

УДК 546.799.3/5

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ Np, Pu И Am В ВОДЕ, ВЗВЕШЕННОМ ВЕЩЕСТВЕ И ДОННЫХ ОСАДКАХ ЗАЛИВА ПЕТРА ВЕЛИКОГО

© 2024 г. Н. В. Кузьменкова^{а, *}, В. Г. Петров^а, А. К. Рожкова^{а, б}, Э. А. Токарь^в, К. Ши^г, С. Н. Калмыков^а, Х. Хоу^г

^аХимический факультет Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова, Москва, 119991, Ленинские горы, д. 1, стр. 3

^бИнститут геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского РАН, Москва, 119991, ул. Косыгина, д. 19

^вИнститут химии ДВО РАН, 690022, Владивосток, пр. 100-летия Владивостока, д. 159

^гУниверситет Ланчжоу, Китай, Сиань, Тиашиу соуф роад, 222

*e-mail: kuzmenkovanv@my.msu.ru

Получена 21.08.2023, после доработки 18.12.2023, принята к публикации 19.12.2023

Проанализировано содержание ²³⁷Np, ^{239, 240}Pu и ²⁴¹Am в морской воде, взвешенном веществе и кернах донных осадков Уссурийского и Амурского заливов, отобранных в июле 2021 и августе 2022 гг. Впервые определены удельные активности ²³⁷Np, ^{239, 240}Pu и ²⁴¹Am в воде залива Петра Великого, которые составили $(19–105) \times 10^{-3}$, 2.0–5.3 и 24.1–33.5 мБк/м³ соответственно. Удельные активности, а также соотношение изотопов ²³⁹Pu/²⁴⁰Pu (~0.18) в донных осадках определенно указывают, что основным источником поступления плутония являются глобальные выпадения. Определены скорости осадконакопления для Амурского залива (в эстуарии р. Раздольная) — 0.9 мм/год и для Уссурийского залива — 4.1 мм/год. Установлены коэффициенты перехода актинидов для залива Петра Великого: растворенные формы, включая коллоиды — взвешенное вещество — донный осадок.

Ключевые слова: актиниды, нептуний, плутоний, америций, Уссурийский залив, Амурский залив, вода, взвешенное вещество, донные осадки

DOI: 10.31857/S0033831124010153

В последнее десятилетие все большую озабоченность вызывает сброс радиоактивных отходов в Японское море и прилегающие прибрежные воды. Через 10 лет после аварии на станции Фукусима-1 правительство Японии приняло решение сбросить более миллиона тонн жидких радиоактивных отходов в Мировой океан [1]. На основе междисциплинарного подхода, объединяющего данные открытых источников, авторитетные сведения и выводы, показано, что, поскольку океан является сложной и изменчивой системой и радионуклиды могут быть перераспределены океаническими течениями и вихрями, сброс радиоактивных сточных вод вызовет или может вызвать загрязнение рыбной продукции и рыболовных угодий и окажет негативное воздействие на морских обитателей и человека [2]. Согласно отчетам по мониторингу водоочистных сооружений, проводимым Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. (TEPCO) (TEPCO, 2012–2020 гг.), управлением по ядерному регулированию Японии (NRA) (NRA, 2013–2020 гг.), накопленные жидкие радиоактивные отходы в основном содержат ³H, ¹⁴C, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co, ¹²⁵Sb, ⁹⁰Sr, ¹²⁹I, ⁹⁹Tc, ¹⁰⁶Ru и ²³⁸Pu [3, 4].

Первоначально широкое распространение радионуклидов в морской среде было вызвано испытаниями ядерного оружия в атмосфере [5; 6]. Среди

радионуклидов, попавших в Мировой океан, наибольшее значение имеют продукты деления — ⁹⁰Sr и ¹³⁷Cs, а также актиниды — ^{238, 239, 240}Pu, ²³⁷Np и ²⁴¹Am. Локальный вклад в воды Тихого океана в районе Японского моря внесли выпадения радиоактивных осадков в результате американских и французских испытательных программ и сброса ядерных отходов [7]. Широкомасштабные исследования радиоактивности морской среды в Дальневосточном регионе начались после аварии на станции Фукусима-1 (11 марта 2011 г.) [8–13]. Однако большинство исследований в области морской радиологии посвящены радионуклидам йода, стронция и цезия, потому что они широко участвуют в биогеохимических циклах и чаще попадают в пищевую цепь человека; их также относительно легко детектировать. Соединения актинидов в природных водах часто не находятся в состоянии термодинамического равновесия, а их миграционное поведение определяется тем, в какой форме нуклиды попадают в водную систему [14]. Поэтому одной из первых задач является определение источника поступления актинидов в морскую среду. Среди актинидов особую важность имеют нептуний, плутоний и америций. Например, в одной тонне отработанного уранового топлива теплового реактора после 10 лет выдержки содержится порядка 8.7 кг Pu,

0.45 кг Np, 0.58 кг Am и гораздо меньшее количество других трансураниевых элементов [15].

