысилась на 1.5–2 град. (Bengtsson et al., 2004). Максимум потепления достигло в 20–30 гг. XX в. Устойчивое климатическое потепление обычно приводит к увеличению среднегодовых значений температуры озерных вод. Это, в свою очередь, могло временно изменить трофический статус озера с олигосапробного на β-мезосапробный за счет интенсификации трофо-метаболических процессов протекающих в водной среде. Все это косвенно показано биоиндикационным методом на основе диатомового анализа (Моисеенко и Разумовский, 2019). Это также подтверждает увеличение потерь при прокаливании и гранулометрический анализ, показавший на этих глубинах резкий рост самой мелкой (<0.045 мм) фракции – с ~10 до 50% (рис. 1а). Если это возрастание потока действительно связано с потеплением, с оттаиванием вечной мерзлоты, то не совсем корректно относить этот поток к антропогенному.

Изменение условно литогенных потоков по данным колонок из исследованных озер находится в пределах 5–7 мкг/м<sup>2</sup> год в течение всего постиндустриального периода (рис. 1в). О незначительности литогенного вклада сообщали и другие исследователи (Lindqvist et al., 1991; Nater, Grigal, 1992; Swain et al., 1992).

В Гольцовом антропогенный поток Hg начинает постепенно возрастать примерно с 1970 г. с эпизодически резким увеличением около 1980 г. и для слоя 0–0.5 см достигает 17.3 мкг/м<sup>2</sup> год. Характерно, что поток ртути увеличился при снижении скорости седиментации. В Лонгтибейто поступление общей Hg начинает нарастать примерно с 1940-х годов, достигая к настоящему времени 41.5 мкг/м<sup>2</sup> год, что является довольно высоким для арктического термокарстового озера. Два эпизодических увеличения примерно в начале 1960-х и в конце 1970-х никак не сопровождалось изменениями в скорости седиментации, но коррелировали с потерями при прокаливании и гранулометрией. Повышенное поступление Hg в начале 1960-х сопровождается резким увеличением до 80% в составе отложений аргиллито-пелитовой фракции (<0.045 мм) и увеличением потерь при прокаливании, величина которых примерно в два раза выше, чем в Гольцовом. Два резких увеличения потока Hg в обоих озерах произошли примерно в одно время (конец 70-х и начало 80-х). Возможно, они были вызваны региональными

погодными явлениями — высоким уровнем осадков или теплым годом.

По литературным данным максимальные уровни накопления общей Hg в течение XX века в сети озер северо-востока США, колебались от 27.1 до 175.4 мкг Hg/м<sup>2</sup> в год. После учета фона и влияния фокусировки, диапазон максимальных скоростей накопления существенно сократился (10.4–66.3 мкг Hg/м<sup>2</sup> год) (Perry et al., 2005). По некоторым оценкам (NADP, 2004; Goodsite et al., 2013; Obrist et al., 2017) атмосферные выпадения Hg в Северной Америке составляют 7–11 мкг/м<sup>2</sup> год, что в несколько раз ниже потоков Hg, оцениваемых по озерным отложениям. По мнению ряда авторов (Fitzgerald et al., 2005; Perry et al., 2005; Outridge et al., 2005), это подразумевает, что во многие озера существенная часть Hg поступает с водораздела. Причем, доля этих поступлений превышает атмосферное осаждение.

Информация об атмосферном осаждении различных форм Hg в Российской Арктике, к сожалению, отсутствует. Поэтому делать какие-либо выводы об источниках повышенных потоков Hg в исследованных озерах затруднительно. Если сами значения фоновых и постиндустриальных потоков Hg в исследованных озерах укладываются в диапазон опубликованных значений для полярных озер (в основном для Северной Америки; (Muir et al., 2009; Kirk, Gleason, 2015)), то их соотношение превышает приводимые величины, особенно для Лонгтибейто. Можно предположить, что источником Hg могут служить факелы, сжигающие попутный газ, на нефтяных и газоконденсатных месторождениях Ямала. Однако разработка и освоение этих месторождений начались значительно позже, в середине 1970-х, (что по времени совпадает с резким увеличением потока Hg в обоих озерах).

