

# К ДИФФУЗИИ ГЛОБАЛЬНОГО $^{137}\text{Cs}$ В ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЯХ СЕВЕРНЫХ МОРЕЙ

© 2023 г. Н. А. Бакунов, Д. Ю. Большианов, А. О. Аксенов\*, А. С. Макаров

Арктический и Антарктический научно-исследовательский институт,  
199397, Санкт-Петербург, ул. Беринга, д. 38  
\*e-mail: aksenov2801@gmail.com

Поступила в редакцию 15.01.2023, после доработки 20.05.2023, принята к публикации 26.05.2023

В донных отложениях (ДО) морей Лаптевых и Карского  $^{137}\text{Cs}$  в течение ~30 лет мигрировал по механизму диффузии с коэффициентами диффузии ( $D$ )  $n \cdot (10^{-9} - 10^{-8}) \text{ см}^2/\text{с}$ . В профиле ДО между слоями грунта сохранялся градиент концентрации  $^{137}\text{Cs}$ ; тренд снижения концентрации от верхнего к нижним слоям керна не нарушался на всем пути миграции радионуклида.  $^{137}\text{Cs}$  медленно мигрировал в толщу ДО; около 20%  $^{137}\text{Cs}$  оставалось в верхнем (0–1 см) слое грунта.  $^{137}\text{Cs}$  мигрировал в ДО залива Цивольки архипелага Новая Земля при крайне низкой температуре  $-1.0, -1.2^\circ\text{C}$  вод и грунтов дна. Концентрация  $^{137}\text{Cs}$  в верхнем слое ДО (0–1 см) моря Лаптевых и залива Цивольки характеризовалась близким диапазоном значений 7–18 и 14–24 Бк/кг, соответствующих глобальному уровню загрязнения грунтов. Залив Цивольки 10 месяцев закрыт льдом. Профиль  $^{137}\text{Cs}$  в кернах ДО формировался за счет диффузии радионуклида в условиях короткого теплого периода поступления в залив терригенной взвеси. Содержание  $^{137}\text{Cs}$  в ДО залива Цивольки и вид профиля концентраций в кернах показали отсутствие утечки радионуклида из захороненных в заливе объектов с радиоактивными веществами. Определения коэффициентов диффузии  $^{137}\text{Cs}$ , выполненные по экспериментальным данным, будут востребованы в моделях миграции радионуклида в водоемах и при научной поддержке мероприятий по минимизации ущерба от воздействия радиационного фактора.

**Ключевые слова:**  $^{137}\text{Cs}$ , северные моря, донные отложения, миграция, коэффициент диффузии, радиоактивные отходы.

**DOI:** 10.31857/S003383112304010X, **EDN:** IMSGOF

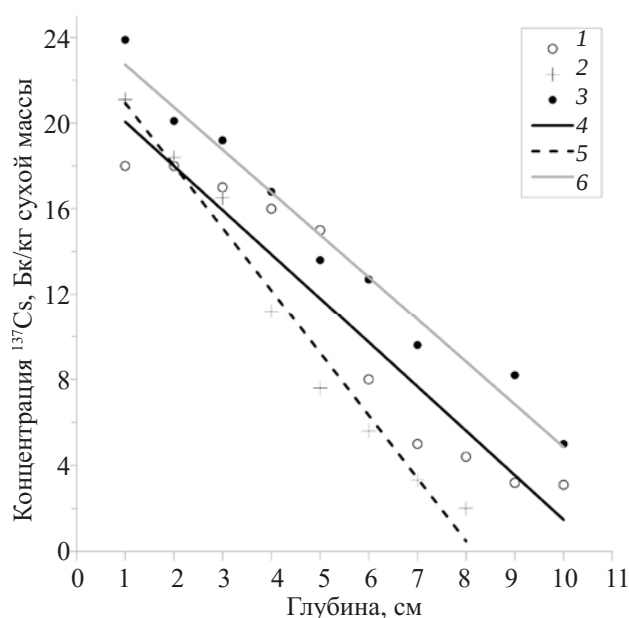
## ВВЕДЕНИЕ

Глобальным выпадениям искусственных радионуклидов (ИРН) из атмосферы и сбросу ИРН в морскую среду отводится ведущая роль в радиоактивном загрязнении Северного Ледовитого океана, что нашло подтверждение в итоговых документах международных исследований, выполненных в 1992–1995 гг. [1–4].

Море Лаптевых, Восточно-Сибирское и Чукотское моря удалены от районов сброса ИРН в морскую среду, а поэтому загрязнение их вод и донных отложений отвечает низким уровням современного техногенного фона [1, 3]. В то же время захороненные на небольших глубинах Карского моря объекты [1–3] с радиоактивными отходами (РАО) представляют потенциальную опасность из-за возможных утечек. Их поступление в воды моря опре-

деляется устойчивостью защитных барьеров объектов, содержащих РАО, и сроками их разрушения. Поэтому вопросы прогноза возможных утечек ИРН и оценок последствий загрязнения моря сохраняют свою актуальность, несмотря на относительно позитивные оценки современного радиоактивного состояния загрязнения вод и дна заливов архипелага Новая Земля [2, 4, 5].

