

## К СОСТОЯНИЮ ЗАГРЯЗНЕНИЯ ГЛОБАЛЬНЫМИ $^{90}\text{Sr}$ , $^{137}\text{Cs}$ и $^{239, 240}\text{Pu}$ ЛАДОЖСКОГО ОЗЕРА

© 2012 г. Н. А. Бакунов, Д. Ю. Большинов, А. С. Макаров

Государственное учреждение РФ "Арктический и Антарктический научно-исследовательский институт"  
199397 Санкт-Петербург, ул. Беринга, 38

E-mail: aaricoop@aari.nw.ru

Поступила в редакцию 26.10.2010 г.

Исследовано состояние радиоактивного загрязнения Ладожского оз. Полупериод очищения вод озера от  $^{90}\text{Sr}$  составил 21.7 года. Отношение запаса  $^{90}\text{Sr}$  в объеме вод озера к запасу в илах (слой 0–10 см) равно 2 : 1. Воды озера очищались от глобального  $^{137}\text{Cs}$  медленнее, чем от  $^{137}\text{Cs}$  аварийного выброса с ЧАЭС из-за хронического пополнения запаса глобального  $^{137}\text{Cs}$  выпадениями из атмосферы. Поведение  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{239, 240}\text{Pu}$  в грунтах дна согласовывалось с геохимической природой элементов. По распределению  $^{239, 240}\text{Pu}$  в грунтах дна седиментация веществ нерадиационной природы определена в 0.3 и 0.5 мм/год на свале глубин и равнинного рельефа соответственно.

*Ключевые слова:* озеро, искусственные радионуклиды, кумулятивный запас, вода, грунты дна, очищение вод.

За полувековой период пребывания долгоживущих искусственных радионуклидов (ИРН) в геосфере земли выявлены основные тенденции и закономерности перераспределения в природных средах радиоактивной примеси, поступившей на поверхность земли в составе глобальных выпадений. Однако отдельные вопросы миграции радиоактивной примеси в водоемах остаются недостаточно исследованными.

При мониторинге альпийской горной системы [19], загрязненной "чернобыльским"  $^{137}\text{Cs}$ , выявился ряд особенностей в контаминации озер и процессах очищения их вод. Эти особенности проявились для мелководных озер в относительно быстром вторичном загрязнении водоемов  $^{137}\text{Cs}$  за счет поверхностного стока, а для глубоководных – различиями в скорости очищения вод от  $^{137}\text{Cs}$ . Озера со средней глубиной более 20 м относят к глубоководным. Природные свойства глубоководных озер (глубина, водный режим, трофический статус) влияют на процесс естественной дезактивации водоемов от  $^{137}\text{Cs}$ .

В России мониторинг глубоководных озер, за исключением Каспийского моря [21], ограничивался наблюдениями за уровнями  $^{90}\text{Sr}$  (реже  $^{137}\text{Cs}$ ) в воде рек с истоком из таких озер [1, 7]. Радиологических съемок глубоководных озер с одновременным отбором проб воды с поверхности и глубин, на дне озерных котловин и в биоте не проводилось. Поэтому вопросы приходно-расходных частей баланса ИРН в глубоководных водоемах, распределения их между компонентами озерной

системы и динамики ее естественного очищения оказались неизученными.

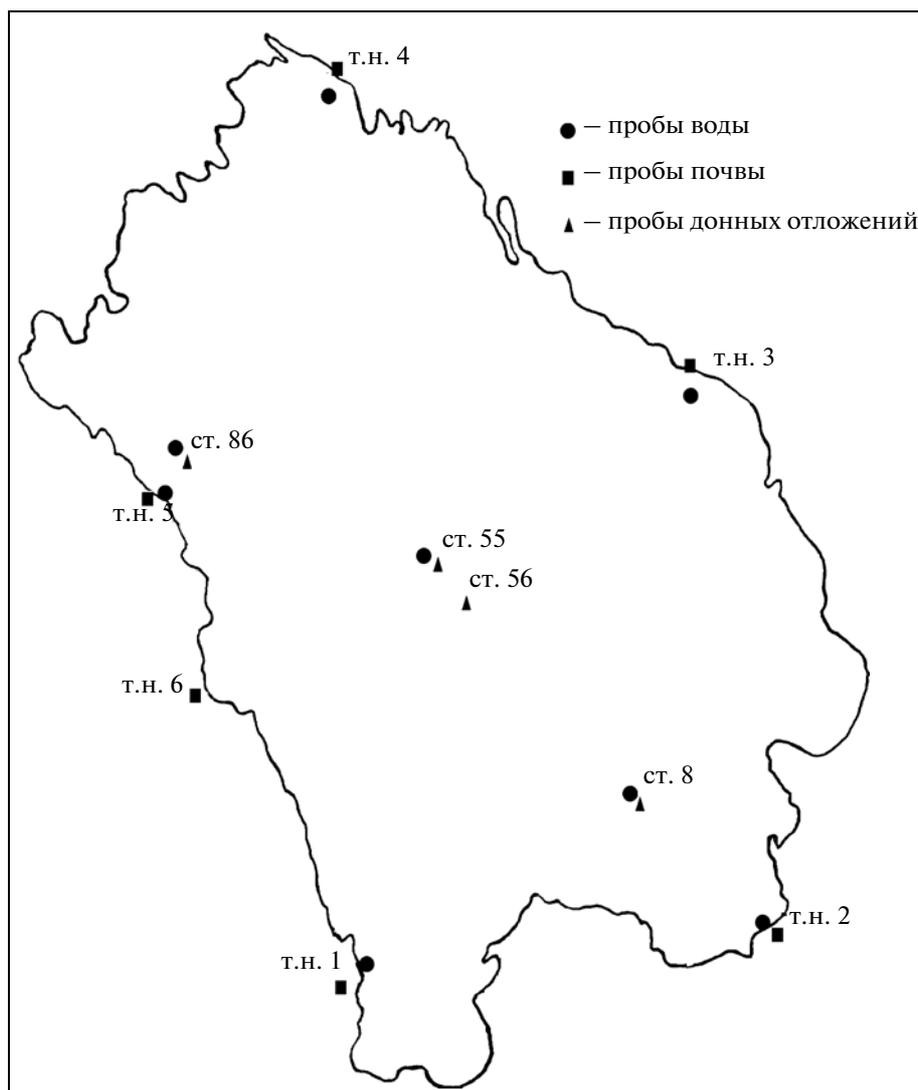
В задачу исследований входило изучение состояния загрязнения Ладожского оз.  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239, 240}\text{Pu}$  в целях установления распределения этих ИРН между компонентами водоема, выяснения направленности миграционного перераспределения ИРН между средами вода–дно и определения временных характеристик процесса естественной деконтаминации озера.

