

СОДЕРЖАНИЕ И ФОРМЫ НАХОЖДЕНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В ВОДЕ И ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЯХ МОРЯ ЛАПТЕВЫХ

© 2023 г. Т. А. Горяченкова^a, А. В. Травкина^a, ^{*}А. П. Борисов^a, Г. Ю. Соловьева^a, И. Е. Казинская^a, ^{**}А. Н. Лигаев^a, А. П. Новиков^a

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

*e-mail: a_travkina@mail.ru

Поступила в редакцию 07.11.2021 г.

После доработки 16.09.2022 г.

Принята к публикации 16.09.2022 г.

В представленной работе изучались особенности распределения ^{137}Cs и изотопов плутония в современных осадках различных частей моря Лаптевых, отобранных в ходе экспедиционных исследований на НИС “Академик Мстислав Келдыш” в 2017 и 2019 гг. Было установлено, что активность ^{137}Cs в воде и донных отложениях находятся в пределах глобального фона, характерного для морей Арктического региона. Во всех отобранных пробах удельное содержание изотопов $^{239,240}\text{Pu}$ находится ниже уровня минимально детектируемой активности. По результатам изотопного анализа избыточного ^{210}Pb скорость осадконакопления в двух колонках, отобранных в акватории моря Лаптевых, составляет 0.18 и 0.23 см/год. Изучение несколькими методами форм нахождения ^{239}Pu , внесенного в образцы донных отложений в лабораторных условиях, показало, что основная доля ^{239}Pu связана с труднорастворимыми органо-минеральными компонентами. В составе органических легкорастворимых кислот и гумусовых веществ, которые включают в себя фульво- и гуминовые кислоты донных отложений, найдено 30–39% ^{239}Pu .

Ключевые слова: радионуклиды, донные отложения, формы нахождения, органические вещества

DOI: 10.31857/S0016752523030068, **EDN:** MAYTUI

Искусственные радионуклиды, в частности, изотопы ^{137}Cs и $^{239,240}\text{Pu}$, вследствие проводившихся экспериментальных ядерных взрывов, работы предприятий ядерного топливного цикла, а также имевших место технологических нарушений и аварийных ситуаций на них, стали постоянными и необратимыми компонентами биосфера. Исследования радиоактивного загрязнения акватории Мирового океана были начаты с момента первых испытаний ядерного оружия. Среди морей российского Арктического региона наиболее изученным является Карское море, где в ходе экспедиционных работ были получены результаты по содержаниям ^{137}Cs , ^{90}Sr и $^{238-240}\text{Pu}$ в морской воде и донных отложениях (Горяченкова и др., 2000; Горяченкова и др., 2019; Травкина et al., 2017). Радиоэкологическое состояние моря Лаптевых в настоящее время недостаточно изучено, ранее не проводились исследования по оценке форм нахождения радионуклидов в донных отложениях.

Акватория моря Лаптевых, которое относится к типу материковых окраинных морей, характеризуется суровыми климатическими условиями. Его площадь составляет 662 тысячи км², средняя

глубина – 553 м. Среди всех окраинных арктических морей, море Лаптевых испытывает минимальное влияние теплых тихоокеанских и атлантических течений (Дружкова и др., 2013). Отрицательные температуры воздуха сохраняются в акватории моря Лаптевых 11 месяцев и достигают –28–34°C в северной его части. Море Лаптевых отличается обширным шельфом и обильным стоком речных вод, в первую очередь реки Лена (до 600 км³/год) и р. Хатанга (до 100 км³/год). Взвешенное вещество речного стока прослеживается на расстоянии до 500 км от устья рек. Пространственное распределение взвешенного вещества контролируется 3-мя процессами: разбавлением речных вод морскими; биоседиментацией из верхних горизонтов вод и взмучиванием придонного слоя донных осадков. Концентрация взвесей в поверхностных водах моря Лаптевых в широтах 73°–76° изменялась в пределах 0.2–1.6 мг/л. В зимний период в воде моря Лаптевых отмечалось минимальное значение биомассы (до 0.8 мкг С_{опр}/л). Осенью, в прибрежной зоне дельты р. Лена, биомасса микропланктона достигала 5.7 мкг С_{опр}/л (Ветров и др., 2008; Купцов и др., 1999). Соленость воды моря Лаптевых за счет поступающей речной воды

полноводных рек составляет 20–25%, с глубиной соленость повышается, pH морской воды составляет 7.0–7.8.

Поступление радионуклидов в воды и донные отложения морей Арктического региона происходит из нескольких источников: водным путем со стоками рек, протекающих по загрязненным территориям и впадающим в моря Арктики, с морскими течениями, грунтовыми водами, находящимися в контакте с загрязненными почвами и воздушным переносом в составе аэрозолей. Было установлено, что основным источником минеральных и органических частиц аэрозолей, поступающих в акваторию морей Арктики являются металлургические предприятия Севера, лесные пожары, дальний перенос вещества из среднеширотных районов материка, при этом потоки аэрозольного вещества на поверхность морей Арктики с дальнейшей концентрацией их в донных осадках и биоте морей, составляют около 570 мг/м² в год (Астахов и др., 2018; Купцов и др., 1999).