При значительном массиве данных о содержании  $^{137}\text{Cs}$  в поверхностном слое 0–2 см донных отложений северных морей [6–10] наблюдения за его уровнями в профиле донных отложений менее представительны. Поэтому вопросы прогноза долговременной миграции  $^{137}\text{Cs}$  и других долгоживущих ИРН в толщу донных отложений Карского моря и заливов архипелага Новая Земля сохраняют свою актуальность. Размещение в северных морях АЭС на плавучих платформах также повышает ак-



**Рис. 1.** Профиль  $^{137}\text{Cs}$  в донных отложениях морей Лаптевых и Карского. 1 – станция 2 моря Лаптевых [8]; 2, 3 – станции 4а и 3 залива Цивольки соответственно [4, 5, 7]; 4 – линейный тренд изменения концентрации  $^{137}\text{Cs}$  с глубиной на станции 2 моря Лаптевых; 5 – линейный тренд изменения концентрации  $^{137}\text{Cs}$  с глубиной на станции 3 залива Цивольки; 6 – линейный тренд изменения концентрации  $^{137}\text{Cs}$  с глубиной на станции 4 залива Цивольки.

туальность исследований миграции ИРН в ДО морей Арктики.

Задача исследования состояла в изучении миграции глобального  $^{137}\text{Cs}$  в профиле колонок морских донных отложений в целях определения скорости естественной дезактивации донных отложений от  $^{137}\text{Cs}$  с течением времени. Объектами исследования стали колонки грунта с послойным распределением в них  $^{137}\text{Cs}$  глобальных выпадений, привлекаемого к изучению миграции радионуклида в глубь донных отложений и определению количественной характеристики этого процесса.

В методологии исследования принималось, что медленный перенос  $^{137}\text{Cs}$  из поверхностного слоя ДО в толщу изучаемых грунтов происходит по механизму диффузии. В океане седиментация меньше 1.0 мм/год. Поэтому при короткой экспозиции  $^{137}\text{Cs}$  влиянием седиментации на оценки скорости миграции  $^{137}\text{Cs}$  в толщу ДО можно пренебречь. Однако на мелководном шельфе поступление на дно взвеси с  $^{137}\text{Cs}$  может маскировать перенос радионуклида в глубь ДО. Согласно теоретической оценке [11], при повышенной седиментации  $\geq 1$  см/год и низкой ско-

рости диффузии ( $D$ ) примеси  $\sim 10^{-8}$  см<sup>2</sup>/с загрязнение ДО определяется поступлением взвесей, содержащих поллютант. В противном случае загрязнение ДО определяется сорбцией поллютанта грунтами дна и диффузией. В кернах ДО, взятых с больших глубин 500–3000 м моря Бофорта, миграция  $^{137}\text{Cs}$  прослеживалась до глубины 5–15 см [10]. Уровни  $^{137}\text{Cs}$  снижались от верхнего слоя керна к глубже лежащим слоям. Аналогичный тренд уровней  $^{137}\text{Cs}$  наблюдался в колонках ДО с больших глубин моря Лаптевых, Белого и Карского морей [4–9]. Наличие градиента концентраций  $^{137}\text{Cs}$  между слоями донных отложений и низкая скорость миграции радионуклида в ДО глубоких станций моря позволяли допустить перенос ионов  $^{137}\text{Cs}$  в толщу грунтов преимущественно по механизму диффузии.

## МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЯ

Для изучения миграции  $^{137}\text{Cs}$  в толщу донных отложений была сформирована выборка станций с колонками грунтов, взятых при больших глубинах моря. Допускалось, что на станциях с большими глубинами и удаленными от устьев больших рек, будут получены корректные оценки скорости миграции глобального  $^{137}\text{Cs}$  в глубь морского грунта за время 28–30 лет. К исследованиям привлекались колонки ДО из морей Лаптевых и Карского морей, отобранные в международных экспедициях 1992–1995 гг. [4, 5, 8], что позволяло сравнивать миграцию глобального  $^{137}\text{Cs}$  в грунтах за сопоставимый  $\sim 30$ -летний отрезок времени.

$^{137}\text{Cs}$  в ДО морей определялся гамма-спектрометрическим методом с использованием Ge(Li)-детектора. В ДО моря Лаптевых [8] определение  $^{137}\text{Cs}$  проводили с использованием гамма-спектрометра Canberra (США). Минимальная детектируемая активность составила 1.0–1.5 Бк/проба. Время измерения проб достигало 80000 с. В исследованиях [4, 5, 8] шаг послойного определения  $^{137}\text{Cs}$  в колонках грунта составил 0–1 см, что позволяло сравнивать содержание  $^{137}\text{Cs}$  в ДО разных водоемов. Определения  $^{137}\text{Cs}$  в грунтах, выполненные разными организациями, показали при сверке данных [2, 3] удовлетворительное согласие.

На рис. 1 приведены профили ДО с послойным распределением  $^{137}\text{Cs}$  в колонках грунтов из моря Лаптевых [8] и залива Цивольки [4, 5] архипелага