**Гранулометрия.** Общее распределение гранулометрического состава по глубине для колонок со слоями толщиной 1 см представлено на рис. 1а. Короткие колонки с толщиной слоев 0.5 см, отбренные в тех же точках, исходно были предназначены для диатомового анализа. Часть материала этих колонок, была использована для определения Hg. Датировку этих колонок по <sup>210</sup>Pb не проводили, поэтому для ориентировки на рис. 2 приводится датирование, выполненное для длинных колонок, описанных выше. В соответствии с этой датировкой, колонка из озера Гольцовое охватывает период примерно с 1890 г., а из озера Лонгтибейто — примерно с 1940 г. Отсутствие точных дат и точного веса слоев не позволило оценить для этих колонок потоки Hg.

Более тонкие слои позволили провести более детальное определение общей Hg в верхней суглинистой части колонок. Общий характер распределения сохранился (рис. 2а), но появились и

некоторые отличия. В самом верхнем 0.5 см слое в обоих озерах концентрации Hg оказались самыми высокими — 78 нг/г (Гольцовое) и 75 нг/г (Лонгтибейто). Это повысило коэффициенты обогащения до 15 и 17, соответственно.

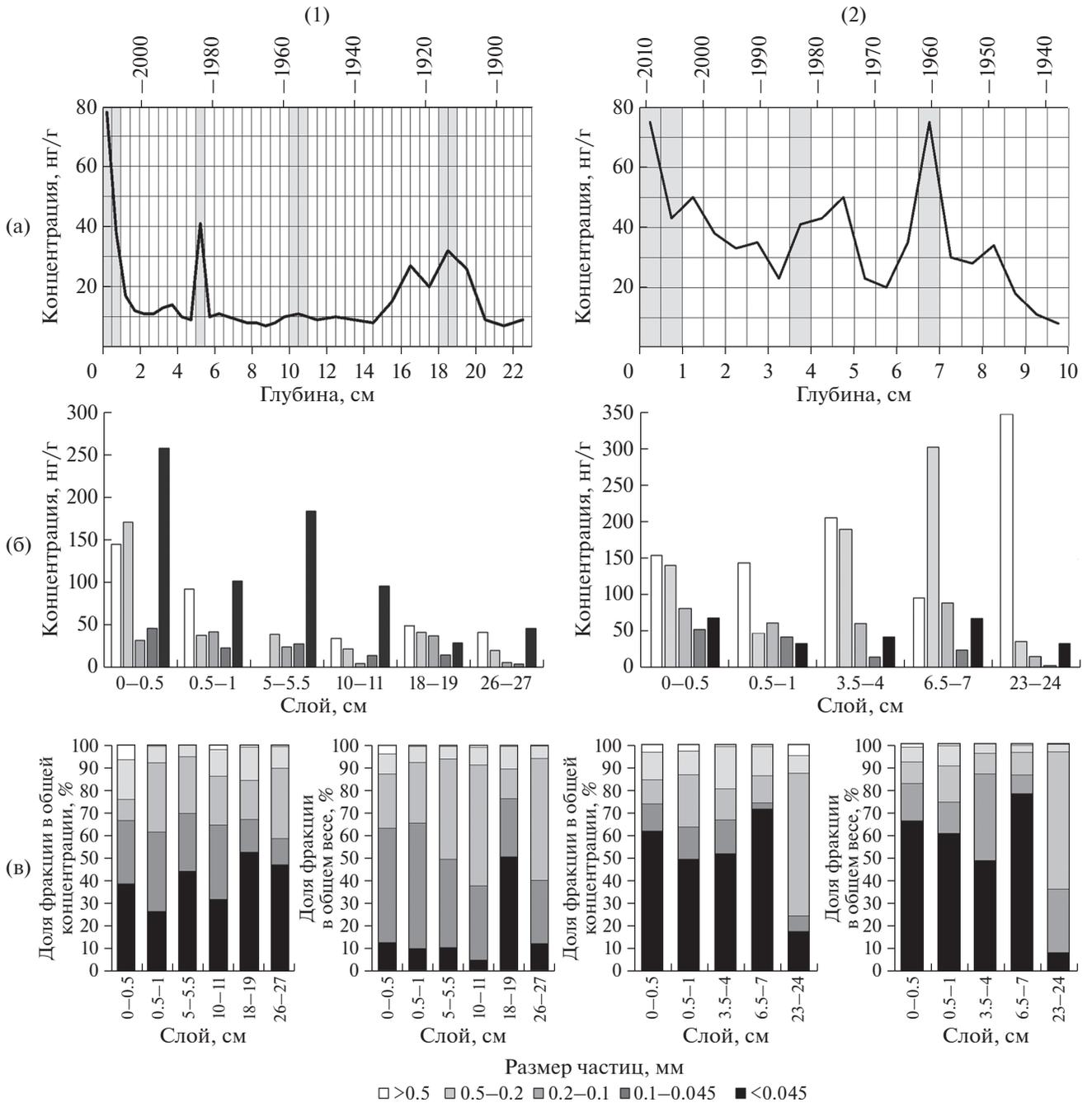
Для коротких колонок, представляющих верхний суглинистый слой донных отложений, более подробно была изучена связь концентрации с гранулометрическим составом в отдельных наиболее характерных слоях концентрационного профиля Hg. Рассев на 5 гранулометрических фракций проводили для 5 слоев в колонке из Гольцового и 4 слоев в колонке из Лонгтибейто. Еще по одному слою взяли из фоновой части длинных колонок для сравнения. В исследованных слоях определяли концентрацию Hg и вес каждой фракции, а затем по полученным данным рассчитывали общую концентрацию в слое и сравнивали с определенной при анализе всего слоя. Различие не превышало 15%.