В отличие от продуктов деления, актиниды не так активно мигрируют в воде, а относительно быстро аккумулируются в осадках. В целом донные отложения являются важнейшими природными архивами, фиксирующими информацию об изменениях в окружающей среде за период осадконакопления. Проблема количественной оценки миграции актинидов в системе вода — донные осадки и определения механизмов их вертикальной миграции по керну донных отложений остается недостаточно изученной.

Для залива Петра Великого проведено большое количество исследований экологической, геохимической, биологической и других направленностей. Большинство работ посвящено геологическим и экологическим исследованиям [16–24]. Радиационной оценке состояния донных осадков залива Петра Великого посвящено гораздо меньше работ [17; 23; 25; 26]. На территории исследования можно было ожидать влияние двух больших катастроф — аварии в бухте Чажма и аварии на станции Фукусима-1. Однако было установлено, что после аварии на станции Фукусима-1 (2011 г.) радиоактивные вещества не попали в залив Петра Великого [10]. После аварии в бухте Чажма (1985 г.) донные осадки были загрязнены в основном ^{60}Co , период полураспада которого — 5.2 г. Следовательно, в настоящее время его влияние незначительно (активность уменьшилась более чем в 150 раз). Кроме того, Амурский залив не подвергся влиянию этой катастрофы [27].

Целью нашего исследования была количественная оценка распределения Pu, Np и Am в системе вода — взвешенное вещество — донные отложения для Амурского и Уссурийского заливов. Кроме того, важно было определить актуальное на сегодняшний день содержание Pu, Np и Am в воде, взвешенном веществе и донных осадках, так как данные по концентрации этих элементов представляют особую ценность для будущих исследований по оценке дозовой нагрузки и биоаккумуляции в морской среде.

ОБЪЕКТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Уссурийский и Амурский заливы являются заливами второго порядка в заливе Петра Великого, который расположен в северо-западной части Японского моря, на границе умеренной и субтропической зон, характеризуется многообразием прибрежных грунтов, физико-химических условий среды и сложностью гидрологического режима. Залив Петра Великого в целом выделяется не только как уникальный природно-климатический регион, где сочетаются виды умеренных и субтропических широт, но и как достаточно загрязненная акватория, особенно в своей северной части. Берега залива Петра Великого образовались в четвертичном периоде, для которого характерно чередование трансгрессивных

и регрессивных эпох (наступление и отступление моря). Различные состояния уровня моря нашли отражение в надводных и подводных морских террасах, волноприбойных нишах, расположенных значительно выше современного уровня моря, затопленных пляжах и долинах рек [28].

Уссурийский залив — крупнейший водоем залива Петра Великого, расположенный в его северо-восточной части и ограниченный с запада полуостровом Муравьева-Амурского и островами архипелага Императрицы Евгении (Русский, Попова, Рейнеке и др.), а с востока — островом Аскольд. На берегах Уссурийского залива работают различные предприятия судоремонтной, строительной, топливной и сельскохозяйственной отраслей. Воды залива используются для прибрежного рыболовства и аквакультуры. В северной, верхней части залива расположена крупная рекреационная зона.

Амурский залив отличается высоким содержанием органического вещества. На северо-западе в Амурский залив впадает вторая по величине южного Приморья река Раздольная, которая играет большую роль в функционировании экосистемы залива [29]. Суммарный твердый сток реки равен 462 тыс. т при величине ионного стока 157 тыс. т. В этой части залива происходит смешение пресных и соленых морских вод, которое ведет к продолжению процессов флокуляции и образования оксигидроксидов Fe и Mn, на поверхности которых сорбируются тяжелые металлы. Дополнительно на химический состав донных осадков влияют гумусовые вещества, содержащие химические элементы, накопленные организмами и растениями еще при жизни, и антропогенные факторы, которые могут проявляться в восточной части залива вдоль береговой черты г. Владивостока [16].

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

В результате полевых работ в Амурском и Уссурийском заливах были отобраны 2 керна донных осадков и 3 пробы воды (рис. 1). Для отбора керна донных отложений использовался модифицированный поршневой бур ударного типа [30] с диаметром пробоотборника 110 мм. Было отобрано 2 керна: один в Амурском (глубина отбора — 10.3 м, мощность — 52 см) и один в Уссурийском заливе (глубина отбора — 12 м, мощность — 32 см). Кроме того, на трех точках в Уссурийском заливе через полипропиленовые фильтры переменной пористости с размером пор 1–5 мкм было прокачено от 5000 до 6500 л морской воды. На каждой точке фильтры были установлены последовательно один за другим, при забивании первого фильтра его подписывали и заменяли на новый. Второй фильтр оставался неизменным все время отбора (табл. 1).

Чем ближе к открытому морю располагалась точка, тем меньшее количество взвеси осаждалось на фильтрах. Отфильтрованную воду отбирали в пластиковые бочки (50 л) и доставляли в Институт химии ДВО



Рис. 1. Месторасположение точек отбора кернов донных осадков и воды (синие точки — отбор кернов осадков, красные — отбор воды; цифрами указан прокачанный через фильтры объем).