Объекты настоящего исследования – запасы  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{239, 240}\text{Pu}$  в почвенном покрове водосбора озера, содержание  $^{90}\text{Sr}$  в р. Неве, концентрации  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в воде и донных отложениях (ДО) Ладожского оз. В работе использованы представления о геохимической природе радиоактивной примеси ( $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239, 240}\text{Pu}$ ) и физико-химические механизмы переноса ее в системах водосбор – водоем – отложения дна, а так же результаты собственных исследований по контаминации водоема этими ИРН.

### МАТЕРИАЛ И МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЙ

Изучение загрязнения Ладожского оз. состояло из двух этапов. На первом этапе проводилась инвентаризация источников поступления ИРН в водоем, на втором – исследовались результаты экспериментальных работ, относящиеся к определениям ИРН в воде озера, его ДО и к расчетам величин запасов радионуклидов в этих средах.

Отбор проб воды и ДО проводился в октябре 2008 г. с борта научно-исследовательского судна



Карта-схема Ладожского оз. с расположением точек отбора проб.

“Талан” Института озероведения РАН, а в марте 2009 г. — с прибрежного льда на отметках глубин более 5 м (рисунок). По периметру побережья озера взято 6 проб почвы с шагом по глубине 10 см. Пробы воды, отобранные с поверхности озера в полиэтиленовые канистры емкостью 28 л, сразу же консервировались концентрированной кислотой.

Для взятия проб ДО использовался пробоотборник грунта (фирма “UWITEC”, Австрия) диаметром 60 мм. Колонки ДО разделялись на слои грунта с шагом 2 см для дальнейших определений в них ИРН. Отбор ДО с судна проводился в глубоководной части озера, так как на нее приходится более 95% объема вод и ~70% площади дна озерной котловины [13, 17]. Определение ИРН в пробах воды и грунта проводилось по лицензированным методикам в Испытательном лабораторном центре ФГУН “Санкт-Петербургский научно-исследо-

вательский институт радиационной гигиены им. П.В. Рамзаева” и в НПО “Тайфун” (г. Обнинск). Относительная ошибка определения  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{239, 240}\text{Pu}$  в образцах воды и грунта с низкой концентрацией не превышала 45%.

Определения  $^{137}\text{Cs}$  в пробах почвы, взятых по периметру озера (рисунок), показали, что его содержание в слое 0–10, 10–20 и 20–30 см позволяет исключить возможность локального поступления (пятно)  $^{137}\text{Cs}$  на побережье озера и его поверхность. Усредненное значение плотности отложения  $^{137}\text{Cs}$  для шести проб почвы составило  $2.9 \pm 0.91$  кБк/м<sup>2</sup>. При таком фоновом запасе  $^{137}\text{Cs}$  в почвенном покрове ожидаемые флуктуации его концентраций в ДО озера могут обуславливаться только свойствами грунтов и внутриводными процессами, а не внешним фактором поступления  $^{137}\text{Cs}$  из атмосферы.

**Таблица 1.** Кумулятивный запас ИРН, кБк/м<sup>2</sup>, в почве прибрежных районов Ладожского оз.

Нуклид	Дата, район наблюдений, плотность отложения ИРН, кБк/м <sup>2</sup>				1974 г. *****, отложение ИРН на поверхность озера, ТБк
	1974 г.*, береговая зона озера	1976 г.**, Карельский перешеек	1985/1986 г.***, пос. Зеленогорск	2008 г.*****, береговая зона озера	
$^{137}\text{Cs}$	3.7–4.6	2.68	2.40/7.05	2.9	73.4
$^{90}\text{Sr}$	2.0–2.5	1.45	1.2/1.30	—	39.7
$^{239, 240}\text{Pu}$	0.086	0.056	0.050/—	—	1.5

\* Данные аэросъемки  $^{137}\text{Cs}$  [5],  $^{90}\text{Sr} = ^{137}\text{Cs} 0.54$ ,  $^{239, 240}\text{Pu} = ^{137}\text{Cs} 0.0208$  [10].

\*\* Данные анализа  $^{137}\text{Cs}$  в пяти пробах с Карельского перешейка [18],  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{239, 240}\text{Pu}$  – по расчету.

\*\*\* Данные анализа  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в слое почвы 0–25 см [1], в знаменателе – сумма нуклидов от глобального и чернобыльско-го источников.

\*\*\*\* Данные анализа  $^{137}\text{Cs}$  в слое почвы 0–30 см.

\*\*\*\*\* Расчет отложения глобальных ИРН на поверхность озера по запасу  $^{137}\text{Cs}$  в почве на 1974 г. [5].

### РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

При воздушном источнике загрязнения озер и водохранилищ количества ИРН, поступивших в водоемы, определяется по отложению ИРН на почвы побережья. Результаты мониторинга  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в почвенном покрове территорий, примыкающих к побережью Ладожского оз., приведены в табл. 1.