Распределение концентраций между фракциями в каждом исследованном слое показало существенные различия между озерами, как и в случае с потоками Hg (рис. 2б, 2в).

В оз. Гольцовое самые высокие концентрации Hg найдены в самой мелкой алеврито-пелитовой фракции (<0.045 мм). Концентрации в этой фракции в четырех из пяти верхних слоев превышали общую концентрацию Hg в слое в 3 и более раз (рис. 2-1б, 2-1в). Даже в фоновом слое 26–27 см концентрация Hg в этой фракции превышала концентрацию во всем слое. В слое 18–19 см, где отмечалось повышенное поступление (поток) Hg (рис. 1б), концентрация Hg во фракции <0.045 мм оказалась ниже, чем во всех фракциях >0.1 мм, и ниже, чем в остальных исследованных слоях. Однако вес этой фракции составлял около 50% общего веса слоя, тогда как во всех остальных слоях вес самой мелкой фракции не превышал 13% (рис. 2-1в).

Интересно отметить появление в двух верхних слоях, 0–0.5 и 0.5–1 см, крупных частиц размером >0.2 мм с относительно высокими концентрациями Hg. Причем, в слое 0–0.5 см вклад этих частиц в общую концентрацию составил 24%, а вес составил 12.5% от общего веса слоя.

В оз. Лонгтибейто концентрации в самой мелкой фракции не превышали общие концентрации Hg в слое, но по массе в разных слоях доля фракции составляла от 50 до 80% и коррелировала с общей концентрацией в слое (рис. 2-2в). В этом случае не соблюдается линейное соотношение между концентрацией и размером частиц из-за обратного соотношения количества активных центров (то есть площади поверхности) и размера частиц (диаметра) (Förstner, Salomons, 1980; Groot et al., 1982). В Лонгтибейто самая мелкая фракция играет основную роль в общей концен-



**Рис. 2.** Гранулометрический анализ донных отложений озер Гольцовое (1) и Лонгтибейто (2). а – распределение Hg в верхнем суглинистом слое и датировка; б – концентрации Hg в отдельных гранулометрических фракциях выбранных слоев; в – доля каждой фракции в общей концентрации и в общей массе в слое.

трации в слое не за счет самой высокой концентрации, а за счет большой массовой доли.