РАН для проведения соосаждения актиноидов с гидроксидом железа по методике, разработанной авторами. Подробно методика соосаждения актиноидов из проб большого объема описана в работе [31].

После отбора керны донных осадков также доставляли в лабораторию Института химии ДВО РАН. Для последующего проведения аналитических исследований на содержание радионуклидов производили послыйный отбор образцов из центральной части керна площадью 4×5 см, деформация осадка была минимальной, и не происходило загрязнения донных отложений по стенкам пробоотборника. Керны из заливов нарезали на слои 1 см. При отборе проб производили детальные измерения объема пробы для определения плотности осадка, которую в дальнейшем использовали для расчета суммарных запасов анализируемых актиноидов. Каждый из образцов просушивали при температуре 105°C в течение 8 ч, затем перетирали и помещали в емкость с заданной геометрией для дальнейшего проведения гамма-спектрометрического анализа.

Определение Np, Pu и Am проводили методом тандемного квадрупольного ИСП-МС/МС (Agilent 8800) в Университете Ланчжоу (Китай). Пробу (около 5 г) взвешивали в стакане и озоляли при 450°C

Таблица 1. Количество фильтров, отобранных в Уссурийском заливе

Количество прокачанной воды, л	Первый фильтр (1–5 мкм, шт.)	Второй фильтр (1–5 мкм, шт.)
6500	5	1
5000	4	1
5300	2	1

в течение 10 ч для удаления органических веществ, в озоленную пробу добавляли метки: ^{242}Pu и ^{243}Am (~ 0.05 Бк каждого на пробу). После разбавления водой (Milli-Q) добавляли NH_3 для стабилизации pH 8–9. Осадок растворяли в HCl , валентные состояния Np и Pu корректировали до Pu(IV) и Np(IV) с помощью KHSO_3 и HNO_3 , приготовленный раствор загрузили на колонку TEVA (2 мл). Промывали 100 мл 4 М HNO_3 , с помощью 60 мл 6 М HCl смывали торий, который может присутствовать в природных образцах. Фракцию Np/Pu смывали с помощью 40 мл 0.1 М $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl}$ -2 М HCl . Для отделения америция использовали колонку DGA (2 мл). Америций смывали с помощью 40 мл 0.5 М HCl . Подробная методика описана в работе [32]. Пределы обнаружения составляют: 1.8 фг (0.047 мкБк) для ^{237}Np , 6.7 фг (15.4 мкБк) для ^{239}Pu , 3.0 фг (25.2 мкБк) для ^{240}Pu и 0.9 фг (114.2 мкБк) для ^{241}Am .

Адсорбция актиноидов на взвешенном веществе и донном осадке представлена коэффициентом распределения между твердой и жидкой фазами

$$K_d (\text{л/кг}) = C_s/C_e,$$

где C_s — концентрация актиноида, адсорбированного на твердой фазе (Бк/кг), C_e — концентрация актиноида в водной фазе (Бк/л) [33].

Для определения скорости осадконакопления с помощью техногенного Pu на эпюре его вертикального распределения был выделен пик, который соответствует максимуму глобальных выпадений в 1963 г. (основные испытания ядерного оружия в Северном полушарии). Для подтверждения условия, что пик относится к глобальным выпадениям и соответствует 1963 г., было проведено определение соотношений изотопов $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В воде Уссурийского залива определены ультранизкие концентрации Np, Pu и Am (табл. 2). Атомные соотношения четко указывают на источник поступления радионуклидов — глобальные выпадения. Определено, что локальные источники не оказали влияния на содержание актиноидов в воде.

Изотопные соотношения плутония, полученные в результате испытаний ядерного оружия, зависят от мощности взрыва и изотопного состава плутония в делящихся материалах. Высокие отношения активностей $^{241}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$, высокие отношения атомов $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (0.3) и более низкие отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$ (< 0.01) наблюдались после термоядерных испытаний, проведенных США в 1950-х гг., а более низкие отношения атомов $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (0.036–0.063) — в ядерных испытаниях, проведенных бывшим СССР (Семипалатинский полигон). После введения моратория на испытания ядерного оружия в атмосфере, подписанного в 1963 г., новое поступление радионуклидов, произведенных в результате испытаний

в стратосфере, было ограничено, так как их вклад был незначительным. Поэтому максимумы концентраций радионуклидов, полученных в результате испытаний (например, ^{14}C , ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu и ^{241}Pu), в нижней тропосфере наблюдались в 1963 г. [34]. Для плутония, полученного при взрыве ядерной бомбы (глобальные выпадения), отношение активностей $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, ^{240}Pu составляет ~ 0.03 , отношение активностей $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, ^{240}Pu — 13–15, а отношение атомов $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ — 0.18. Таким образом, источником плутония в воде Уссурийского залива являются глобальные выпадения.