В 1974 г. уровень  $^{137}\text{Cs}$  на побережье представлен концентрацией 3.7 кБк/м<sup>2</sup> для северного участка и 4.6 кБк/м<sup>2</sup> для его на южной и юго-восточной части [5]. По этому диапазону  $^{137}\text{Cs}$  уровни  $^{90}\text{Sr}$  равны 2.0 и 2.5 кБк/м<sup>2</sup> соответственно.

Для пяти пунктов Карельского перешейка (Сосново, Зеленогорск, Лебяжье, Кировское, Ленинград) концентрации  $^{137}\text{Cs}$  в почвах [18] на 1976 г. равнялась  $2.68 \pm 0.16$  кБк/м<sup>2</sup>. К 1985 г. запас глобальных  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в песчаной почве (г. Зеленогорск) составил 1.2 и 2.4 кБк/м<sup>2</sup> соответственно. Считается, что до 1980 г. в почвах поддерживалось относительное постоянство запаса  $^{137}\text{Cs}$  за счет спорадических поступлений его из атмосферы после ядерных испытаний Китая и Франции [10].

Определения  $^{239, 240}\text{Pu}$  в почвах Ленинградской обл. относятся к пост-чернобыльскому периоду мониторинга почв. В районе Ленинградской АЭС уровень  $^{239, 240}\text{Pu}$  в почве на 1990 г. составил 114–262 Бк/м<sup>2</sup> [9]. По уровню  $^{137}\text{Cs}$  и отношению  $^{239, 240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$  содержание  $^{239, 240}\text{Pu}$  в почвенном покрове равно 0.05–0.086 кБк/м<sup>2</sup>. Отложение глобальных  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{239, 240}\text{Pu}$  на поверхность озера составило 39, 7, 73.4 и 1.5 ТБк соответственно (табл. 1).

В 1986 г. в почвах устьевых участков рек Свирь, Паша, Оять, Волхов, Вуокса отложение “чернобыльского”  $^{137}\text{Cs}$  повысило запас радионуклида до 7 кБк/м<sup>2</sup> [2]. Уровень  $^{90}\text{Sr}$  в почве увеличился незначительно – с 1.20 до 1.28 кБк/м<sup>2</sup> [1]. “Черно-

быльский”  $^{90}\text{Sr}$  в количестве 0.08 кБк/м<sup>2</sup> не приводил к заметному изменению загрязнения озера  $^{90}\text{Sr}$ .

Значения “чернобыльского” и глобального  $^{137}\text{Cs}$  на зеркало вод Ладожского оз. (на даты поступлений) были относительно близкими (~74.1 и ~73.4 ТБк), что позволяет в первом приближении оценить скорость очищения озерных вод от  $^{137}\text{Cs}$ . Для глобального  $^{137}\text{Cs}$  потребовалось ~20 лет (1964–1985 гг.), чтобы его концентрации в воде снизились от максимальных значений в 1963–1964 гг. до уровня, находящегося на пределе обнаружения (~2 Бк/м<sup>3</sup>) используемого метода контроля [1].

Для «чернобыльского»  $^{137}\text{Cs}$  потребовалось меньшее время для очищения вод. За 5 лет (1986–1991 гг.) концентрация  $^{137}\text{Cs}$  в воде озера понизилась до 1.92 Бк/м<sup>3</sup>. Дальнейшее снижение уровня замедлилось и к 2001 г. составило  $0.99 \pm 0.45$  Бк/м<sup>3</sup> [1]. По-видимому, процесс ремобилизации  $^{137}\text{Cs}$  из кумулятивного запаса дна способствовал замедлению очищения ладожских вод, так как основное депо  $^{137}\text{Cs}$  – грунты дна. Естественное очищение Ладожского оз. от  $^{137}\text{Cs}$  в случае разового его поступления на поверхность водоема происходило в ~5 раз быстрее, чем в условиях хронического (~1965–1980 гг.) пополнения в озере его запаса за счет выпадений из атмосферы.

С 1961 по 1985 г. наблюдения за  $^{90}\text{Sr}$  в воде Невы, вытекающей из Ладожского оз., были единственным источником опытных данных для системы озеро–река. Исток Невы – мелководная бух. Петрокрепость. Поэтому в годы максимального загрязнения гидросферы (1961–1964 гг.) глобальными ИРН их значения в воде Невы могли отличаться от значений для вод глубоководных районов озера, так как на мелководье озера приходится не более 5.5% общего объема вод.

В Ладожское оз. поступают воды из озер Сайма, Ильмень, Онежское. Суммарная площадь зеркала этих озер (~12600 км<sup>2</sup>) не намного меньше, чем у Ладожского оз. (17800 км<sup>2</sup>) [13]. При

**Таблица 2.** Динамика  $^{90}\text{Sr}$  в воде Ладожского оз. по результатам расчета

Годы	$^{90}\text{Sr}$ в озере		Запас $^{90}\text{Sr}$ в воде озера, % запаса 1965 г.
	вода, Бк/м <sup>3</sup>	запас в объеме вод, ТБк	
1965	41.4	37.67	—
1970	35.3	31.95	84.8
1975	30.1	27.24	72.3
1980	25.6	23.2	61.5
1985	21.8	19.8	52.7
1990	16.5	15.1	40.2
1995	12.6	11.4	30.3
2000	9.5	8.7	23.2
2005	7.2	6.4	17.0
2008–2009*	7.5	6.7*	17.8*

\* Запас определен по опытным значениям уровней  $^{90}\text{Sr}$  в воде озера, восемь проб.

аэральном источнике загрязнения большая площадь зеркала озер-доноров усиливает загрязнение вод озера реципиента.