**Таблица 1.** Коэффициент диффузии  $D$   $^{137}\text{Cs}$  в грунтах станций Лаптевых и Карского морей

| Станция                                                                |            | <sup>137</sup> Cs, Бк/кг,<br>слой 0–1 см | Район наблюдений                    | D см²/с                       |
|------------------------------------------------------------------------|------------|------------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------|
| Номер, индекс                                                          | глубина, м |                                          |                                     |                               |
| Море Лаптевых, 1995 г. [8]                                             |            |                                          |                                     |                               |
| 2                                                                      | 152        | 18                                       | Шельф в проливе Вилькицкого         | (1.8 ± 1.1)× 10 <sup>-8</sup> |
| 4                                                                      | 54         | 6.5                                      | Шельф, сев.-вост. от Северной Земли | (1.1 ± 1.0)× 10 <sup>-8</sup> |
| 8                                                                      | 100        | 13.5                                     | Шельф, сев.-вост. от Северной Земли | (6.8 ± 4.5)× 10 <sup>-9</sup> |
| Карское море, залив Цивольки архипелага Новая Земля, 1993 г. [4, 5, 7] |            |                                          |                                     |                               |
| 1а                                                                     | 40–45      | 13.7                                     | Внутри залива                       | (6.5 ± 4.6)× 10 <sup>-9</sup> |
| 3                                                                      | 40–45      | 19.7                                     | Внутри залива                       | (6.9 ± 2.4)× 10 <sup>-9</sup> |
| 4а                                                                     | <45        | 22.0                                     | На выходе из залива                 | (2.1 ± 1.6)× 10 <sup>-8</sup> |
| 4б                                                                     | <45        | 14                                       | На выходе из залива                 | (5.8 ± 1.8)× 10 <sup>-9</sup> |
| Карское море, 1993 г. [4, 5, 7]                                        |            |                                          |                                     |                               |
| 7                                                                      | <40        | 17.9                                     | Близко к выходу из залива Степового | (1.8 ± 1.3)× 10 <sup>-8</sup> |

Новая Земля Карского моря. Уровни  $^{137}\text{Cs}$  в кернах снижались от поверхностного слоя грунта к более глубоким слоям. Нарушений тренда снижения концентраций  $^{137}\text{Cs}$  в профиле ДО не наблюдалось. По-видимому, миграция  $^{137}\text{Cs}$  протекала в относительно однородных по свойствам грунтах. В ДО моря Лаптевых миграция  $^{137}\text{Cs}$  прослеживалась на глубину 8–14 см, где его уровни в последних слоях кернов не превышали 1–2 Бк/кг сухой массы. К дате мониторинга время пребывания глобального  $^{137}\text{Cs}$  в ДО моря Лаптевых составило 31, а в заливе Цивольки Карского моря – 28 лет.

По данным определения  $^{137}\text{Cs}$  в колонках ДО с залива Цивольки Карского моря [4, 5] и моря Лаптевых [8], взятых во время международных экспедиций 1992–1995 гг. [3], нами рассчитывался коэффициент диффузии  $^{137}\text{Cs}$  с использованием выражения [12]

$$D = b[(\ln \varepsilon) 4t], \quad (1)$$

где  $b = (x_2)^2 - (x_1)^2$ ;  $\varepsilon = C_1/C_2$ ;  $D$  – коэффициент диффузии, см<sup>2</sup>/с;  $x_1$  и  $x_2$  – произвольно взятые слои профиля концентраций  $^{137}\text{Cs}$  с отметками слоя, см;  $C_1$  и  $C_2$  – концентрации  $^{137}\text{Cs}$ , соответствующие слоям  $x_1$  и  $x_2$ ;  $t$  – время миграции, с. За дату  $t_0$  формирования кумулятивного запаса глобального  $^{137}\text{Cs}$  в грунтах морского дна принимали 1964 г. Послойный расчет коэффициента  $D$  завершался осреднением данных с целью характеристики диффузии на всем пути миграции радионуклида.

Удаленность моря Лаптевых от следов выпадений «чернобыльского»  $^{137}\text{Cs}$  в 1986 г. и районов

сброса ИРН исключали возможное влияние упомянутых факторов на миграцию глобального  $^{137}\text{Cs}$  в глубь донных отложений. Слабые выпадения «чернобыльского»  $^{137}\text{Cs}$  пришлось на ледяной покров моря Лаптевых, которое ~10 месяцев в году закрыто льдом. В ситуации, когда миграция  $^{137}\text{Cs}$  в толщу ДО определяется диффузией радионуклида, загрязнение грунта можно оценивать расчетным путем на основе коэффициентов диффузии  $D$  [13–16]. Концентрацию  $^{137}\text{Cs}$  в слоях ДО рассчитывали по формуле (2) переноса радионуклида из загрязненного верхнего слоя ДО в глубь толщи грунта по механизму диффузии.

$$C(x, t) = \frac{Q}{\sqrt{(\pi Dt)}} e^{-\frac{x^2}{4Dt}}, \quad (2)$$

где  $C$  – концентрация  $^{137}\text{Cs}$  в слое  $x$ , Бк/кг;  $Q$  – концентрация  $^{137}\text{Cs}$  в слое загрязнения на момент  $t_0$ , Бк;  $D$  – коэффициент диффузии, см<sup>2</sup>/с;  $t$  – время миграции, с;  $x^2$  – расстояние, пройденное  $^{137}\text{Cs}$ , см.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В табл. 1 приведено среднее значение коэффициента  $D$   $^{137}\text{Cs}$  для грунтов морей и его среднеквадратическая ошибка. Индексы и номера станций в табл. 1 соответствуют первоисточникам [4, 5, 8], а значения коэффициента диффузии  $^{137}\text{Cs}$  – расчетам авторов статьи. Концентрация  $^{137}\text{Cs}$  в поверхностном слое 0–1 см грунтов изменялась от 7 до 23.9 Бк/кг. Коэффициенты диффузии  $^{137}\text{Cs}$  в ДО морей характеризовались диапазоном  $5.8 \times 10^{-9}$ – $2.1 \times 10^{-8}$  см<sup>2</sup>/с.