Для прогнозирования миграционных процессов, основанных на степени подвижности радионуклидов в образцах природной среды, важно знать не только общее содержание радионуклидов, но и формы их нахождения в биосфере. От прочности связи радионуклидов с различными компонентами морской среды зависит направленность и интенсивность их миграции в системе морская вода—донные отложения и обратно. Формы нахождения радионуклидов в нативных условиях можно изучать при условии достаточного их содержания для эксперимента в образцах природной среды. Для изучения форм нахождения радионуклидов, если их активность мала, используют метод внесения радионуклидов в образцы в лабораторных условиях. Существует множество методов изучения форм нахождения радионуклидов и химических элементов в экосистемах, однако все они являются в разной степени условными, так как в лабораторных условиях трудно подобрать реагенты, извлекающие из почв или донных отложений конкретные группы соединений химических элементов. Несмотря на условность таких методов, они широко применяются в геохимии, почвоведении, радиохимии, и полученные при этом результаты позволяют судить о поведении, геохимической подвижности химических элементов и радионуклидов в природной среде (Санжарова и др., 2005; Алексахин, 1992; Павлоцкая и др., 2003; Горяченкова и др., 2005).

Целью настоящего исследования является: 1 – изучение особенностей распределения искусственных радионуклидов ¹³⁷Cs и ^{239, 240}Pu в воде и донных отложениях моря Лаптевых; 2 – оценка предполагаемых форм нахождения ²³⁹Pu, внесенного в образцы донных отложений моря Лаптевых в лабораторных условиях.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Объекты и методы исследования

На рис. 1 представлена карта станций отбора проб морской воды и донных отложений во время экспедиций на НИС “Академик Мстислав Келдыш” в 2017–2019 гг.

Пробы морской воды (120 л) для определения объемной активности ¹³⁷Cs отбирали с помощью погружного насоса типа “Малыш” в пластиковую бочку, снабженную патрубком у дна, к которому была присоединена сорбционная колонка. В качестве сорбента использовали ферроцианид кобальта, закрепленный на волокнистом целлюлозном носителе в количестве 10 г. Скорость фильтрации составляла 150–200 мл/мин.

Отбор донных отложений проводили с помощью бокскорера. Из блока осадков, поднятого бокскорером, вырезали колонки с помощью пластиковой трубы с заостренным краем, медленно вдавливая ее перпендикулярно слою осадка. Колонки разрезали последовательно на слои толщиной 1 см. В лаборатории пробы высушивали в сушильном шкафу при $T = 80^{\circ}\text{C}$ до постоянной массы, взвешивали, измельчали в ступке, просеивали через сито 1 мм.

Активность гамма-излучающих радионуклидов определяли с помощью гамма-спектрометра с полупроводниковым детектором из особо чистого германия 70 × 25 мм (Canberra Ind.). Для обработки результатов использовали программное обеспечение Genie 2000 (Canberra Ind.). Для калибровки по эффективности использовали интеркалибровочный препарат MAPEP 97 S4 (Департамент энергетики, США) и сертифицированный стандартный образец IAEA-315 (МАГАТЭ).

Для определения содержания ^{239, 240}Pu в воде пробу объемом 120 л отбирали в пластиковые бочки. Далее в пробу вводили 0.8 г KMnO₄ (одна ампула стандарт-титра KMnO₄ на 0.1М) затем добавляли 5 г MnCl₂·4H₂O, тщательно перемешивая. Затем в пробу при необходимости добавляли NaOH в виде концентрированного раствора для корректировки pH до значений 8–9. Осадок выдерживали одни сутки для формирования компактного слоя, который концентрировали в объеме 1.5 л и доставляли в лабораторию для проведения радиохимического анализа.

Извлечение ^{239, 240}Pu из образцов донных отложений и жидких концентратов проводили методом выщелачивания при 3-х кратном кипячении с 8 М HNO₃. После отделения жидкой фазы от твердой к 8 М HNO₃ раствору добавляли 100 мг NaNO₂ и нагревали 40 мин при 90°C для восстановления плутония. Концентрирование и радиохимическую очистку проводили на хроматографической колонке, заполненной анионитом ВП-1АП, представляющим собой сополимер дивинил бен-