В 1963 г. в воде Невы наблюдался максимальный уровень  $^{90}\text{Sr}$  – 59.3 Бк/м<sup>3</sup>, который к 1964 г. понизился до 32.2 Бк/м<sup>3</sup>. В водах Невы не произошло 2–3-кратного снижения содержания  $^{90}\text{Sr}$  в воде, отмечаемого к этому году для больших рек, не вытекающих из больших озер. Запасы  $^{90}\text{Sr}$  в озере и в озерах-донорах были достаточными, чтобы в значительной степени компенсировать резкое уменьшение поступления  $^{90}\text{Sr}$  из атмосферы.

Содержание  $^{90}\text{Sr}$  в воде Невы [1, 7, 14, 15] на даты 1, 2, 12–23-го года после максимума, приходящегося на 1962–1963 гг., равнялось 59.3, 32.2, 26.0, 27.0, 20.0, 24.0, 27.0, 27.0, 20.0, 21.0 Бк/м<sup>3</sup> соответственно. Изменение уровней  $^{90}\text{Sr}$  в этом временном ряду аппроксимировано экспонентой с полупериодом  $T_{ec}$  уменьшения концентрации, равным 21.7 года. При аппроксимации допускалось, что снижение концентрации в озере и реке, из него вытекающей, обусловлено не физическим распадом  $^{90}\text{Sr}$ , а естественной направленностью природных процессов, приводящих к уменьшению его содержания в воде

$$C_t = C_0 \exp(-0.693 t / T_{ec}),$$

где  $C_t$  – концентрация  $^{90}\text{Sr}$  в воде (Бк/м<sup>3</sup>) на время  $t$ ;  $t$  – год наблюдений;  $C_0$  – начальная на 1964 г. концентрация  $^{90}\text{Sr}$  в воде (Бк/м<sup>3</sup>), поправка на распад которой задается лишь после 1985 г. – завершения очищения резервуара стратосферы от продуктов деления;  $T_{ec}$  – полупериод снижения кон-

центрации  $^{90}\text{Sr}$  в воде (годы).  $C_0 = 45.6$  Бк/м<sup>3</sup>,  $T_{ec} = 21.7$  года.

Запасы глобального  $^{90}\text{Sr}$  в водоеме (1965–1980 гг.) пополнялись спорадическими поступлениями из атмосферы. Этот же канал пополнял запас  $^{90}\text{Sr}$  в приповерхностном слое почв (0–2 см), служащим источником ионов  $^{90}\text{Sr}$ , вовлекаемых в поверхностный сток. Часть  $^{90}\text{Sr}$  поступала в речные и озерные воды за счет ремобилизации его запаса в грунтах дна. В совокупности эти процессы применительно к водному мигранту  $^{90}\text{Sr}$  обусловили значительную буферность системы водосбор – глубоководное озеро – сток, которая привела к замедленному очищению озерных вод от  $^{90}\text{Sr}$  [1, 4, 7]. Из сопоставления показателя обмена вод Ладожского оз., равного 10–12 годам, и полупериода  $T_{ec}$  очищения вод от  $^{90}\text{Sr}$  следует, что воды озера обновлялись в ~3.5 раза быстрее снижения в них содержания  $^{90}\text{Sr}$ . Результаты расчетов  $^{90}\text{Sr}$  в воде озера и его запаса в объеме вод на даты 1970, 1975, 1980, 1985, 1990, 2000 и 2005 гг. приведены в табл. 2.

По расчету уровень  $^{90}\text{Sr}$  в воде озера на 1985 г. равен 21.8, а по опытным данным для воды Невы [1] – 21.0 кБк/м<sup>3</sup>. Содержание  $^{90}\text{Sr}$  в поверхностных водах озера в 1991 и 2001 гг. равнялось 18.2 и 11.1 Бк/м<sup>3</sup> соответственно [1], что близко к расчетным значениям уровней на 1990 и 2000 гг. (табл. 2). Опытные значения уровней  $^{90}\text{Sr}$  относятся к поверхностному слою воды, а расчетные – к усредненному для всего объема вод озера.

В 2001 г. [1], в отличие от 1990 г., отмечалась высокая сходимость между определениями  $^{90}\text{Sr}$  в водах озера и р. Невы в интервале 9–13 при среднем 11 Бк/м<sup>3</sup>. В октябре 2008 г. концентрация  $^{90}\text{Sr}$  в воде озера равнялась  $8.0 \pm 1.0$ , а в марте 2009 г. –  $7.2 \pm 1.9$  Бк/м<sup>3</sup> (табл. 3). В целом отмечалось удовлетворительное согласие между данными мониторинга  $^{90}\text{Sr}$  в воде и расчетами его концентраций по формуле. На 1991, 2001 [2] и 2008–2009 гг. уровни  $^{90}\text{Sr}$  в воде озера составили по расчету 15.6, 9.0 и 5.8 и по опыту 18.2, 11.1 и 7.5 Бк/м<sup>3</sup> соответственно.

Данные табл. 3 позволяют проанализировать изменения запаса  $^{90}\text{Sr}$  через 10, 20, 30 и 40 лет после контаминации озера. На обозначенные промежутки времени (табл. 3) в воде озера находилось соответственно 72.3, 52.7, 30.2 и 17.0% исходного запаса  $^{90}\text{Sr}$ . Замедленное снижение запаса  $^{90}\text{Sr}$  в воде глубоководного озера принципиально отличается от наблюдаемого в неглубоких озерах (Н ~ 2 м) Урала [11] и брянского Полесья [6]. Через 2–3 года после контаминации озер в воде находилось не более 5–17%  $^{90}\text{Sr}$ , отложившегося на зеркало вод.

Определение запасов ИРН в ДО и отношения запасов в средах вода–дно для глубоководных

Таблица 3.  $^{90}\text{Sr}$  в поверхностных водах Ладожского оз. в 2008–2009 гг.