Еще одной особенностью колонки из Лонгтибейто является присутствие крупных частиц (>0.2 мм) с высокими концентрациями Hg во всех гранулометрически исследованных слоях. Концентрации Hg в этих частицах менялись в разных слоях от 98 до 349 нг/г для фракции

>0.5 мм и от 38 до 304 нг/г для фракции 0.2–0.5 мм. Самые высокие концентрации (349 нг/г) имели частицы размером >0.5 мм в фоновом слое (23–24 см), правда их массовая доля составляла всего 0.2% в общей массе слоя.

Несмотря на различия в распределении частиц в сумме две самые мелкие фракции (<0.045 и 0.045–0.1 мм) в обоих озерах во всех слоях вноси-

ли в общую концентрацию Hg до 70%, а вклад фракции <0.045 мм составлял от 27 (0.5–1 см) до 53% (18–19 см) в Гольцовом и от 50 (0.5–1 см) до 72% (6.5–7 см) в Лонгтибейто.

### ВЫВОДЫ

В арктическом регионе России данные по антропогенному атмосферному осаждению Hg практически отсутствуют. Поэтому архивы осадконакопления, которые представляют озерные отложения, являются важным источником, позволяющим проследить изменение поступления Hg и их связь с изменением климата. Основной проблемой остается выделение реально антропогенной составляющей.

В настоящее время нет единого мнения относительно того, в какой степени и насколько точно отложения арктических озер отражают потоки Hg из атмосферы. Полученные результаты и литературные данные свидетельствуют о переоценке озерными отложениями атмосферного осаждения Hg. Источниками такого дополнительного поступления Hg могут быть поступления с водораздела, оттаивание вечной мерзлоты или другие факторы.

Одним из объяснений резкого повышения содержания Hg в самом верхнем слое отложений исследованных озер, при общем снижении общемировых выбросов за последние 20 лет, может быть увеличение масштабов нефте- и газодобычи в этом регионе или влияние Норильского промышленного района.

Несмотря на различия между озерами в гранулометрическом составе отложений (как по концентрации, так и по весу), концентрацию общей Hg в основном определяет фракция частиц размером менее 0.1 мм.

Если концентрация общей Hg является качественной характеристикой с точки зрения объяснения процессов осаждения и накопления в отложениях, то она является количественной с точки зрения токсичности и влияния на биоту.

*Исследования выполнены в рамках Госзадания ГЕОХИ РАН № 0137-2019-0008 и при финансовой поддержке гранта РФФИ 18-05-60012.*

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

Атлас Ямало-Ненецкого автономного округа. Омск: ФГУП "Омская картографическая фабрика", 2004. 303 с.

Даувальтер В.А., Кашулин Н.А., Денисов Д.Б. (2015) Тенденции изменения содержания тяжелых металлов в донных отложениях озер Севера Фенноскандии в последние столетия. *Труды Карельского научного центра РАН*. (9), 62–75.

Даувальтер В.А., Кашулин Н.А. (2018) Оценка экологического состояния Арктической пресноводной си-

стемы по результатам исследований содержания тяжелых металлов в донных отложениях. *Геохимия*. (8), 805–819.

Dauvalter V.A., Kashulin N.A. (2018) Assessment of the Ecological State of the Arctic Freshwater System Based on Concentrations of Heavy Metals in the Bottom Sediments. *Geochem. Int.* **56**(8), 842–856.

Моисеенко Т.И., Разумовский Л.В. (2019) Реконструкция геоэкологических изменений в Западной Сибири по диатомовым комплексам из озерных отложений. *ДАН*. **487**(2), 192–197.

Московченко Д.В., Бабушкин А.Г. (2012) Особенности формирования химического состава снеговых вод на территории Ханты-Мансийского автономного округа. *Криосфера Земли*. **16**(1), 71–81.

Таций Ю.Г., Моисеенко Т.И., Разумовский Л.В., Борисов А.П., Хорошавин В.Ю., Баранов Д.Ю. (2020) Донные отложения арктических озер Западной Сибири как индикаторы изменений окружающей среды. *Геохимия*. **65**(4), 362–378

Tatsii Yu.G., Moiseenko T.I., Razumovskii L.V., Borisov A.P., Khoroshavin V.Yu., Baranov D.Yu. (2020) Bottom Sediments of the West Siberian Arctic Lakes as Indicators of Environmental Changes. *Geochem. Int.* **58**(4), 408–422.