**Таблица 2.** Коэффициенты диффузии  $^{137}\text{Cs}$  (данные расчета), верхние и нижние слои ДО

| Слой, см                                 | $D$ , $\text{см}^2/\text{с}$ | $D$ среднее для двух слоев, $\text{см}^2/\text{с}$ | Слой, см                 | $D$ , $\text{см}^2/\text{с}$ | $D$ среднее для двух слоев, $\text{см}^2/\text{с}$ |
|------------------------------------------|------------------------------|----------------------------------------------------|--------------------------|------------------------------|----------------------------------------------------|
| Станция 1а, залив Цивольки, Карское море |                              |                                                    | Станция 2, море Лаптевых |                              |                                                    |
| 1–2                                      | $1.19 \times 10^{-8}$        | $(6.7 \pm 7.4) \times 10^{-9}$                     | 1–2                      | $1.80 \times 10^{-8}$        | $(2.2 \pm 0.5) \times 10^{-8}$                     |
| 2–3                                      | $1.48 \times 10^{-9}$        |                                                    | 2–3                      | $2.54 \times 10^{-8}$        |                                                    |
| 4–5                                      | $8.43 \times 10^{-9}$        | $(6.3 \pm 3.1) \times 10^{-9}$                     | 7–8                      | $1.29 \times 10^{-8}$        | $(7.9 \pm 9.3) \times 10^{-8}$                     |
| 5–6                                      | $4.06 \times 10^{-9}$        |                                                    | 8–9                      | $1.45 \times 10^{-7}$        |                                                    |
| Станция 3                                |                              |                                                    | Станция 4                |                              |                                                    |
| 0–1                                      | $4.13 \times 10^{-9}$        | $(7.3 \pm 4.4) \times 10^{-9}$                     | 0–1                      | $3.32 \times 10^{-9}$        | $(5.2 \pm 2.7) \times 10^{-9}$                     |
| 1–2                                      | $1.04 \times 10^{-8}$        |                                                    | 1–2                      | $7.16 \times 10^{-9}$        |                                                    |
| 5–6                                      | $6.43 \times 10^{-9}$        | $(7.2 \pm 1.1) \times 10^{-9}$                     | 3–4                      | $5.86 \times 10^{-9}$        | $(1.6 \pm 1.4) \times 10^{-8}$                     |
| 6–7                                      | $7.94 \times 10^{-9}$        |                                                    | 4–5                      | $2.63 \times 10^{-8}$        |                                                    |
| Станция 4а                               |                              |                                                    | Станция 8                |                              |                                                    |
| 0–1                                      | $3.28 \times 10^{-9}$        | $(1.4 \pm 1.5) \times 10^{-8}$                     | 0–1                      | $6.92 \times 10^{-9}$        | $(4.8 \pm 2.9) \times 10^{-9}$                     |
| 1–2                                      | $2.47 \times 10^{-8}$        |                                                    | 1–2                      | $2.79 \times 10^{-9}$        |                                                    |
| 9–10                                     | $1.26 \times 10^{-8}$        | $(1.8 \pm 1.1) \times 10^{-8}$                     | 3–4                      | $1.30 \times 10^{-8}$        | $(8.7 \pm 6.1) \times 10^{-9}$                     |
| 10–12                                    | $3.06 \times 10^{-8}$        |                                                    | 4–5                      | $4.36 \times 10^{-9}$        |                                                    |
| Станция 4б                               |                              |                                                    |                          |                              |                                                    |
| 1–2                                      | $5.46 \times 10^{-9}$        | $(4.1 \pm 1.9) \times 10^{-9}$                     |                          |                              |                                                    |
| 2–3                                      | $2.75 \times 10^{-9}$        |                                                    |                          |                              |                                                    |
| 5–6                                      | $8.40 \times 10^{-9}$        |                                                    |                          |                              |                                                    |
| 6–7                                      | $5.73 \times 10^{-9}$        | $(8.1 \pm 0.5) \times 10^{-9}$                     |                          |                              |                                                    |

Коэффициент диффузии  $^{137}\text{Cs}$  в донных отложениях на выходе из залива Степового  $(1.8 \pm 1.3) \times 10^{-8}$  близок к наблюдаемым в ДО залива Цивольки.

Коэффициенты диффузии  $^{137}\text{Cs}$  в ДО станций моря Лаптевых составили  $6.8 \times 10^{-9}$ – $1.8 \times 10^{-8}$   $\text{см}^2/\text{с}$ . Миграция глобального  $^{137}\text{Cs}$  в грунтах станций шельфа моря Лаптевых в течение ~30 лет характеризовалась тенденцией повышения коэффициента диффузии от поверхностных слоев керна в глубину (табл. 2). Тенденция отчетливо прослеживалась по данным осредненных значений коэффициента  $D$  для верхних и нижних слоев кернов станций 2, 4, 8. Для нижних слоев кернов этих станций коэффициент диффузии  $^{137}\text{Cs}$  был в 2–3 раза больше наблюдаемых в верхних слоях. Ранее такая закономерность отмечалась для ДО пресноводных озер, загрязненных «чернобыльским»  $^{137}\text{Cs}$  [13–15]. Для донных отложений залива Цивольки на станциях 4а и 4б сохранялась тенденция повышения коэффициента диффузии  $^{137}\text{Cs}$  с глубиной слоев керна. Однако в слоях кернов станций 1а и 3 коэффициент  $D$  на всем пути миграции радионуклида изменялся в

узком диапазоне значений, близких к среднему для кернов (табл. 1). В расчетах коэффициентов диффузии радионуклидов в гетерогенных грунтах (почва, донные отложения) допускается, что миграция ионов проходит в однородной среде. Фактически лишь для большей или меньшей части длины кернов соблюдаются условия однородности свойств. Поэтому вариабельность коэффициента диффузии в значительной степени зависит от свойства грунта, влияющего на миграцию ионов. В практике хранения и захоронения РАО широко используется искусственное изменение коэффициентов диффузии радионуклидов путем создания мигрирующим ионам барьеров с низкими коэффициентами  $D$ .