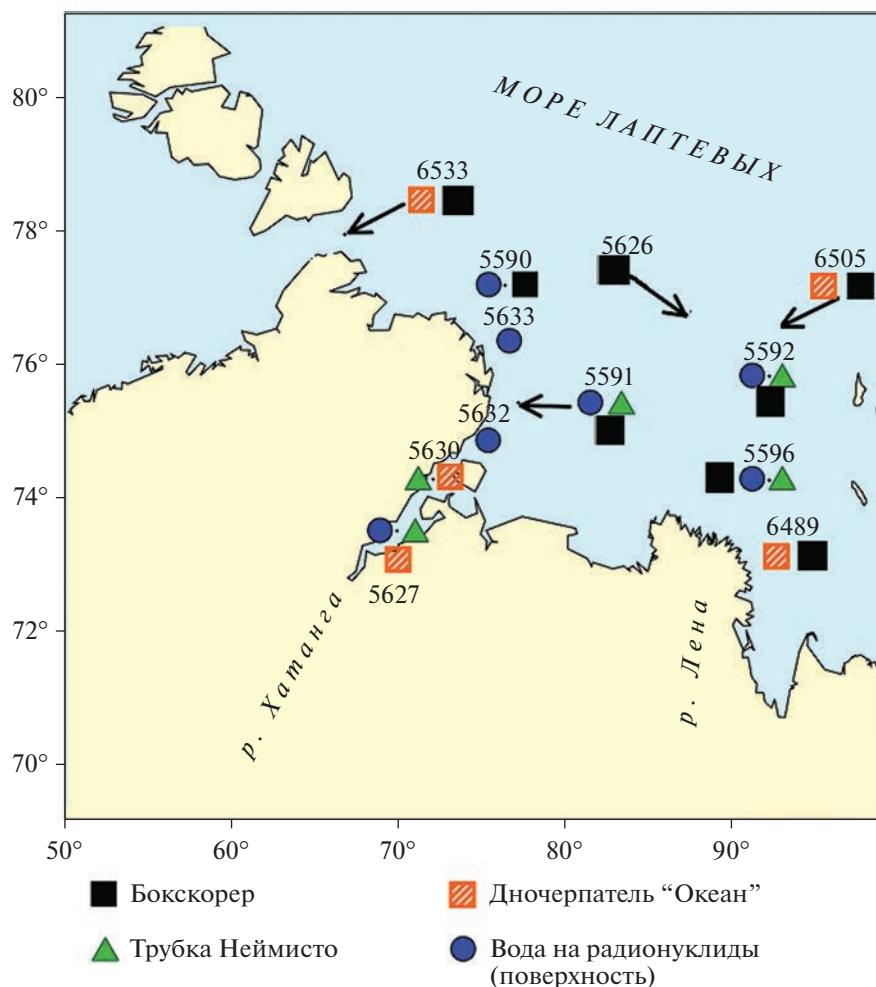


Рис. 1. Карта отбора проб воды и донных отложений.

золя, пиридина и метилпиридина, производство Россия. Колонку с анионитом промывали раствором 8 М HNO_3 , затем 10 М HCl . Десорбцию $^{239},^{240}\text{Pu}$ проводили смесью 0.35 М HNO_3 + 0.01 М HF с последующим осаждением изотопов плутония с микрограммовым количеством LaF_3 (Joshi, 1985) на ядерном фильтре производства г. Дубна (размер пор 0.1 мкм) и измерением полученного осадка на альфа-спектрометре Alpha Analyst (Canberra Ind) с полупроводниковым детектором, площадью чувствительной зоны 600 мм². Химический выход $^{239},^{240}\text{Pu}$ в образцах донных отложений оценивали по внесенной перед анализом метке ^{242}Pu (Павлоцкая и др., 1984).

Формы нахождения ^{239}Pu в образцах донных отложений моря Лаптевых (станции 5591 и 5596), отобранных с горизонтов 1–2 см, изучали после внесения в них раствора $^{239}\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ в лабораторных условиях при тщательном перемешивании и последующем извлечением изотопа ^{239}Pu различными реагентами. Для эксперимента отбиралась

навеска образца массой 1 г. Активность внесенного ^{239}Pu составляла 160 Бк/г. Время нахождения ^{239}Pu в образцах донных отложений до начала эксперимента составляло более 5 мес. Изучение форм нахождения ^{239}Pu проводили из образца весом 1 г в двух повторностях. Активность ^{239}Pu в вытяжках, полученных в ходе эксперимента по изучению форм его нахождения, определяли из аликвот 0.1–0.5 мл после микроосаждения с LaF_3 по методике, описанной выше для донных отложений.

Для изучения форм нахождения ^{239}Pu использовали следующие методы:

1-метод (Tessier et al., 1979), который основан на последовательном выщелачивании химических элементов реагентами, извлекающими определенные группы соединений: обменная (0.4 М MgCl_2); карбонаты (1 М CH_3COONa pH 5.0); оксиды Fe/Mn (0.04 М $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$ в 25% CH_3COOH с pH 2); многократная обработка пробы 30% H_2O_2 для разрушения органического ве-

Таблица 1. Содержание ^{137}Cs в пробах морской воды моря Лаптевых, $\text{Бк}/\text{м}^3$

Номер станции	Координаты станций		^{137}Cs
5590	77°10.2'	114°40.0'	0.6 ± 0.2
5591	75°24.7'	115°26.6'	0.5 ± 0.1
5592	75°48.5'	130°29.7'	0.3 ± 0.1
5596	74°15.0'	130°29.7'	0.8 ± 0.1
5627	73°29.6'	108°10.9'	0.7 ± 0.2
5632	74°50.0'	113°48.5'	0.6 ± 0.1
5633	76°21.5'	114°58.0'	0.7 ± 0.3

щества, затем обработка образца 0.02 М HNO_3 (связь с органическим веществом); минеральный остаток (полное разложение с HF).

2-метод, разработанный в ГЕОХИ РАН, основанный на извлечении определенных групп минеральных соединений образца, различающихся по степени подвижности и растворимости: обменная и легкорастворимая (1 М $\text{CH}_3\text{COONH}_4$, рН 4.8); подвижная (1 М HCl); кислоторастворимая (6 М HCl), труднорастворимая (остаток) (Павлоцкая и др., 2003; Горяченкова и др., 2005).