Таций Ю.Г., Стахеев Ю.И. (2001) Определение содержания ртути в пробах сложного состава. *Партнеры и конкуренты*. (4), 29–34.

Allen-Gil S.M., Ford J., Lasorsa B.K., Monetti M., Vlasova T., Landers D.H. (2003) Heavy metal contamination in the Taimyr Peninsula, Siberian Arctic. *Sci. Tot. Environ.* **301**, 119–138.

AMAP. AMAP assessment 2011: mercury in the Arctic. Oslo, Norway: Arctic Monitoring and Assessment Programme (AMAP). 2011. 193 p.

Bengtsson L., Semenov V.A., Johannessen O.M. (2004) The Early Twentieth-Century Warming in the Arctic—A Possible Mechanism. *J. Climate*. **17**(20), 4045–4057.

Biester H., Bindler R., Martinez-Cortizas A., Engstrom D.R. (2007) Modeling the past atmospheric deposition of mercury using natural archives. *Environ. Sci. Technol.* **41**, 4852–4860.

Burke S.M., Zimmerman C.E., Branfireun B.A., Koch J.C., Swanson H.K. (2018) Patterns and controls of mercury accumulation in sediments from three thermokarst lakes on the Arctic Coastal Plain of Alaska. *Aquatic Sciences*. **80**, 1. <https://doi.org/10.1007/s00027-017-0553-0>

Drevnick P.E., Cooke C., Barraza D., Blais J., Coale K., Cumming B. et al (2016) Spatiotemporal patterns of mercury accumulation in lake sediments of western North America. *Sci. Total Environ.* **568**, 1157–1170.

Fitzgerald W.F., Engstrom D.R., Lamborg C.H., Tseng C.-M., Balcom P.H.; Hammerschmidt C.R. (2005) Modern and historic atmospheric mercury fluxes in northern Alaska: Global sources and Arctic depletion. *Environ. Sci. Technol.* **39**, 557–568.

Förstner U., Salomons W. (1980) Trace metal analysis on polluted sediments. Part I: Assessment of sources and intensities. *Environ. Technol. Lett.* **1**, 494–505.

Goodsite M.E., Outridge P.M., Christensen J.H., Dastoor A., Muir D., Travnikov O., Wilson S. (2013) How well do environmental archives of atmospheric mercury deposition in the Arctic reproduce rates and trends depicted by atmo-