По оценкам, в ходе наземных испытаний ядерного оружия в окружающую среду было выброшено до 3 т ^{237}Np . В ходе ряда исследований, посвященных изучению поведения трансурановых радионуклидов в различных экосистемах, измерено соотношение атомов $^{237}\text{Np}/^{239}\text{Pu}$ в различных почвах Северного полушария. Полученные данные свидетельствуют о том, что глобальное соотношение $^{237}\text{Np}/^{239}\text{Pu}$ в радиоактивных осадках составляет около 0.45, а общее количество ^{237}Np — 1.5 т [35]. В образцах воды из Уссурийского залива соотношение $^{237}\text{Np}/^{239}\text{Pu}$ выше уровня глобальных выпадений. Однако стоит учитывать, что в работе [35] были проанализированы образцы почв. Поведение же нептуния и плутония в морской среде различно, что приводит к изменению атомного соотношения. Так, плутоний более активно удерживается осадками по сравнению с нептунием (см. ниже), что приводит к увеличению соотношения $^{237}\text{Np}/^{239}\text{Pu}$ в морской воде. Проведенное в данной работе измерение соотношения $^{237}\text{Np}/^{239}\text{Pu}$ является первым для данного региона. Кроме того, из-за гораздо более низкого содержания нептуния измеренное соотношение атомов $^{237}\text{Np}/^{239}\text{Pu}$ в большей степени зависит от метода измерения и, следовательно, более изменчиво, чем, например, соотношение атомов $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ [36].

Количество америция в воде залива Петра Великого соответствует средней концентрации в Тихом океане. Установлено, что в Тихом океане концентрация ^{241}Am увеличивается от менее 1 мБк/м³ на поверхности до 9–20 мБк/м³ на глубинах до 600–900 м, а затем плавно снижается с увеличением глубины [37].

Анализ актинидов в фильтрах с порами 1–5 мкм показал наличие актинидов в частицах указанного размера (взвешенного вещества) (табл. 3). Америций в фильтрах был ниже предела обнаружения, что указывает на его миграцию преимущественно в растворенном состоянии.

Результаты исследования взвешенного вещества показывают, что при выходе в открытое море количество взвешенного вещества и количество

актинидов в нем уменьшаются. Это может указывать на так называемый «эффект разбавления» при условии большего перемешивания водных масс.

Установлено, что в подземных водах доля растворенного плутония составляет 25–35%, оставшаяся часть мигрирует со взвешенным веществом [38]. В морской среде от 52 до 96% актинидов мигрирует в растворенном состоянии или связано с частицами ≤ 0.45 мкм [39]. Роль взвешенного вещества в миграции актинидов не столь существенна, как, например, роль коллоидов, однако для морской среды она имеет важное значение с точки зрения биодоступности. Коэффициенты распределения (взвешенное вещество — вода) составили 0.11–0.3 и 0.02–0.07 для ^{237}Np и $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ соответственно. Таким образом, в данной работе мы количественно оценили распределение актинидов со взвешенным веществом размером 1–5 мкм в заливе Петра Великого. Количество нептуния и плутония, мигрирующего со взвешенным веществом размером 1–5 мкм, оценивается в 0.04% для плутония и 0.1% для нептуния.

Распределение плутония в донных осадках обоих заливов имеет выраженные пики с максимальной концентрацией (рис. 2). Можно заметить, что профили вертикального распределения плутония, нептуния и америция в целом повторяются для обоих кернов. Это указывает на вероятный один источник их поступления в донные осадки. В результате исследования кернов донных осадков актиниды обнаружены во всех исследованных горизонтах. Таким образом, мощность отобранного керна не позволяет определить время попадания первых актинидов в заливы.

Удельные активности актинидов в Амурском заливе выше, чем в Уссурийском, примерно в два раза. Это может указывать на сильный их вынос с водосбора рекой Раздольная, в эстуарии которой находится точка отбора керна в Амурском заливе.

Ранее для Амурского залива было определено, что исследуемая территория не является радиоактивно загрязненной. Максимальная удельная активность ^{137}Cs составляет 10 Бк/кг, а его запас — 0.16 Бк/м². Несмотря на некоторые различия в минералогических профилях, процесс осадконакопления в течение 150 лет был равномерным, и скорость осадконакопления определена в 0.43–0.5 мм/год [40]. Точка отбора керна, представленного в данном исследовании, находится значительно ближе к устью реки Раздольная, поэтому скорость осадконакопления здесь выше в два раза и составляет 0.9 мм/год. Отобранный керн характеризуется повышенным содержанием сапропеля, который начинается с плотного спрессованного слоя (0–7 см), с частичной

Таблица 2. Удельные активности и атомные отношения актинидов в воде Уссурийского залива после фильтрования (фильтр 1–5 мкм)