3. Для изучения возможных связей ^{239}Pu с отдельными группами органического вещества использовали метод Д.С. Орлова (Орлов, 1992; Горяченкова и др., 2005). Декальцирование проводили 3-х кратной обработкой образца 0.1 М HCl до отрицательной реакции на Ca^{2+} , органическое вещество извлекали 0.1 М NaOH . Затем щелочной раствор подкисляли до рН 2, в осадок выпадали гуминовые кислоты (Гк), в кислом растворе оставались низкомолекулярные органические- и фульвокислоты (Фк). Остаток представляет собой труднорастворимые органические вещества (гумины), связанные с минеральной частью образцов.

Содержание $C_{\text{опр}}$ в образцах донных отложений определяли методом бихроматной окисляе-

мости, в декальцинате, растворах Гк и Фк – методом перманганатной окисляемости (Аринушкина, 1970).

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Содержание радионуклидов в воде и донных отложениях моря Лаптевых

На акваториях и водосборных территориях моря Лаптевых отсутствуют прямые локальные источники техногенных радионуклидов. Их уровни и динамика концентраций в водной среде данных морей в настоящее время изучены недостаточно. В море Лаптевых техногенные радионуклиды поступают с морскими течениями из Карского моря через пролив Вилькицкого и вдоль северо-восточной окраины архипелага Северная Земля.

В табл. 1 представлены результаты измерения активностей ^{137}Cs в пробах воды, отобранных в различных районах моря Лаптевых. Удельная активность ^{137}Cs лежит в пределах 0.3–0.8 $\text{Бк}/\text{м}^3$, что согласуется с предыдущими исследованиями, демонстрируя общую тенденцию уменьшения загрязненности морской среды в направлении с запада на восток (Матищов и др., 2019). Относительные максимумы содержания наблюдаются в зоне влияния речного выноса р. Лены (ст. 5596) и в районе маргинального фильтра реки Хатанга (ст. 5627) – 0.8 и 0.7 $\text{Бк}/\text{м}^3$ соответственно. В целом уровни объемной активности ^{137}Cs в море Лаптевых крайне малы, ниже, чем в Карском море, и в последние годы не проявляют динамику роста (Горяченкова и др., 2019; Travkina et al., 2017).

Уровни активности $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ во всех отобранных пробах воды оказались меньше величины минимально детектируемой активности, составляющей 0.01 $\text{Бк}/\text{м}^3$.

В табл. 2 представлены результаты измерения удельных активностей ^{137}Cs в поверхностном слое донных отложений (0–2 см) моря Лаптевых.

Таблица 2. Содержание ^{137}Cs в поверхностном слое донных отложений (0–2 см), $\text{Бк}/\text{кг}$

Номер станции	Координаты станций		^{137}Cs	Погрешность, %
	широта	долгота		
5590	77°10.2'	114°40.0'	2.5	11.2
5591	75°24.7'	115°26.6'	7.4	7.9
5592	75°48.5'	130°29.7'	2.3	9.9
5596	74°15.0'	130°29.7'	2.1	10.8
5626	76°43.7'	125°32.6'	1.6	10.9
6489	73°07.1'	130°23.8'	5.9	8.3
6505	75°12.0'	129°08.6'	4.2	9.8
6533	77°57.1'	104°19.2'	6.7	8.8

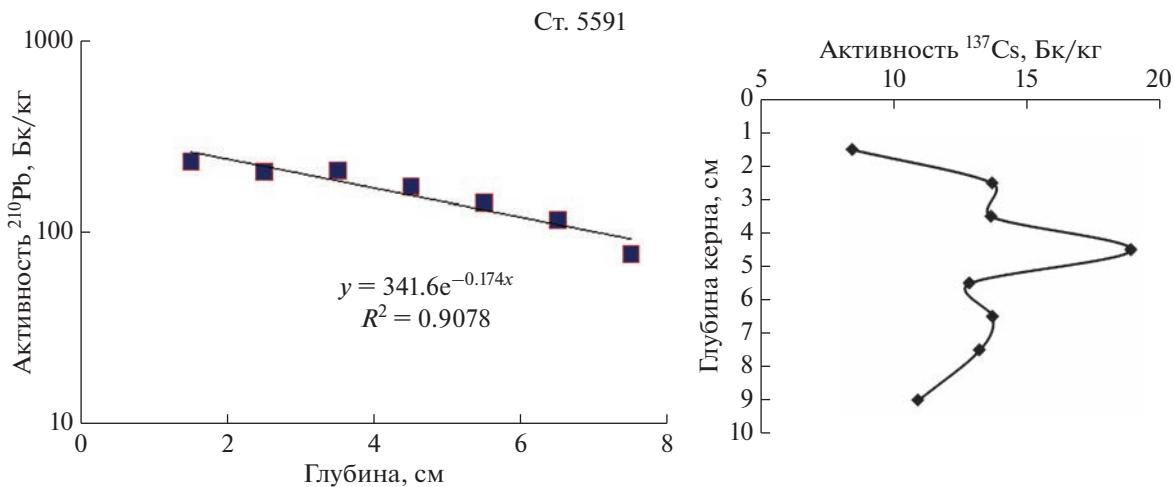


Рис. 2. Изменение удельных активностей избыточного ^{210}Pb и ^{137}Cs по глубине колонки 5591.