Номер станции, лимнический район	Дата, координаты (пункт)	Глубина, м	$^{90}\text{Sr}$ , Бк/м <sup>3</sup>
86, глубоководный	15.10.2008, 61°0.1' с.ш., 30°23' в.д.	64.5	7 ± 3
55, озерного уступа	14.10.2008, 60°47' с.ш., 31°32' в.д.	66.7	8 ± 4
8, мелководный	11.10.2008, 60°20' с.ш., 32°8' в.д.	4	9 ± 4
1, мелководный	22.03.2009, 60°08' с.ш., 31°05' в.д. (Кокорево)	3	8 ± 4
2, мелководный	27.03.2009, 60°09' с.ш., 32°29' в.д. (Сясьстрой)	7.3	9 ± 4
3, мелководный	28.03.2009, 61°10' с.ш., 32°17' в.д. (Видлица)	11.0	8 ± 4
4, мелководный	28.03.2009, 61°41' с.ш., 30°59' в.д. (Ляскеля)	5.2	4 ± 2
5, переходный	30.03.2009, 60°58' с.ш., 30°17' в.д. (Моторное)	27	7 ± 3

озер осложнены неравномерным распределением ИРН на дне озерных котловин, неодинаковым проникновением их в глубь толщи озерных отложений и разнообразием в свойствах донных грунтов. Поэтому для таких озер более корректны оценки запасов ИРН в водной массе, чем в грунтах дна. В то же время без оценок содержания ИРН в ДО глубоководных озер, имеющих сток, остается открытым вопрос направленности природного процесса перераспределения радиоактивной примеси в системе водосбор – водоем – сток.

При анализе миграции ИРН в толще ДО с использованием отношений концентраций  $^{239, 240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$  следует иметь в виду, что в ДО присутствует  $^{137}\text{Cs}$  разного генезиса и неодинакового времени поступления в водоем. Часть  $^{137}\text{Cs}$  поступила в озеро в составе глобальных выпадений, тогда как другая – с аэрозолями аварийного выброса с ЧАЭС.

Определения  $^{90}\text{Sr}$  в грунтах керна выполнены до отметки 18 см только для ст. 86 (табл. 4). Следовые количества  $^{90}\text{Sr}$  прослеживаются до нижней границы керна. Запас  $^{90}\text{Sr}$  в ДО станции составил 346 Бк/м<sup>2</sup>. Уровень  $^{90}\text{Sr}$  от слоя 0–2 см к слою 2–4 см снизился в два раза, но дальнейшее его понижение замедлилось. В слое грунта 8–10 см обнаружено локальное увеличение концентрации  $^{90}\text{Sr}$ , по-видимому, связанное с изменением окислительно-восстановительных условий среды. В шести колонках грунта из восьми с Ладожского оз. смена знака редокс-потенциала наблюдалась на отметке керна 8 см [17]. В области окислительно-восстановительного барьера  $^{90}\text{Sr}$  мог задерживаться, так как его следовые количества часто мигрируют в составе комплексных соединений.

Распределение  $^{90}\text{Sr}$  в грунте станций 55 и 56 отличалось от такового на ст. 86 большим его содержанием в слое 0–2 см (табл. 3) и отсутствием рез-

кого снижения концентрации в верхней части колонки (слой 0–6 см). Общим свойством для кернов станций 55, 56 и 86 оказалось локальное повышение содержания  $^{90}\text{Sr}$  в слое 8–10 см.

Специфика профиля распределения ИРН в керне ДО станций 55, 56 и 86 в значительной степени обусловлена приуроченностью ДО к районам с разным типом дна. ДО станций 55 и 56 относятся к равнинным участкам дна центральной части озерной котловины, тогда как ДО ст. 86 – к району резкого свала глубин у западного побережья. Здесь наряду с отложением седиментов на дно происходит их перенос. Профиль ДО ст. 86 формировался в динамических условиях, отличных от глубоководных участков со спокойным рельефом дна.

ДО ст. 86 содержат меньше  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{239, 240}\text{Pu}$ , чем грунты станций 55 и 56 (табл. 4). Содержание  $^{239, 240}\text{Pu}$  в слое 0–6 см ст. 86 равнялось 12.6 Бк/м<sup>2</sup>, а на станциях 55 и 56 – оно в 2 раза больше. Для  $^{137}\text{Cs}$  также сохранялось различие между станциями по запасу радионуклида в слое 0–6 см. Запасы  $^{137}\text{Cs}$  в ДО (слой 0–10 см) для станций 55, 56 и 86 составили 1399.5, 1511.0 и 678.3 Бк/м<sup>2</sup> соответственно. Профили ДО характеризуется накоплением  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{239, 240}\text{Pu}$  в верхних слоях грунта.

Перенос водного мигранта  $^{90}\text{Sr}$  в глубь толщи ДО протекал интенсивней, чем  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{239, 240}\text{Pu}$ . Ионы  $^{90}\text{Sr}$  из поровых растворов слабее поглощаются частицами грунта, чем  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{239, 240}\text{Pu}$ , поэтому его ионы сравнительно легко вовлекаются в перенос с потоками влаги. Отставание  $^{239, 240}\text{Pu}$  от  $^{90}\text{Sr}$  при переносе в толщу ДО прослеживается по распределению их концентраций в грунтах. Переход от слоя грунта 0–2 к слою 4–6 см (табл. 4) сопровождается увеличением отноше-

**Таблица 4.**  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{239,240}\text{Pu}$  в ДО Ладожского оз. (прочерк – отсутствие определений  $^{239,240}\text{Pu}$ )