В табл. 3 для станции 2 моря Лаптевых приведены данные нашего расчета по формуле (2) содержания  $^{137}\text{Cs}$  в слоях керна с экспозицией 31 год. В расчете значение  $D$   $1.2 \times 10^{-8}$   $\text{см}^2/\text{с}$  взято как осредненное для трех станций моря (табл. 1). Запас  $Q_0$  на время  $t_0$  (1964 г.) нам неизвестен. Его оценка проведена на основе запаса 1995 г., равного 107.7 Бк/кг и корректируемого на величину рас-

пада за 1964–1995 гг. Запас  $Q_0$  в ДО станции 2 на 1964 г. составил 218. Бк/кг. Высокие для системы вода–дно коэффициенты распределения  $^{137}\text{Cs}$  ( $K_d = n \cdot (10^3–10^4)$  л/кг) позволяли допустить снижение запаса  $Q_0$  за ~30 лет за счет распада радионуклида. Колонка ДО станции 2 [8] в ~2 раза длиннее станций 4 и 8. Поэтому ей отдано предпочтение в представлении оценки послойного распределения  $^{137}\text{Cs}$  в керне. Для экспозиции 31 год данные расчета  $^{137}\text{Cs}$  в слоях ДО удовлетворительно согласовывались с опытом. По данным расчета, концентрации  $^{137}\text{Cs}$  снижались с 17.7 до 2.6 Бк/кг от поверхностного слоя грунта к слою 9–10 см. В поверхностном слое 0–1 см  $^{137}\text{Cs}$  содержалось ~17.0% от общего в керне. Для станции 8 моря Лаптевых также наблюдалось удовлетворительное согласие между данными расчета концентрации  $^{137}\text{Cs}$  в слоях ДО и опытом при табличном значении  $D = 6.8 \times 10^{-9}$  см<sup>2</sup>/с. Корректное определение послойного содержания глобального  $^{137}\text{Cs}$  в грунтах моря Лаптевых послужило основанием к изучению загрязнения  $^{137}\text{Cs}$  кернов станций 1а, 3, 4а, 4б из залива Цивольки. В [16] загрязнение  $^{239,240}\text{Pu}$  донных отложений этих станций нами рассматривалось как обусловленное плутонием глобальных выпадений. В заливе Цивольки станции наблюдений расположены следующим образом: станция 1а – ближе к головной части залива, 3 – между островами Цивольки и Круглый, 4 – на выходе из залива. К головной части залива примыкает ледник Серп и Молот. Его талые воды являются источником тонкодисперсной взвеси для головной части залива. Считается [17], что в головной части залива обмен вод с морем замедлен из-за особенностей рельефа дна. Залив в течение ~10 месяцев закрыт льдом, а поэтому привнос в залив взвесей с талыми водами и их седиментация ограничены во времени.

В ДО залива Цивольки концентрация  $^{137}\text{Cs}$  (табл. 4) и его послойное распределение в керне (данные опыта) согласуются с наблюдаемым содержанием глобального  $^{137}\text{Cs}$  в ДО моря Лаптевых. В поверхностном слое 0–1 см ДО моря Лаптевых [8] концентрация  $^{137}\text{Cs}$  находилась в диапазоне 7–18, а в заливе Цивольки – 14–24 Бк/кг соответственно. Для 7 колонок моря Лаптевых, взятых с глубин от 50 до 272 м, в слое 4–5 см содержалось  $7.3 \pm 6.0$  Бк/кг. В этом слое на станциях залива Цивольки 1а, 2, 3, 4а, 4б содержалось  $6.8 \pm 4.1$  Бк/кг  $^{137}\text{Cs}$ .

**Таблица 3.** Распределение  $^{137}\text{Cs}$  в профиле донного грунта моря Лаптевых, станция 2, расчет по среднему  $D = 1.2 \times 10^{-8}$  см<sup>2</sup>/с трех станций 2, 4, 8

| Слой ДО, см | Миграция 1964–1995 гг. |        |
|-------------|------------------------|--------|
|             | Опыт [8]               | Расчет |
| 0–1         | 18                     | 17.7   |
| 1–2         | 18                     | 17.0   |
| 2–3         | 17                     | 15.6   |
| 3–4         | 16                     | 13.7   |
| 4–5         | 15                     | 11.6   |
| 5–6         | 8                      | 9.3    |
| 6–7         | 5                      | 7.2    |
| 7–8         | 4.4                    | 5.4    |
| 8–9         | 3.2                    | 3.8    |
| 9–10        | 3.1                    | 2.6    |

Согласованность в уровнях  $^{137}\text{Cs}$  в ДО морей позволяла отнести концентрации  $^{137}\text{Cs}$  в грунтах залива Цивольки к значениям, свойственным глобальному фону. Поэтому в оценках миграции  $^{137}\text{Cs}$  в ДО залива за дату формирования кумулятивного запаса  $Q_0$   $^{137}\text{Cs}$  принят 1964 г.