Номер точки	$^{237}\text{Np} \times 10^{-3}$, мБк/м ³	^{239}Pu , мБк/м ³	^{240}Pu , мБк/м ³	^{241}Am , мБк/м ³	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$^{237}\text{Np}/^{239}\text{Pu}$
6500	19.8–105.7	2.0–5.3	1.4–2.7	24.1–33.5	0.17–0.19	0.71–2.66
5300	38.2–105.6	2.3–3.8	1.6–2.4	12.1–39.8	0.16–0.18	0.91–3.99

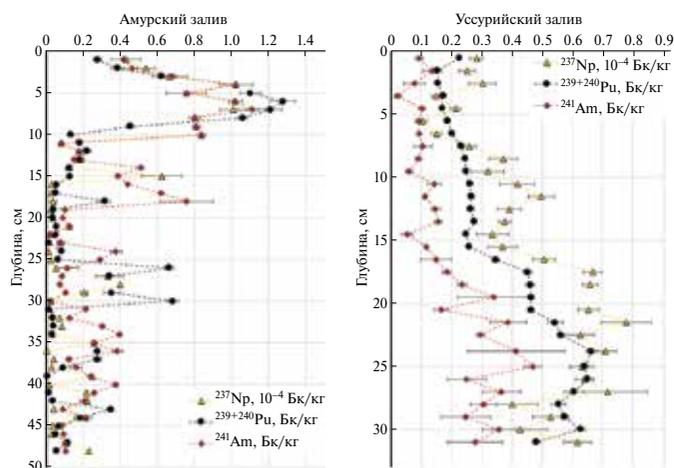


Рис. 2. Вертикальное распределение актинидов по профилям Амурского и Уссурийского заливов ^{237}Np и т. д., 10^{-4} Бк/кг.

примесь частиц песка (7–17 см) и переходом к глиноподобным осадкам легкого (17–22 см) и тяжелого (22–40 см) типов. Плотность горизонтов варьируется от 0.5 до 1.2 г/см³. Рентгенофазовый анализ керна показал наличие четко выраженных рефлексов, соответствующих различным фазам оксида кремния (кварц, халцедон, могоанит). Источником кремнекислородных минералов, общее содержание которых в образцах составляет 30–50%, являются как прибрежные песчаные породы, так и речной поток. На глубине профиля, соответствующей диапазону 17–50 см, установлены преобладающие фазы таких реликтовых минералов, как гематит и магнетит, в наименьшей степени — кварца и могоанита. На глубине профиля 45 см также выявлена фаза сульфида железа (FeS_2), образование которой может быть связано с окислительно-восстановительными процессами разложения органических остатков биоты и металлических конструкций, подвергающихся коррозии. Магнетит и гематит могут препятствовать процессам диффузии актинидов обратно в воду. Помимо карбоната кальция, в пробах из Амурского залива присутствует фаза сульфата кальция (гипс) биогенного происхождения. Первоначальные образцы содержали остатки раковин двусторчатых моллюсков различных видов [41].

Уссурийский залив намного чаще упоминается в литературе в связи с аварией в бухте Чажма в 1985 г. Радиационная обстановка здесь не раз исследовалась [21, 27, 42, 43]. Совместные исследования,

Таблица 3. Содержание актинидов во взвешенном веществе размером 1–5 мкм

Точка	$^{237}\text{Np} \times 10^{-3}$, мБк/м ³	^{239}Pu , мБк/м ³	^{240}Pu , мБк/м ³
6500	30.4 ± 1.08	0.14 ± 0.02	0.07 ± 0.002
5000	21.0 ± 0.82	0.11 ± 0.03	0.07 ± 0.002
5300	11.4 ± 0.44	0.07 ± 0.01	0.03 ± 0.002

проведенные в 1994 г. Дальневосточным региональным научно-исследовательским гидрометеорологическим институтом, Приморским управлением по гидрометеорологии и мониторингу окружающей среды и Тихоокеанским флотом, показали, что последствия ядерных испытаний, проведенных в Китае в 1976–1981 гг., и аварии на Чернобыльской АЭС имеют большее значение для загрязнения залива Петра Великого, чем авария в Бухте Чажма в 1985 г.

Продукты глобальных выпадений собирались поверхностными водами с водосборов и сбрасывались реками Раздольная и Барабашевка в Амурский залив и Суходол — в Уссурийский залив. В донных отложениях этих заливов по сравнению с Японским морем накопилось в 4–6 раз больше ^{137}Cs и ^{90}Sr и в 2–3 раза больше $^{239,240}\text{Pu}$. Однако ^{60}Co не был обнаружен нигде, за исключением небольшого участка, примыкающего к полуострову Дунай в районе, где радиоактивный след достигает береговой линии залива [27]. Настоящим исследованием определена скорость осадконакопления для Уссурийского залива: 4.1 мм/год. Такую экстремально высокую скорость осадконакопления можно объяснить антропогенным воздействием. Точка отбора располагается в заливе, который расположен под полигоном твердых бытовых отходов (рис. 1). Минералогический анализ керна, как и для Амурского залива, определил основные минералы — кварц, халцедон и могоанит. Значительная часть осадков представлена также такими минералами, как альбит ($\text{Na}[\text{AlSi}_3\text{O}_8]$) с примесью кальция, кальцит (CaCO_3), анкерит ($\text{Ca}(\text{Fe}, \text{Mg})(\text{CO}_3)_2$), что может способствовать накоплению железа, а с ним и актинидов. Альбит — наиболее распространенный породобразующий минерал магматического происхождения, относящийся к классу алюмосиликатов, источником которого могут служить