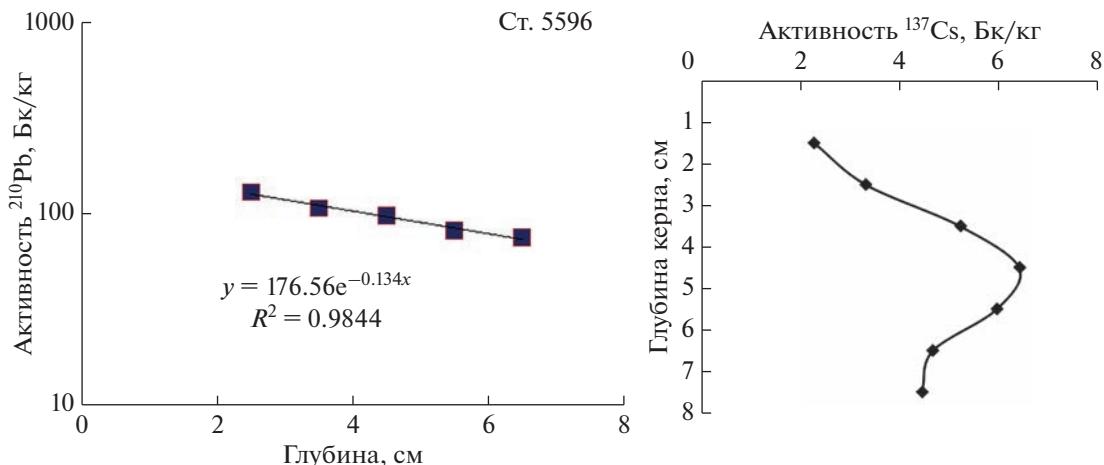


Рис. 3. Изменение удельных активностей избыточного ^{210}Pb и ^{137}Cs по глубине колонки 5596.

Диапазон содержания ^{137}Cs в осадках моря Лаптевых составляет от 1.61 до 7.43 $\text{Бк}/\text{кг}$, и лежит в пределах глобальных фоновых значений, характерных для морей Российской Арктики. Минимальные уровни удельной активности ^{137}Cs , не превышающие 2–2.5 $\text{Бк}/\text{кг}$, наблюдаются в осадках, отобранных в центральных частях моря вдали от дополнительных источников взвешенного материала.

Наибольшие содержания ^{137}Cs обнаружены в осадках, подвергшихся влиянию стока рек Хатанги и Лены (ст. 5591 и ст. 6489 соответственно), а также отобранных в проливе Вилькицкого (ст. 6533). Эстuarные части, а также дельты сибирских рек представляют собой зоны мощных геохимических барьеров, в которых активно происходят процессы перераспределения и накопления взвешенного вещества, включая техногенное загрязнение. Несмотря на то, что современное загрязнение

искусственными радионуклидами арктических морей носит в основном глобальный характер, вынос реками огромного количества вещества и его осаждение в районах маргинальных фильтров может играть значительную роль в накоплении ^{137}Cs осадками.

Удельные активности $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ в осадках моря Лаптевых лежат ниже величины предела обнаружения, составляющего 0.1 $\text{Бк}/\text{кг}$.

В данной работе были изучены режим седиментации и хронология поступления ^{137}Cs в современные осадки моря Лаптевых по результатам гамма-спектрометрического анализа двух колонок донных отложений.

На рис. 2 и 3 представлены вертикальные профили содержания избыточного ^{210}Pb и ^{137}Cs в колонках 5591 и 5596 соответственно. Удельная активность избыточного ^{210}Pb определялась как раз-

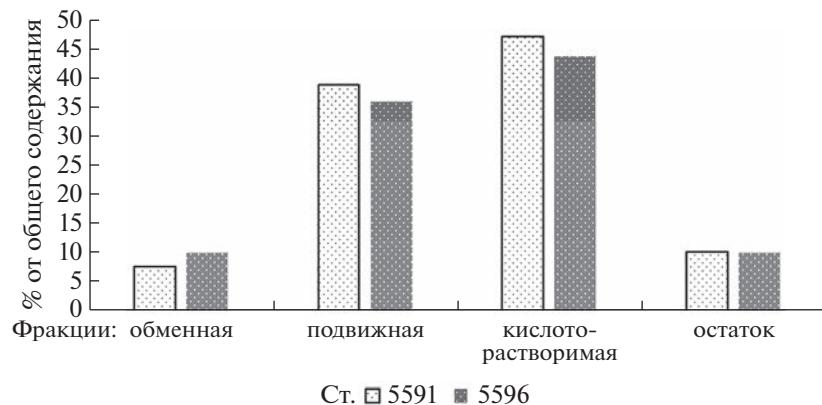


Рис. 4. Формы нахождения ^{239}Pu в образцах донных отложений моря Лаптевых, % от общего содержания в образце, оцененные по методу (Павлоцкая и др., 2003).

нность общей активности ^{210}Pb (по линии 46.5 кэВ) в пробе и активности ^{226}Ra (по линии 609.2 кэВ). Удельная активность ^{137}Cs (по линии 661.6 кэВ) была пересчитана на дату отбора проб (2017 г.).