При  $D = 6.9 \times 10^{-9}$  см<sup>2</sup>/с по уравнению (2) было рассчитано распределение  $^{137}\text{Cs}$  в ДО станции 3, расположенной между островами Цивольки и Круглый (табл. 4). Результаты расчета  $^{137}\text{Cs}$  в слоях керна удовлетворительно согласовывались с опытом и характером распределения глобального  $^{137}\text{Cs}$  в ДО станции 2 моря Лаптевых (табл. 2). Тренд постепенного уменьшения концентрации  $^{137}\text{Cs}$  в слоях керна станции 3 не нарушался на всем пути миграции радионуклида. Корректно расчетом определялось распределение  $^{137}\text{Cs}$  в слоях ДО станций 4а и 4б. По-видимому, до 1993 г. в заливе Цивольки не было утечки  $^{137}\text{Cs}$  из объектов, содержащих РАО. В противном случае слои донного грунта имели бы более высокое содержание  $^{137}\text{Cs}$  с пиковым значением концентрации, приходящимся на годы утечки радионуклида из захороненных объектов с РАО. Распределение  $^{137}\text{Cs}$  в слоях ДО станции 1а в целом согласуется с таковым для других станций. Однако в слое 2–3 см наблюдался небольшой пик  $^{137}\text{Cs}$ . Можно ли его отнести к флуктуациям концентрации или его появление объективно, ясности нет. Факт отбора пробы вблизи захороненного объекта [4, 5, 7] мог повлиять на загрязнение грунта  $^{137}\text{Cs}$ . Сброс на дно

**Таблица 4.** Распределение  $^{137}\text{Cs}$  в профиле донного грунта залива Цивольки Карского моря; миграция 28 лет, значения  $D$  для станций по табл. 1

| Слой грунта, см | $^{137}\text{Cs}$ в грунте залива Цивольки Карского моря, Бк/кг [4, 5, 7] |        |           |        |            |        |             |        |
|-----------------|---------------------------------------------------------------------------|--------|-----------|--------|------------|--------|-------------|--------|
|                 | станция 1а                                                                |        | станция 3 |        | станция 4а |        | станция. 4б |        |
|                 | опыт                                                                      | расчет | опыт      | расчет | опыт       | расчет | опыт        | расчет |
| 0–1             | 13.7                                                                      | 14.9   | 21.1      | 18.5   | 23.9       | 17.3   | 14          | 14.3   |
| 1–2             | 19.2                                                                      | 13.7   | 18.4      | 17.0   | 20.1       | 16.8   | 16          | 13.0   |
| 2–3             | 17.4                                                                      | 11.5   | 16.5      | 14.5   | 19.2       | 15.9   | 13          | 10.7   |
| 3–4             | 5.5                                                                       | 8.8    | 11.2      | 11.2   | 16.8       | 14.7   | 7           | 8.0    |
| 4–5             | 4.2                                                                       | 6.2    | 7.6       | 8.1    | 13.6       | 13.2   | 5           | 5.4    |
| 5–6             | 2.1                                                                       | 4.0    | 5.6       | 5.3    | 12.7       | 11.6   | 3           | 3.3    |
| 6–7             |                                                                           | 2.4    | 3.3       | 3.2    | 9.6        | 9.9    | 2           | 2.0    |
| 7–8             |                                                                           | 1.3    | 2.0       | 1.8    | –          | 8.1    | 1           | 0.9    |
| 8–9             |                                                                           | 0.4    |           |        | 8.2        | 6.6    |             |        |
| 9–10            |                                                                           |        |           |        | 5.0        | 5.2    |             |        |
| 10–12           |                                                                           |        |           |        | 2.5        | 3.5    |             |        |
| 12–13           |                                                                           |        |           |        | 1.6        | 1.8    |             |        |

залива массивного контейнера неизбежно сопровождался локальным подъемом тонкодисперсной взвеси из илов дна. Поэтому в районе захороненного объекта временно наблюдалась локальная седиментация взвесей с сорбцией из воды глобальных  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{239,240}\text{Pu}$ . Сбросы в заливы объектов с РАО приводили к нарушению слоя донных отложений и локальной вторичной седиментации взвеси.

Узкий диапазон коэффициента диффузии  $^{137}\text{Cs}$  (табл. 1) в значительной степени обусловлен коротким теплым сезоном, ограничивающим поступление с побережья терригенной взвеси и крайне низкой температурой воды и грунтов дна. В заливе Цивольки температура придонных вод летом и осенью 2013–2014 гг. [17] составила  $-1.1$  и  $-1.2^\circ\text{C}$ . В опытах с донными отложениями [18] воздействие температуры на диффузию при прочих равных условиях проявлялось увеличением коэффициентов  $D$  в  $\sim 2.5$  раза с повышением температуры на  $10^\circ\text{C}$ . Однако в этом модельном опыте и в других опытах [19, 20] не рассматривалась диффузия  $^{137}\text{Cs}$  при очень низкой температуре, свойственной грунтам арктических морей. В работе [20] опыт проводили при температуре морского грунта  $4 \pm 2^\circ\text{C}$ . Коэффициенты диффузии  $^{137}\text{Cs}$  изменялись в узком диапазоне  $(4-8) \times 10^{-8} \text{ см}^2/\text{с}$ . Этот диапазон  $D$  модельного опыта находится в интервале величин  $n \cdot (10^{-8}-10^{-9}) \text{ см}^2/\text{с}$ , найденных нами (табл. 1) для натуральных условий арктических морей. Следует иметь в виду, что модельные опыты [19, 20] про-

ведены при относительно малой (меньше месяца) временной экспозиции  $^{137}\text{Cs}$  в грунте.