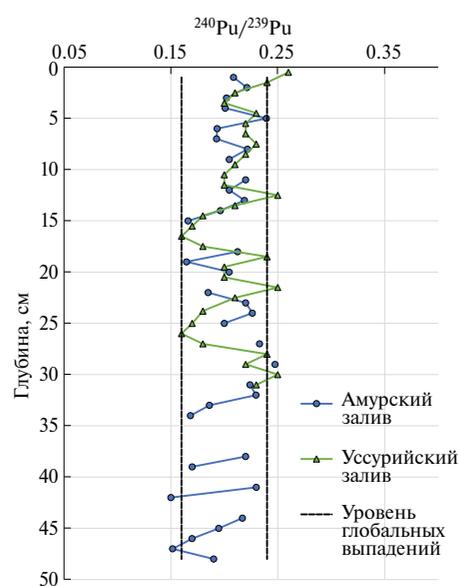


Рис. 3. Атомные соотношения в пробах донных осадков Амурского и Уссурийского заливов.

Таблица 4. Коэффициенты перехода (л/кг) для взвешенного вещества (1–5 мкм) и донных осадков (среднее значение) залива Петра Великого (отношение удельной активности в объекте к удельной активности в воде)

Вещество	²³⁷ Np	^{239, 240} Pu
Взвешенное вещество	0.11–0.30	0.02–0.07
Донные осадки	1262–1352	36842–46875

подводные и наземные вулканы дальневосточного побережья и, в частности, воды Японского моря. Фаза карбоната кальция, относящаяся, вероятно, к арагониту, образовалась в результате разрушения раковин моллюсков и является биогенным аккумулятором актинидов [41].

Соотношения изотопов плутония в кернах донных осадках подтвердили, что основным источником попадания сюда актинидов являются глобальные выпадения (рис. 3).

Установлены коэффициенты перехода актинидов в заливе Петра Великого: растворенные, включая коллоиды, — взвешенное вещество (1–5 мкм) — донный осадок для морской среды (табл. 4).

Основная масса этих актинидов содержится в донных осадках (>99%). Америций обнаружен только в воде (в растворенной форме) и донных осадках.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В воде залива Петра Великого обнаружены очень малые концентрации радионуклидов, таких как Np, Pu и Am. Удельная активность ²³⁷Np составляет $(19–105) \times 10^{-3}$ мБк/м³, ²³⁹Pu — от 2.0 до 5.3 мБк/м³, ²⁴¹Am — колеблется в диапазоне от 24.1 до 33.5 мБк/м³.

Изотопные соотношения Pu в воде залива Петра Великого и совпадение вертикальных профилей распределения Np, Pu, Am указывают на глобальные выпадения как основной источник поступления актинидов в воду. Таким образом, изучение глобальных процессов, связанных с радиоактивным загрязнением, может иметь важное значение для понимания распространения радионуклидов в окружающей среде.

Удельные активности актинидов в Амурском заливе выше, чем в Уссурийском, примерно в два раза. Это может указывать на сильный их вынос с водосбора рекой Раздольная, в эстуарии которой находится точка отбора керна в Амурском заливе.

Концентрации америция в воде залива Петра Великого соответствуют уровню средней концентрации в Тихом океане, что свидетельствует о низкой степени загрязнения воды Уссурийского залива и указывает на роль глобальных процессов в распространении радионуклидов.

Профили вертикального распределения Np, Pu и Am в донных осадках Уссурийского залива указывают на уменьшение их концентрации с глубиной и при выходе в открытое море. Это может быть связано с эффектом разбавления, который происходит при перемешивании водных масс.

Исследование подтверждает, что авария в бухте Чажма не оказала значительного влияния на содержание актинидов в воде Уссурийского залива. Это может оказаться важным при анализе влияния различных источников загрязнения на окружающую среду и определении стратегий управления радиоактивными отходами.