Изотоп ^{210}Pb является продуктом радиоактивного распада ^{222}Rn ($T_{1/2} = 3.82$ сут) – члена радиоактивного семейства ^{238}U , поступающего в атмосферу с поверхности почв и горных пород. ^{210}Pb практически сразу захватывается аэрозольными и пылевыми частицами и в их составе выпадает на поверхность суши и водоемов, затем достигает донных осадков. Предполагается, что поток избыточного ^{210}Pb на земную поверхность постоянен во времени для данной широты (Сапожников и др., 2006). Значения активностей избыточного ^{210}Pb и ^{137}Cs используют в качестве индикатора различных природных процессов, в том числе скоростей формирования морских осадков.

По результатам изотопного анализа избыточного ^{210}Pb были рассчитаны скорости осадконакопления, составляющие 0.18 см/год для ст. 5591 и 0.23 см/год для ст. 5596.

Анализируя динамику поступления ^{137}Cs в морские осадки можно выделить некий максимум его содержания, лежащий для ст. 5591 на глубине 4–5 см и достигающий значения 18.9 Бк/кг в пересчете на 2017 г. Для ст. 5596 характерен немного более размазанный и глубинный максимум, лежащий на глубинах 4–6 см в диапазоне концентраций 5.9–6.4 Бк/кг. Небольшая разница скоростей седиментации в данных колонках способна объяснить это смещение в глубину. Используя полученные данные по абсолютным скоростям седиментации, можно оценить примерный возраст интересующих горизонтов. Таким образом, динамика содержания ^{137}Cs характеризуется периодом его максимального поступления в осадки моря Лаптевых, соответствующим 1992 г. для колонки 5591 и периодом 1993–97 гг. для колонки 5596. Низкие активности техноген-

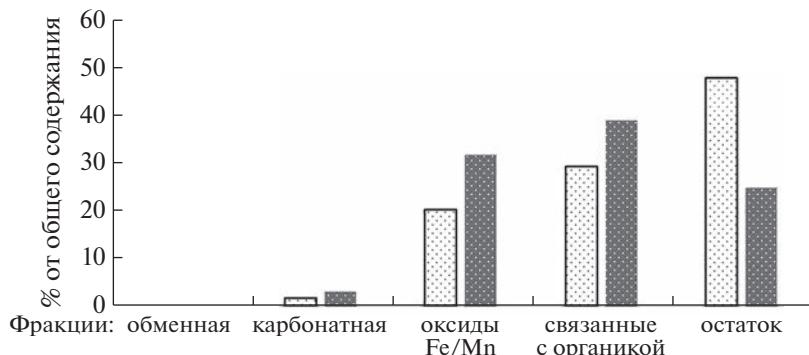
ных радионуклидов в осадках моря Лаптевых в целом позволяют сделать предположение о глобальном характере радиоактивного загрязнения региона и отсутствии влияния локальных источников. Вероятно, формирование глубинных максимумов содержания в изученных колонках можно объяснить последствием трансграничного переноса радионуклидов от западно-европейских предприятий ядерного топливного цикла наряду с топливо перерабатывающими комбинатами в верховьях рек Оби и Енисея.

Формы нахождения ^{239}Pu в донных отложениях моря Лаптевых

На рис. 4 и 5 приведены результаты изучения предполагаемых форм нахождения ^{239}Pu , внесенного в образцы донных отложений моря Лаптевых (ст. 5591 и ст. 5596) в лабораторных условиях, поскольку содержания этого радионуклида не позволяет оценить его формы нахождения в натуральных условиях.

Результаты, приведенные на рис. 4, показали, что 8–10% ^{239}Pu в донных отложениях моря Лаптевых найдено в составе обменной формы (1 М $\text{CH}_3\text{COONH}_4$, pH 4.8), в которую, кроме легкорастворимых химических соединений, входят органические вещества разной степени растворимости, в том числе легкорастворимые низкомолекулярные фульвокислоты. С группой относительно подвижных соединений, извлекаемой 1 М HCl , включающей в свой состав аморфные и слабоокристаллизованные оксиды Fe/Mn , а также легкорастворимые органические соединения, связано 36.2 и 39.0% ^{239}Pu . Основная доля ^{239}Pu найдена в составе трудно растворимых соединений как органической, так и неорганической природы (вещества растворимые в 6 М HCl и остаток) 54.0 и 57.6% для ст. 5591 и 5595 соответственно.

Использование метода Tessier, который в последнее время часто применяется для изучения



Ст. □ 5591 ■ 5596

Рис. 5. Формы нахождения ^{239}Pu в образцах донных отложений моря Лаптевых, % от общего содержания в образце, оцененные по методу (Tessier et al., 1979).