Слой	Радионуклиды в ДО, Бк/м <sup>2</sup>			$^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}/^{239,240}\text{Pu}$
	$^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{239,240}\text{Pu}$		
Ст. 86, глинисто-алевритовый ил, северо-западная часть озера					
0–2	128.8	502.5	10.4	0.26	12.4
2–4	55.2	80.7	1.6	0.68	34.5
4–6	38.9	32.9	0.6	1.18	64.8
6–8	27.2	36.4	–	0.74	–
8–10	41.4	25.8	–	1.60	–
10–12	19.5	37.2	–	0.52	–
12–14	16.3	36.1	–	0.45	–
14–16	12.7	35.0	–	0.36	–
16–18	6.0	45.0	–	0.13	–
Итого	346	832			
Ст. 55, алевритовый ил, центральная часть озера					
0–2	40.7	757.3	16.0	0.05	2.5
2–4	48.1	527.2	11.1	0.09	4.3
4–6	46.4	51.3	1.1	0.90	42.2
6–8	69.7	32.9	–	2.12	–
8–10	61.2	30.8	–	1.99	–
Итого	266.1	1399.5			
Ст. 56, алевритовый ил, центральная часть озера					
0–2	53.1	672.3	14.8	0.08	3.6
2–4	60.2	640.5	8.3	0.09	7.3
4–6	49.5	152.2	2.9	0.32	17.1
6–8	7.1	17.7	–	0.40	–
8–10	20.81	28.3	–	0.73	–
Итого	190.7	1511.0			
Ст. 8, грубозернистый песок на выходе из Волховской губы					
0–2	0.33*	5.33*	–	0.06	–

\* Уровни  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в ДО ст. 8 даны в Бк/кг сухой массы песка.

ния  $^{90}\text{Sr}/^{239,240}\text{Pu}$  из-за многократного снижения в грунте концентрации  $^{239,240}\text{Pu}$ .  $^{239,240}\text{Pu}$  задерживался в приповерхностном слое ДО, а  $^{90}\text{Sr}$  мигрировал вглубь. Аналогичное поведение пары радионуклидов  $^{239,240}\text{Pu}$  наблюдалось в ДО глубоководного арктического озера [12].

Определение  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в ДО ст. 8 относится к верхнему слою 0–2 см грубозернистого песка (табл. 3). Применительно к одинаковому способу выражения результата наблюдений (Бк/кг сухой массы) содержание  $^{90}\text{Sr}$  в пробе песка было меньше, чем в илах (слой 0–2 см) станций 55, 56 и 86,

соответственно в 29, 46 и 27 раз. Низкое содержание  $^{90}\text{Sr}$  в ДО ст. 8 является ожидаемым, так как сорбционная способность у песков меньше, чем у илов. Осмотр пробы показал, что образец песка был хорошо отмыт и не содержал примеси тонкодисперсных частиц. Содержание  $^{137}\text{Cs}$  в песке (5.33 Бк/кг) близко к нижней границе значений  $^{137}\text{Cs}$  (3.7 Бк/кг), обнаруженных в ДО озера [8].

Для ст. 86 выполнено сравнение запаса  $^{90}\text{Sr}$  в грунте ДО (слой 0–18 см) с запасом  $^{90}\text{Sr}$  в столбе воды. При площади основания столба 1 м<sup>2</sup>, высоте 64.5 м и концентрации  $^{90}\text{Sr}$  в воде 7 Бк/м<sup>3</sup> запас

**Таблица 5.** Оценки запасов  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в объеме вод Ладожского оз. и илах дна (прочерк – отсутствие данных)

Число проб, вода/ил	$^{90}\text{Sr}$ в средах		Запас $^{90}\text{Sr}$ , ТБк *		$^{137}\text{Cs}$ в средах		Запас $^{137}\text{Cs}$ , ТБк*	
	вода, Бк/м <sup>3</sup>	ил, кБк/м <sup>2</sup>	вода	ил	вода, Бк/м <sup>3</sup>	ил, кБк/м <sup>2</sup>	вода	ил
Определение ИРН в 1991 г. [1]								
6/3	18.17	0.64	16.05	7.93	1.92	1.82	1.74	22.5
Определение ИРН в 2001 г. [1]								
10/–	11.1	–	10.09	–	0.99	–	0.9	–
Определение ИРН в 2008–2009 гг. (данные авторов)								
8/3	7.5	0.25	6.73	3.1	**	1.2	–	14.7

\* Запасы ИРН на дне озера рассчитаны на слой иловых отложений 0–10 см.

\*\*  $^{137}\text{Cs}$  в воде ниже предела обнаружения.

радионуклида равен 451.5.5 Бк. Запас  $^{90}\text{Sr}$  в столбе воды в ~1.3 раза больше такового в ДО ст. 86 (табл. 4) и в 1.6 раза меньше кумулятивного запаса  $^{90}\text{Sr}$  в песчаной почве Карельского перешейка (743 Бк/м<sup>2</sup> с учетом распада к 2009 г.). Суммарный запас  $^{90}\text{Sr}$  (вода + дно) близок к запасу  $^{90}\text{Sr}$  в песчаной почве Карельского перешейка.

При седиментации в Ладожском оз. ~0.5 мм/год [13] ожидалось, что к 2008 г. грунт с высоким содержанием глобальных ИРН, приходящемся на 1963–1964 гг., может располагаться на глубине ~3 см от поверхности керна. Поэтому при консервативном поведении примеси слой 0–10 см алевритового ила мог содержать основное количество  $^{90}\text{Sr}$ . Запасы  $^{90}\text{Sr}$  в этом слое грунта (станции 55, 56 и 86) на 2008 г. составили 266.1, 190.7 и 291.5 Бк/м<sup>2</sup> соответственно при среднем  $249.4 \pm 52.4$  Бк/м<sup>2</sup>.