- spheric models and measurements? *Sci. Tot. Environ.* **452–453**, 196–207.
- Groot de A.J., Zschuppe K.H., Salomons W. (1982) Standardization of methods of analysis for heavy metals in sediments. *Hydrobiologia.* **92**, 689–695.
- Hermanson M.H. (1998) Anthropogenic mercury deposition to Arctic lake sediments. *Water Air Soil Pollut.* **101**, 309–321.
- Johansson, K. (1985) Mercury in sediment in Swedish forest lakes. *Verh. Int. Ver. Theor. Angew. Limnol.* № 22. 2359–2363.
- Kirk J., Gleason A. (2015) Tracking Long-range Atmospheric Transport of Contaminants in Arctic Regions Using Lake Sediments. In: Blais J., Rosen M., Smol J. (eds) *Environmental Contaminants. Developments in Paleoenvironmental Research*, vol 18. Springer, Dordrecht. 223–262. [https://doi.org/10.1007/978-94-017-9541-8\\_10](https://doi.org/10.1007/978-94-017-9541-8_10)
- Lindqvist O., Johansson K., Aastrup M., Andersson A., Bringmark L., Hovsenius G., Hakanson L., Iverfeldt A., Meili M., Timm B. (1991) Mercury in the Swedish environment — Recent research on causes, consequences and corrective methods. *Water Air Soil Pollut.* **55**(1–2), 1–261.
- Landers D., Gubala C., Verta M., Lucotte M., Johansson K., Vlasova T., Lockhart W.L. (1998) Using lake sediment mercury flux ratios to evaluate the regional and continental dimensions of mercury deposition in Arctic and boreal ecosystems. *Atmos. Environ.* **32**(5), 919–928.
- Lockhart W.L., Macdonald R.W., Outridge P.M., Wilkinson P., DeLaronde J.B., Rudd J.W.M. (2000) Tests of the fidelity of lake sediment core records of mercury deposition to known histories of mercury contamination. *Sci. Total Environ.* **260**, 171–180.
- Lockhart W.L., Wilkinson P., Billeck B.N., Danell R.A., Hunt R.V., Brunskill G.J., Delaronde J., St. Louis V. (1998) Fluxes of mercury to lake sediments in central and northern Canada inferred from dated sediment cores. *Biogeochemistry* **40**, 163–173.
- Muir D., Wang X., Yang F., Nguyen N., Jackson T., Evans M., Douglas M., Köck G. (2009) Spatial trends and historical deposition of mercury in eastern and northern Canada inferred from lake sediment cores. *Environ. Sci. Technol.* **43**, 4802–4809.
- Nater E.A., Grigal D.F. (1992) Regional trends in mercury distribution across the Great Lakes states, north central USA. *Nature.* **358**, 139–141.
- National Atmospheric Deposition Network (NADP). (2004). <http://nadp.sws.uiuc.edu/mdn/>
- Norton S., Kahl J. (1987) A Comparison of Lake Sediments and Ombrotrophic Peat Deposits as Long-Term Monitors of Atmospheric Pollution. In *New Approaches to Monitoring Aquatic Ecosystems*, ed. T. Boyle (West Conshohocken, PA: ASTM International, 1987), 40–57.
- Obrist D., Agnan Y., Jiskra M., Olson C.L., Colegrove D.P., Hueber J., Moore C.W., Sonke J.E., Helmig D. (2017) Tundra uptake of atmospheric elemental mercury drives Arctic mercury pollution. *Nature.* **547**(7662), 201. <https://doi.org/10.1038/nature22997>
- Outridge P., Stern G., Hamilton P., Percival J., McNeely R., Lockhart W. (2005) Trace metal profiles in the varved sediment of an Arctic lake. *Geochim. Cosmochim. Acta.* **69**, 4881–4894.
- Outridge P.M., Rausch N., Percival J.B., Shotyk W., McNeely R. (2011) Comparison of mercury and zinc profiles in peat and lake sediment archives with historical changes in emissions from the Flin Flon metal smelter, Manitoba, Canada. *Sci. Total Environ.* **409**, 548–563.
- Perry E., Norton S.A., Kamman N.C., Lorey P.M., Driscoll C.T. (2005) Deconstruction of Historic Mercury Accumulation in Lake Sediments, Northeastern United States. *Ecotoxicology.* **14**, 85–99.
- Reimann C., de Caritat P. Distinguishing between natural and anthropogenic sources for elements in the environment: regional geochemical surveys versus enrichment factors // *Sci. Tot. Environ.* 2005. V. 337. P. 91–107.
- Rognerud S., Skotvold T., Fjeld, Norton S.A., Hobæk A. (1998) Concentrations of trace elements in recent and pre-industrial sediments from Norwegian and Russian Arctic lakes. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.* **55**, 1512–1523.
- Rydberg J., Gälman V., Renberg I., Lambertsson L., Martínez-Cortizas, A. & Bindler R., 2008. Assessing the Stability of Mercury and Methylmercury in a Varved Lake Sediment Deposit. *Environmental Science and Technology.* **42**(12), 4391–4396.
- Sanei H., Outridge P.M., Dallimore A., Hamilton P.B. (2012) Mercury-organic matter relationships in the pre-pollution sediments of thermokast and tundra lakes from the Mackenzie River Delta. *Biogeochemistry.* **107**, 149–164.
- Swain, E.B., Engstrom, D.R., Brigham, M.E., Henning, T.A. and Brzonik, P.L. (1992) Increasing Rates of Atmospheric Mercury Deposition in Midcontinental North America. *Science.* **257**, 784–787.