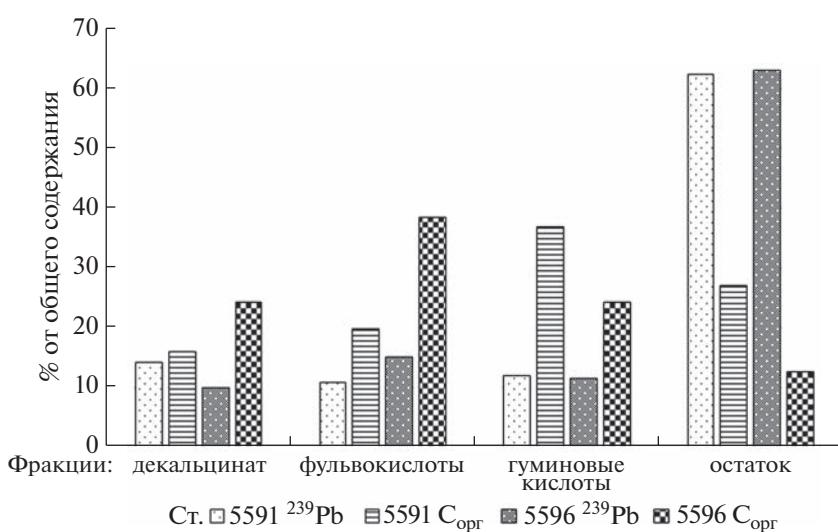


Рис. 6. Распределение ^{239}Pu и C_{org} по группам органического вещества в образцах донных отложений моря Лаптевых, % от общего содержания в образце.

форм нахождения радионуклидов и химических элементов в почвах либо донных отложениях различных природных сред, дает возможность оценить связи изучаемых элементов как с неорганическими, так и органическими компонентами природных образцов (рис. 5). В составе обменной фракции образцов донных отложений на станциях 5591 и 5595, извлекаемой 0.4 М MgCl_2 , ^{239}Pu не обнаружен, с карбонатами связано не более 3% ^{239}Pu . С оксидами Fe/Mn связано 20.4 и 32.1% ^{239}Pu . Найдена достаточно высокая доля ^{239}Pu в составе органического вещества донных отложений (29.6 и 39.4% для станций 5591 и 5596 соответственно).

При сравнении результатов, полученных описанными выше методами, можно отметить некоторые расхождения в интерпретации связей ^{239}Pu с различными формами в образцах донных отложений, что связано с применением различных ре-

активов для их последовательного выделения. В первом оценивается подвижность ^{239}Pu , связанного как с неорганическими, так и органическими компонентами донных осадков, в то время как по методу Tessier органическая компонента выделена в виде отдельной фазы. Поэтому сумма активности ^{239}Pu в обменной и подвижной формах (рис. 4), составляющие 46.6 и 46.2% для образцов 5591 и 5596 выше, чем в карбонатной и формах связанных с оксидами Fe/Mn при применении методики Tessier (рис. 5), которые составляют в сумме 22.2 и 35.2%. Поскольку доля ^{239}Pu в составе органического вещества донных отложений оказалась значительной (рис. 5), то появилась возможность оценить количественные связи ^{239}Pu с различными группами органических веществ.

Результаты, представленные на рис. 6 (метод Д.С. Орлова), описывают распределение ^{239}Pu в составе различных групп органических веществ.

Содержание $C_{\text{опр}}$ в образцах ст. 5591 и 5596 составляет 11.1 и 7.8 мг/г соответственно.

В декальцинате, куда переходят преимущественно подвижные фульво- и низкомолекулярные органические кислоты, свободные и связанные с подвижными Fe/Mn соединениями, а также легкорастворимые минеральные соединения, найдено 14.3% (станция 5591) и 10.1% (станция 5596) ^{239}Pu , а также 16.0 и 24.4% $C_{\text{опр}}$. С группами Гк и Фк в сумме связано 23.1 и 26.8% ^{239}Pu . При этом основное содержание $C_{\text{опр}}$ найдено в составе Гк. После экстракции органических веществ до 63% ^{239}Pu остается в остатке, куда входят труднорастворимые органические вещества (гумины) и минеральные соединения разной степени растворимости. Доли ^{239}Pu , найденные в составе органических веществ (легкорастворимых органических кислот, Фк и Гк) по методу Tessier и Д.С. Орлова, достаточно хорошо сопоставимы. Так, с органическим веществом связано 29.6 и 39.4% ^{239}Pu (метод Tessier), 36.9 и 37.4% ^{239}Pu (метод Д.С. Орлова) для станций 5591 и 5596 соответственно.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенный в данной работе анализ радиоэкологического состояния моря Лаптевых показал, что удельная активность ^{137}Cs в пробах воды изменяется в пределах 0.3–0.8 Бк/м³, в донных осадках диапазон содержаний составляет 1.61 до 7.43 Бк/кг, что в целом не превышает средних фоновых значений для арктического региона. Максимальные уровни активности ^{137}Cs наблюдаются в районах, находящихся под влиянием дополнительных источников взвешенного материала, в частности, речного выноса. Во всех проанализированных пробах воды и донных отложений удельное содержание изотопов $^{239,240}\text{Pu}$ находится ниже уровня минимально детектируемой активности.

Скорости седimentации в двух отобранных колонках современных осадков, рассчитанные по методу избыточного ^{210}Pb , составляют 0.18 и 0.23 см/год. Вертикальные профили распределения ^{137}Cs в колонках демонстрируют глубинные максимумы содержания, лежащие в пределах 4–6 см, по возрасту соответствующие 90-м годам прошлого века.