Представленное исследование является пилотным для исследования накопления труднодетектируемых актинидов в заливах Петра Великого.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена в рамках гранта Российского научного фонда, проект 21-43-00025.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы данной работы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Chang Y.-C., Zhao X., Han Y. // *Ocean Coast. Manag.* 2022. Vol. 227. Article 106294.
2. Liu D., Hoskin M. // *Ocean Coast. Manag.* 2023. Vol. 234. Article 106452.
3. TEPCO: Result of Radioactive Analysis around Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (January, 2020).
4. Lu Y., Yuan J., Du D., Sun B., Yi X. // *Geogr. Sustain.* 2021. Vol. 2. N 2. P. 95–98.
5. Hong G.-H., Kim S.-H., Lee S.-H., Chung C.-S., Tkalin A.V., Chaykovskaya E.L., Hamilton T.F. // *Marine Pollut. Bull.* 1999. Vol. 38. N 10. P. 933–943.
6. Livingston H.D., Povinec P.P. // *Health Phys.* 2002. Vol. 82. N 5. P. 656.
7. Hirose K., Amano H., Baxter M.S., Chaykovskaya E., Chumichev V.B., Hong G.H., Isogai K., Kim C.K., Kim S.H., Miyao T., Morimoto T., Nikitin A., Oda K., Pettersson H.B.L., Povinec P.P., Seto Y., Tkalin A., Togawa O., Veletova N.K. // *J. Environ. Radioact.* 1999. Vol. 43. N 1. P. 1–13.
8. Neroda A.S., Mishukov V.F., Goryachev V.A., Simonenkov D.V., Goncharova A.A. // *Environ. Sci. Pollut. Res.* 2014. Vol. 21. N 8. P. 5669–5677.
9. Evrard O., Lacey J.P., Lepage H., Onda Y., Cerdan O., Ayrault S. // *J. Environ. Radioact.* 2015. Vol. 148. P. 92–110.
10. Buessler K., Dai M., Aoyama M., Benitez-Nelson C., Charmasson S., Higley K., Maderich V., Masqué P., Morris P.J., Oughton D., Smith J.N. // *Annu. Rev. Marine Sci.* 2017. Vol. 9. N 1. P. 173–203.
11. Koo Y.-H., Yang Y.-S., Song K.-W. // *Prog. Nucl. Energy.* 2014. Vol. 74. P. 61–70.
12. Funabashi Y., Kitazawa K. // *Bull. At. Sci.* 2012. Vol. 68. N 2. P. 9–21.

13. Mathieu A., Kajino M., Korsakissok I., Périllat R., Quélo D., Quérel A., Saunier O., Sekiyama T.T., Igarashi Y., Didier D. // Appl. Geochem. 2018. Vol. 91. P. 122–139.
14. Choppin G.R., Wong P.J. // Aquat. Geochem. 1998. Vol. 4. N 1. P. 77–101.
15. Choppin G.R. // Marine Chem. 2006. Vol. 99. N 1. P. 83–92.
16. Polyakov D.M., Mar'yash A.A., Mozherovskii A.V. // Water Resources. 2019. Vol. 46. N 2. P. 209–213.
17. Tsoy I., Prushkovskaya I., Aksentov K., Astakhov A. // Ocean Sci. J. 2015. Vol. 50. N 2. P. 433–444.
18. Блиновская Я.Ю., Якименко А.Л. // Успехи соврем. естествознания. 2018. № 1. С. 68–73.
19. Лишавская Т.С., Севастьянов А.В., Чернова А.С., Чаткина Т.В. // Труды ГУ «Дальневосточный региональный научно-исследовательский гидрометеорологический институт». 2010. № 1. С. 97–112.
20. Обзор современного экологического состояния залива Петра Великого (2000–2010 гг.). URL: <https://cyberleninka.ru/article/n/obzor-sovremennogo-ekologicheskogo-sostoyaniya-zaliva-petra-velikogo-2000-2010-gg/viewer> (дата обращения: 17.07.2022).
21. Kalin A.V., Chaykovskaya E.L. // J. Environ. Radioact. 2000. Vol. 51. N 2. P. 229–238.
22. Ярошук И.О., Леонтьев А.П., Кошелева А.В., Пивоваров А.А., Самченко А.Н., Степанов Д.В., Швырев А.Н. // Метеорология и гидрология. 2016. № 9. С. 55–62.
23. Astakhov A.S., Kalugin I.A., Aksentov K.I., Dar'in A.V. // Geochem. Int. 2015. Vol. 53. N 4. P. 383–388.
24. Stonik I.V., Zinov A.A. // J. Marine Sci. Eng. 2023. Vol. 11. N 5. P. 1024.
25. Duran E.B., Povinec P.P., Fowler S.W., Airey P.L., Hong G.H. // J. Environ. Radioact. 2004. Vol. 76. N 1–2. P. 139–160.
26. Hong G.-H., Kim S.-H., Lee S.-H., Chung C.-S., Tkalin A.V. // Marine Pollut. Bull. 1999. Vol. 38. N 10. P. 933–943.
27. Sarkisov A.A., Vysotskii V.L., Pripachkin D.A. // At. Energy. 2020. Vol. 127. N 3. P. 159–165.
28. Коротченко Р.А., Самченко А.Н., Ярошук И.О. // Океанология. 2014. Т. 54. № 4. С. 538–545.
29. Сезонная гипоксия Амурского залива (Японское море). URL: <https://cyberleninka.ru/article/n/sezonnaya-gipoksiya-amurskogo-zaliva-yaponskoe-more/viewer> (дата обращения: 18.08.2022).
30. Nesje A. // Arctic Alpine Res. 1992. Vol. 24. N 3. P. 257–259.
31. Rozhkova A.K., Kuzmenkova N.V., Pryakhin E.A., Mokrov Y.G., Kalmykov S.N. // J. Environ. Radioact. 2021. Vol. 232. Article 106569.
32. Luo M., Xing S., Yang Y., Song L., Ma Y., Wang Y., Dai X., Happel S. // J. Environ. Radioact. 2018. Vol. 187. P. 73–80.
33. Amiard J.-C. Marine Radioecology. Wiley, 2023. Vol. 6. 340 p.
34. Hirose K., Povinec P.P. // Sci. Rep. 2015. Vol. 5. N 1. Article 15707.
35. Beasley T.M., Kelley J.M., Maiti T.C., Bond L.A. // J. Environ. Radioact. 1998. Vol. 38. N 2. P. 133–146.
36. Kelley J.M., Bond L.A., Beasley T.M. // Sci. Total Environ. 1999. Vol. 237–238. P. 483–500.
37. Kinoshita N., Nagaoka M., Nakanishi T. // Sci. Total Environ. 2021. Vol. 753. Article 142087.
38. Novikov A.P., Goryachenkova T.A., Travkina A.V., Myasnikov I.Yu. // Advances in Geochemistry, Analytical Chemistry, and Planetary Sciences: 75th Anniversary of the Vernadsky Institute of the Russian Academy of Sciences / Eds. V.P. Kolotov, N.S. Bezaeva. Cham: Springer, 2023. P. 629–643.
39. Lujanienė G., Šilobritienė B., Tracevičienė D., Šemčuk S., Romanenko V., Garnaga-Budrė G., Kaizer J., Povinec P.P. // J. Environ. Radioact. 2022. Vol. 249. Article 106892.
40. Kuzmenkova N., Rozhkova A., Egorin A., Tokar E., Grabenko E., Shi K., Petrov V., Kalmykov S., Hou X. // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2023. Vol. 332. N 4. P. 959–971.
41. Tokar' E., Kuzmenkova N., Rozhkova A., Egorin A., Shlyk D., Shi K., Hou X., Kalmykov S. // Water. 2023. Vol. 15. N 12. P. 2267.
42. Budyanskiy M.V., Fayman P.A., Uleysky M.Yu., Prants S.V. // Marine Pollut. Bull. 2022. Vol. 177. Article 113483.
43. Ivanova E.P., Gorshkova N.M., Mikhailov V.V., Sergeev A.F., Gladkikh R.V., Goryachev V.A., Dudarev O.V., Botsul A.I., Mozherovskiy A.V., Slinko E.N., Kiselev V.I. // Russ. J. Marine Biol. 2005. Vol. 31. N 2. P. 65–72.