Содержания  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в пробах воды и илов в 1991 и 2008–2009 гг. использованы в рекогносцировочной оценке запасов радионуклидов на дне озерной котловины и отношения запасов в средах вода – илы дна. Алевритовые илы в Ладожском оз. занимают ~70% площади дна. Они же характеризуются максимальным накоплением ИРН. На 1991 г. усредненное содержание  $^{90}\text{Sr}$  в трех пробах илов составило  $0.64 \pm 0.42$  кБк/м<sup>2</sup> (табл. 5). По этой плотности запас  $^{90}\text{Sr}$  в илах озера равен 7.93 ТБк.

По данным исследований (табл. 5), запасы  $^{90}\text{Sr}$  в воде озера и в алевритовых илах составили 6.73 и 3.1 ТБк соответственно. Эти значения меньше предыдущей оценки запасов на 1991 г. За интервал 1991–2009 гг. запасы  $^{90}\text{Sr}$  в воде и алевритовых илах изменились, но отношение между запасами (вода/илы) сохранилось на уровне ~2. Незначи-

тельное изменение отношения от 2.0 до 2.2 за экспозицию 18 лет свидетельствует о синхронности процесса очищения вод и донного грунта от  $^{90}\text{Sr}$ .

Оценка запасов  $^{90}\text{Sr}$  в воде озера по данным опыта является корректной. Такого заключения нельзя сделать по запасу  $^{90}\text{Sr}$  в ДО озера из-за неопределенности содержания  $^{90}\text{Sr}$  в грунтах, находящихся глубже слоя 0–10 см. Можно лишь констатировать, что на 2008–2009 гг. отношение запасов  $^{90}\text{Sr}$  в средах вода–ил (слой 0–10 см) составило ~2 : 1.

Запасы  $^{137}\text{Cs}$  в средах вода–ил на 1991 г. (табл. 5) характеризовались отношением ~1 : 10. Снижение запаса  $^{137}\text{Cs}$  в илах в 1991–2009 гг. с 22.5 до 14.7 ТБк (табл. 5) оказалось близким к величине потерь за счет физического распада  $^{137}\text{Cs}$ . Такой темп снижения концентрации  $^{137}\text{Cs}$  в ДО ожидаем, так как аэральный путь загрязнения водоема отсутствует, а приток  $^{137}\text{Cs}$  в озеро с поверхностными водами при равнинном рельефе мал.

Районам Ладожского оз. глубоководному, склоновому и озерного уступа свойственны низкие температуры (2–6°C) придонной воды и отложений дна [13, 17]. Поэтому химические реакции в системах придонный слой воды – ДО, поровый раствор – частицы грунта дна протекают медленнее, чем в мелководных озерах средних широт. С понижением температуры ДО с 20 до 0°C наблюдалось пятикратное уменьшение коэффициентов диффузии  $^{90}\text{Sr}$  с  $2.3 \cdot 10^{-7}$  до  $4.0 \cdot 10^{-8}$  см<sup>2</sup>/с [16].

При низких температурах замедляется миграция ИРН и трансформация начального физико-химического состояния радионуклидов, поступивших на дно. С этим связана консервативность

поведения глобального  $^{239,240}\text{Pu}$ , аккумулированного в поверхностном слое илов (табл. 4). В глубоких озерах альпийского типа, обследованных при реализации европейского проекта AL : PE 1 [20], продукт распада  $^{241}\text{Pu}$  — дочерний  $^{141}\text{Am}$  — регистрировался только в верхнем (0–3 см) слое ДО, что подтверждает невысокую миграцию материнского нуклида в таких водоемах.

В [3, 12] содержание глобальных  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{239,240}\text{Pu}$  в профиле ДО озер использовано при определении седиментации веществ нерадиационной природы. С аналогичной целью было рассмотрено распределение  $^{239,240}\text{Pu}$  в грунте станций 55 и 86. Для 1964–2009 гг. седиментация составила 0.3 и 0.5 мм/год. На свале глубин (ст. 86) седиментация была ниже, чем для ст. 55 с выровненным рельефом дна. Из-за наличия в верхних слоях ДО “чернобыльского”  $^{137}\text{Cs}$  корректная оценка седиментации по  $^{137}\text{Cs}$  затруднена. Однако изменения в послонном распределении  $^{137}\text{Cs}$  (табл. 4) отражают тенденцию к более высокой седиментации в районе расположения станций 55 и 56, чем в районе ст. 86.

### ВЫВОДЫ

На 2008–2009 гг. запас глобального  $^{90}\text{Sr}$  в объеме вод озера составил 6.73 ТБк — величину, не превышающую 17% кумулятивного отложения радионуклида на зеркало вод.

Запас  $^{90}\text{Sr}$  в приповерхностном слое (0–10 см) озерных илов оценен в 3.1 ТБк, что в ~2 раза меньше запаса  $^{90}\text{Sr}$  в водной массе озера. Воды Ладожского оз. очищались от глобального  $^{90}\text{Sr}$  с полупериодом  $T$  экологических потерь, равным 21.7 года.

Динамика снижения содержания  $^{90}\text{Sr}$  в воде глубоководного озера принципиально отличается от свойственной мелководным озерам, у которых через 2–3 года после контаминации содержание  $^{90}\text{Sr}$  в воде не превышает 5–10% отложившегося количества.

При близких величинах кумулятивного отложения глобального и “чернобыльского”  $^{137}\text{Cs}$  на поверхность озера (73.4 и 74.1 ТБк соответственно) очищение вод озера от  $^{137}\text{Cs}$  разного генезиса было неодинаковым. Переход от максимальных концентраций глобального  $^{137}\text{Cs}$  в воде (1963–1964 гг.) к низким (1984–1985 гг.) на пределе метода контроля (2 Бк/м<sup>3</sup>) произошло за ~20 лет. На аналогичное изменение концентраций “чернобыльского”  $^{137}\text{Cs}$  в водах Ладоги потребовалось ~5 лет (1986–1991 гг.).