Концентрация  $^{137}\text{Cs}$  в придонных водах залива Цивольки [4] составила  $6-14 \text{ Бк/м}^3$ , а в поверхностном слое ДО (0–2 см) –  $4-30 \text{ Бк/кг}$  сухой массы. По допущению 50%-ной влажности грунта и осредненным значениям уровней  $^{137}\text{Cs}$  в средах вода–дно коэффициент распределения  $K_d$  для  $^{137}\text{Cs}$  составит  $1700 \text{ л/кг}$ . Эта грубая оценка  $K_d$  находится в диапазоне  $K_d$   $2000-1000 \text{ л/кг}$ , приводимом в сводке этого показателя для морских грунтов [2]. Низкие температуры воды и донных отложений залива снижали сорбцию и диффузию  $^{137}\text{Cs}$ . Залив Цивольки в течение 10 месяцев закрыт льдом. Поэтому влияние поступления в залив взвеси с тальми водами на миграцию  $^{137}\text{Cs}$  ограничено коротким временем.

По допущению сохранения для станций 3 залива Цивольки величины  $D$   $6.9 \times 10^{-9} \text{ см}^2/\text{с}$  в течение 60 лет выполнена оценка содержания  $^{137}\text{Cs}$  в грунте на 2024 г. В слое 0–1 см ожидается  $6.3 \text{ Бк/кг}$   $^{137}\text{Cs}$ . В слое 10–11 см концентрация  $^{137}\text{Cs}$  не превысит  $0.8 \text{ Бк/кг}$ . Продолжающийся эпизодический мониторинг ДО заливов архипелага Новая Земля [21] позволит проверить оправданность оценки распределения в профиле ДО  $^{137}\text{Cs}$  и его содержания в грунте. Коэффициенты диффузии  $^{137}\text{Cs}$  в ДО будут востребованы при анализе загрязнения  $^{137}\text{Cs}$  грунтов в заливах архипелага Новая Земля [3–5, 21] и в моделях прогноза миграции  $^{137}\text{Cs}$  в ДО морей содержащих захороненные объекты РАО.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Определены коэффициенты диффузии глобального  $^{137}\text{Cs}$   $n \cdot (10^{-8} - 10^{-9}) \text{ см}^2/\text{с}$  в иловых отложениях моря Лаптевых и залива Цивольки Карского моря при миграции  $^{137}\text{Cs}$  в течение ~31 и 28 лет соответственно. Для станций с глубинами от 50 до 152 м моря Лаптевых коэффициенты диффузии  $^{137}\text{Cs}$  находились в узком диапазоне значений с тенденцией увеличением показателя диффузии от поверхностного слоя керна вглубь донных отложений. Послойное распределение  $^{137}\text{Cs}$  в илах залива Цивольки (станции 1, 3, 4) на глубину 10–14 см корректно рассчитывалось с использованием коэффициентов диффузии  $^{137}\text{Cs}$ . Загрязнение илов залива Цивольки  $^{137}\text{Cs}$  находилось на уровне глобального фона, свойственного грунтам глубоких станций моря Лаптевых. Коэффициенты диффузии  $^{137}\text{Cs}$   $n \cdot (10^{-8} - 10^{-9}) \text{ см}^2/\text{с}$ , полученные эмпирическим путем для иловых отложений арктических морей, позволяют оценивать скорость миграции радионуклида в этом виде грунта на срок ~30 лет. До 1993 г. в заливе Цивольки не было утечки  $^{137}\text{Cs}$  из объектов, содержащих РАО; содержание  $^{137}\text{Cs}$  в грунтах станций и распределение в кернах согласовывалось с данными наблюдений за содержанием  $^{137}\text{Cs}$  в ДО моря Лаптевых и глобальным уровнем загрязнения грунтов. Залив Цивольки ~10 месяцев закрыт льдом, препятствующим поступлению с побережья терригенной взвеси. Миграция  $^{137}\text{Cs}$  в донных отложениях залива определялась сорбцией радионуклида грунтом при низких температурах сред (вода–ДО) и медленной диффузией в толщу донных отложений.

## КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Сивинцев Ю.В., Вакуловский С.М., Васильев А.П., Высоцкий В.Л., Губин А.Т., Данилян В.А., Кобзев В.И., Крышев И.И., Лавковский С.А., Мазокин В.А., Никитин А.И., Петров А.И., Пологих Б.Г., Скорик Ю.И. Техногенные радионуклиды в морях, омывающих Россию. «Белая книга 2000 г.» М.: ИздАт, 2005. 625 с.
2. Dumping of Radioactive Waste and Radioactive Contamination in the Kara Sea. Results from 3 Years of Investigations (1993–1994) Performed by the Joint Norwegian-Russian Expert Group. 1996. 55 p.
3. Strand P. Radioactive contamination in the Arctic Seas // Marine Pollution: Proc. Symp. Held in Monaco, Oct. 5–9, 1998: IAEA TECDOC-1094. Vienna: IAEA, 1999. P. 690.
4. Никитин А.И. Натурные исследования последствий сброса и захоронения радиоактивных отходов в моря северного и дальневосточного регионов Российской Федерации: Автореф. дис. д.г.н. Обнинск: ГУ Институт глобального климата и экологии Росгидромета и РАН, 2009. 49 с.
5. Foin L., Nikitin A. The Joint Norwegian-Russian Expedition to the Dumpsites for Radioactive Waste in the Open Kara Sea, the Tsvolki Fiord and Stepovogo Fiord: Report from the Expedition on Board R/V Victor Buinitskiy, September–October 1993. Oslo; Moscow, 2012. 430 p.
6. Галимов Э.М., Лаверов Н.П., Степанец О.В., Кодина Л.А. // Геохимия. 1996. № 7. С. 579–597.
7. Матишиов Г.Г., Матишиов Д.Г., Щина Е., Руссанен К. Радионуклиды в экосистеме региона Баренцева и Карского морей. Апатиты: Изд-во Кольского НЦ, 1994. 238 с.
8. Calment D. // 5th Int. Conf. on Environmental Radioactivity in the Arctic and Antarctic. St. Petersburg, Russia, 2002. P. 190–193.
9. Алиев Р.А., Бобров В.А., Калмыков С.Н., Лисицын А.П., Мельгунов М.С., Новигатский А.Н., Травкина А.В., Шевченко В.П. // Радиохимия. 2006. Т. 48, № 6. С. 557–561.
10. Cooper L.W., Grebmeier J.V., Larsen I.L., Dolvin S.S., Reed A.J. // Third Int. Conf. on Environmental Radioactivity in the Arctic. Tromsø, Norway, June 1–5, 1997. Vol. 2. P. 97–99.
11. Сухоручкин А.К. // Метеорология и гидрология. 1985. № 7. С. 76–81.
12. Поляков Ю.А. Радиоэкология и дезактивация почв. М.: Атомиздат, 1970. 303 с.
13. Bakunov N.A., Bolshiyarov D.Y., Pravkin S.A. // Radiochemistry. 2019. Vol. 61, N 1. P. 122–128.
14. Bakunov N.A., Bolshiyarov D.Y., Makarov A.S. // Radiochemistry. 2014. Vol. 56. № 3. P. 319–324.
15. Michel H., Barei-Funel G., Barci V., Andersson G. // Radiochim. Acta. 2002. Vol. 90, N 9–11. P. 747–752.
16. Бакунов Н.А., Большиаров Д.Ю., Правкин С.А., Макаров А.С. // Радиохимия. 2022. Т. 64, № 1. С. 92–98.

17. Чава А.И., Удалов А.А., Веденин А.А., Симаков М.И., Шука С.А., Мокиевский В.О. // *Океанология*. 2017. Т. 57, № 1. С. 160–170.
18. Сафронова Н.Г., Питкянен Г.Б., Погодин Р.И. // Проблемы радиоэкологии водоемов-охладителей атомных электростанций. Свердловск: УрО АН СССР, 1978. С. 95–98.
19. Christensen G.C., Bergan T.D.S., Berge D., Baekken T., Varskog P. // Third Int. Conf. on Environmental Radioactivity in the Arctic. Tromse, Norway, June 1–5, 1997. Vol. 1. P. 187–188.
20. Buchaltzen Brink M.R., Santschi P.H. // Radioactivity and Environmental Security in the Oceans: New Research and Policy Priorities in the Arctic and North Atlantic, Massachusetts, USA: Woods Hole Oceanographic Institution, June 7–9, 1993. P. 311–323.
21. Радиационная обстановка на территории России и сопредельных государств в 2013 г.: Ежегодник. Гидрометеиздат, НПО «Тайфун», 2014. С. 317–322.

## On Global $^{137}\text{Cs}$ Diffusion in Bottom Sediments of Northern Seas

N. A. Bakunov, D. Yu. Bolshiyarov, A. O. Aksenov\*, A. S. Makarov

*Arctic and Antarctic Research Institute, Saint-Petersburg, 199397 Russia*

\*e-mail: aksenov2801@gmail.com

Received January 25, 2023; revised May 20, 2023; accepted May 26, 2023

In bottom sediments of the Laptev and the Kara seas  $^{137}\text{Cs}$  has been migrating with diffusion coefficient ( $D$ )  $n \cdot (10^{-9} - 10^{-8}) \text{ cm}^2/\text{s}$  during nearly 30 years. In the sediments profile  $^{137}\text{Cs}$  concentration gradient was persisting between the layers. The trend of concentration decrease from the upper to the lower layers of the core was not violated along the entire path of radionuclide migration.  $^{137}\text{Cs}$  has been migrating in bottom sediments slowly; nearly 20% of the radionuclide stayed in the upper (0–1 cm) layer. In the Tsivolki Bay of Novaya Zemlya Archipelago  $^{137}\text{Cs}$  has been migrating in very low temperature conditions of water and bottom sediments ( $-1.0, -1.2^\circ\text{C}$ ).  $^{137}\text{Cs}$  concentration in the upper layer of the Laptev Sea and Tsivolki Bay sediments was characterized by close values, 7–18 and 14–24 Bq/kg, which correlate with global level of sediments contamination. The Tsivolki bay is ice-covered for 10 months.  $^{137}\text{Cs}$  profile in the cores was forming due to radionuclide diffusion in conditions of short warm period of terrigenous sedimentation.  $^{137}\text{Cs}$  concentration in the bay sediments and a type of the concentration profile demonstrated an absence of radionuclide release from buried radioactive objects in the bay.  $^{137}\text{Cs}$  diffusion coefficients definition computed with experimental data will be necessary in radionuclide migration models and scientifically supported measures of damage minimization from exposure to the radiation factor.

**Keywords:**  $^{137}\text{Cs}$ , Northern Seas, bottom sediments, migration, diffusion coefficient, radioactive waste