DISTRIBUTION OF Np, Pu AND Am IN WATER, SUSPENDED MATTER, AND BOTTOM SEDIMENTS OF PETER THE GREAT BAY

N. V. Kuzmenkova^{a,*}, V. G. Petrov^a, A. K. Rozhkova^{a,b}, E. A. Tokar^c, K. Shi^d, S. N. Kalmykov^a, and H. Hou^d

^aDepartment of Chemistry, Moscow State University, Leninskie gory, 1, str. 3, Moscow, 119991 Russia

^bVernadsky Institute of Geochemistry and Analytical Chemistry, Russian Academy of Sciences, ul. Kosygina, 19, Moscow, 119991 Russia

^cInstitute of Chemistry, Far Eastern Branch, Russian Academy of Sciences, pr. 100-letiya Vladivostoka, 159, Vladivostok, 690022 Russia

^dSchool of Nuclear Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou, 730000 China

e-mail: *kuzmenkovanv@my.msu.ru

Received August 21, 2023; revised December 18, 2023; accepted December 19, 2023

Abstract—The content of ²³⁷Np, ^{239,240}Pu, and ²⁴¹Am in seawater, suspended matter, and bottom sediment cores of the Ussuri and Amur Bays, sampled in July 2021 and August 2022, was analyzed. The activity concentrations of ²³⁷Np, ^{239,240}Pu, and ²⁴¹Am in the water of Peter the Great Bay were determined for the first time and were found to be equal to (19–105) × 10^{−3}, 2.0–5.3, and 24.1–33.5 mBq/m³, respectively. The activity concentrations as well as the ²³⁹Pu/²⁴⁰Pu isotope ratio (~0.18) in the bottom sediments definitely indicate that global fallout is the main source of plutonium in the investigated territory. The sedimentation rates were determined for the Amur Bay (in the Razdolnaya River estuary), 0.9 mm/year, and for the Ussuri Bay, 4.1 mm/year. Actinide transfer coefficients were determined for Peter the Great Bay in the system dissolved forms, including colloids—suspended matter—bottom sediment.

Keywords: actinides, neptunium, plutonium, americium, Ussuri Bay, Amur Bay, water, suspended matter, bottom sediments