В условиях хронического поступления глобального  $^{137}\text{Cs}$  на зеркало озера и его водосбор (1965–1980 гг.) очищение ладожских вод происходило медленнее, чем при однократном (1986 г.)

загрязнении водоема  $^{137}\text{Cs}$  от аварийного выброса с Чернобыльской АЭС.

Впервые для Ладожского оз. получена сравнительная характеристика распределения  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{239,240}\text{Pu}$  в иловых отложениях. Поведение в илах  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{239,240}\text{Pu}$  согласовывалось с геохимической природой этих элементов. Литофилы  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{239,240}\text{Pu}$  аккумулировались в приповерхностном слое донных грунтов и медленнее водного мигранта  $^{90}\text{Sr}$  поступали в глубь ДО. Специфика распределения ИРН в профиле иловых отложений отмечается при анализе отношений концентраций в парах  $^{90}\text{Sr}/^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$  и  $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ , используемых в качестве репера текущих изменений в миграции радионуклидов.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Агапов А.М., Беленький М.И., Гаврилов В.М. и др. Радиоактивное загрязнение водной системы река Нева — Ладожское озеро // Радиохимия. 2003. Т. 45. № 4. С. 370–374.
2. Алексеенко В.А. Динамика выноса чернобыльского радиоцезия с речных водосборов бассейна Балтийского моря в 1986–1988 гг. // Радиохимия. 1997. Т. 38. № 2. С. 187–190.
3. Бакунов Н.А., Большианов Д.Ю. Глобальный  $^{137}\text{Cs}$  как метка седиментации в глубоководных озерах // Радиохимия. 2007. Т. 49. № 2. С. 170–172.
4. Бакунов Н.А., Большианов Д.Ю., Макаров А.С. Ретроспективная оценка загрязнения Онежского озера глобальным  $^{90}\text{Sr}$  и очищения его вод // Радиохимия. 2010. Т. 52. № 2. С. 186–189.
5. Болтнева Л.И., Израэль Ю.А., Ионов В.А. и др. Глобальное загрязнение Sr-90 и Cs-137 и дозы внешнего облучения на территории СССР // Атомная энергия. 1977. Т. 42. Вып. 5. С. 355–360.
6. Вакуловский С.М., Газиев Я.И., Колесникова Л.В. и др.  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  в поверхностных водных объектах Брянской обл. в 1987–2002 гг. // Атомная энергия. 2006. Т. 100. Вып. 1. С. 68–74.
7. Гедеев Л.И., Анкудинов Е.П. Исследование радиоактивного загрязнения воды некоторых водоемов Ленинградской области и северо-западного бассейна СССР в 1961–1966 гг. М.: Атомиздат, 1967. 24 с.
8. Геоэкология Ладожского озера / Под ред. Иванова В.Л., Гуревича В.И. СПб.: ВНИИ Океангеология, 1995. 209 с.
9. Горяченкова Т.А., Павлоцкая Ф.И., Казинская И.Е. и др. Содержание и распределение  $^{239,240}\text{Pu}$  в почвенно-растительном покрове ближней зоны Ленинградской АЭС // Атомная энергия. 1993. Т. 74. Вып. 6. С. 514–517.
10. Израэль Ю.А., Квасникова Е.В., Стукин Е.Д. Радиоактивное загрязнение цезием-137 территории России на рубеже веков // Метеорология и гидрология. 2000. № 4. С. 20–31.
11. Итоги изучения и опыт ликвидации последствий аварийного загрязнения территории продуктами деления урана / Под ред. Бурназяна А.И. М.: Энергоатомиздат, 1990. 144 с.

12. Кузнецов В.Ю., Большианов Д.Ю., Струков В.Н. Плутоний в озерных отложениях полуострова Таймыр // Радиохимия. 2001. Т. 43. № 1. С. 89–92.
13. Ладожское озеро. Критерии состояния экосистемы. СПб.: Наука, 1992. 325 с.
14. Саксен Р., Илус Э., Синкко К. и др. Исследование радиоактивного загрязнения Балтийского моря в 1984–1985 гг. Л., 1988. 29 с.
15. Саксен Р., Тайпале Т.К., Синкко К. и др. Исследование радиоактивного загрязнения Балтийского моря в 1981–1983. М.: ЦНИИАтоминформ, 1987. 60 с.
16. Сафронова Н.Г., Питкянен Г.Б., Погодин Р.И. О механизмах миграции  $^{90}\text{Sr}$  в донных отложениях водоемов // Проблемы радиоэкологии водоемов-охладителей атомных электростанций. Свердловск: УрО АН СССР, 1978. С. 95–98.
17. Семенович Н.И. Донные отложения Ладожского озера. М.; Л.: Наука, 1966. 123 с.
18. Силантьев А.Н., Шкуратова И.Г. Обнаружение промышленных загрязнений почвы и атмосферных выпадений на фоне глобального загрязнения. Л.: Гидрометеиздат, 1983. 136 с.
19. Циболд Г., Драйсснер Ж., Камински С. и др. Содержание  $^{137}\text{Cs}$  в предальпийских лесах и озерах: изменения и моделирование уровней загрязнения в зависимости от времени с 1986 года // Тр. Междунар. конф. “Радиоактивность при ядерных взрывах и авариях”. СПб.: Гидрометеиздат, 2000. Т. 2. С. 356–360.
20. Acidification of Mountain Lakes: Palaeolimnology and Ecology (AL : PE 1 Report) / Eds. Wathne B.M., Patrick S.T., Monteith D., Barth H. // European Commission Report EUR 16129 EN. 1995. P. 61–64.
21. Yakulovsky S.M., Chumichev V.B. Radioactive contamination of the Kaspian Sea // Radiation Protection Dosimetry. 1998. V. 75. № 1–4. P. 61–64.