Оценочные результаты, полученные при изучении форм нахождения ^{239}Pu в лабораторных условиях, показали, что в морских донных отложениях моря Лаптевых 8–10% плутония находится в составе обменной, относительно подвижной формы, на долю Фк и группы низкомолекулярных органических кислот приходится около 25% ^{239}Pu , с группой Гк связано 12% ^{239}Pu . Наличие плутония в составе низкомолекулярных кислот и Фк дает основание предполагать динамическую

миграционную активность этого радионуклида в системе морская вода–донные отложения. В целом эксперимент с оценкой форм нахождения ^{239}Pu в осадках носит модельный характер и не позволяет сделать четкого заключения о нативных формах плутония в донных отложениях моря Лаптевых.

Море Лаптевых является возможным плацдармом эффективного освоения нефтегазовых ресурсов Арктического шельфа России. В настоящее время обсуждается возможность полноценного изучения нефтегазового потенциала моря Лаптевых, что связано с высокими предпосылками его нефтегазоносности. Результаты, представленные в этой статье, по содержанию радионуклидов в морской воде, распределению их по глубине донных отложений, изучению связей ^{239}Pu с органическими и неорганическими компонентами донных отложений, могут быть использованы для оценки экологической ситуации в море Лаптевых, одном из малоизученных морей региона Российской Арктики.

Работа выполнена по госзаданию ГЕОХИ РАН 0137-2019-001.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Алексахин Р.М. (1992) *Сельскохозяйственная радиоэкология*. М.: Экология, 400 с.
- Аринушкина Е.В. (1970) Руководство по химическому анализу почв. Изд. Московского университета. 486 с.
- Астахов А.С., Семилетов И.П., Саттарова В.В., Shi Xuefa, Hu Limin, Аксентов К.И., Василенко Ю.П., Иванов М.В. (2018) Редкоземельные элементы донных осадков Восточно-Арктических морей России как индикаторы терригенного сноса. *ДАН*. **482**(4), 451–455.
- Ветров А.А., Романкевич Е.А., Беляев Н.А. (2008) Хлорофилл, первичная продукция, потоки и баланс органического углерода в море Лаптевых. *Геохимия*. **1**(10), 1122–1130.
- Vetrov A.A., Romankevich E.A., Belyaev N.A. (2008) Chlorophyll, primary production, fluxes, and balance of organic carbon in the Laptev sea. *Geochim. Int.* **46**(10), 1055–1063.
- Горяченкова Т.А., Казинская И.Е., Кларк С.В., Новиков А.П., Мясоедов Б.Ф. (2005) Методы изучения форм нахождения плутония в объектах окружающей среды. *Радиохимия*. **47**(6), 550–555.
- Горяченкова Т.А., Емельянов В.В., Казинская И.Е., Барсукова К.В., Степанец О.В., Мясоедов Б.Ф. (2000). Содержание плутония в воде и донных отложениях Карского моря. *Радиохимия*. **42**(3), 264–268.
- Горяченкова Т.А., Борисов А.П., Соловьева Г.Ю., Лавринович Е.А., Казинская И.Е., Лигаев А.Н., Травкина А.В., Новиков А.П. (2019) Содержание техногенных радионуклидов в воде, донных отложениях и бентосе Карского моря и мелководных заливов архипелага новая Земля. *Геохимия*. **64**(12), 1261–1268.
- Goryachenkova T.A., Borisov A.P., Solov'eva G.Y., Lavrinovich E.A., Kazinskaya I.E., Ligaev A.N., Travkina A.V.,

- Novikov A.P. (2019) Content of technogenic radionuclides in water, bottom sediments, and benthos of the Kara sea and shallow bays of the Novaya Zemlya archipelago. *Geo-chem. Int.* **57**(12), 1320-1326.
- Дружкова Е.И., Макаревич П.Р. (2013) Исследование фитопланктона моря Лаптевых: история и современность. *Труды Кольского научного центра РАН*.
- Купцов В.М., Лисицын А.П., Шевченко В.П., Буренков В.И. (1999) Потоки взвешенного вещества в донные отложения моря Лаптевых. *Океанология*. **39**(4), 597-604.
- Матишов Г.Г., Касаткина Н.Г., Усягина И.С. (2019) Техногенная радиоактивность вод центрального полярного бассейна и смежных акваторий Арктики. *ДАН*. **485**(1), 93-98.
- Орлов Д.С. (1992) *Химия почв*. М.: МГУ, 399 с.
- Павлоцкая Ф.И., Горяченкова Т.А., Федорова З.М., Емельянов В.В., Мясоедов Б.Ф. (1984) Методы определения плутония в почвах. *Радиохимия*. **26**(4), 460-468.
- Павлоцкая Ф.И., Горяченкова Т.А., Казинская И.Е., Новиков А.П., Кузнецов Ю.В., Легин В.К., Струков В.Н., Шишкунова Л.В., Мясоедов Б.Ф. (2003) Формы нахождения и миграционное поведение Ru и Am в пойменных почвах и донных отложениях реки. *Енисей. Радиохимия*. **45**(5), 471-478.
- Санжарова Н.И. Сысоева А.А., Исамов Н.Н. (2005) Роль химии в реабилитации сельхозугодий, подвергшихся радиоактивному загрязнению. *Российский химический журнал*. **3**, 26-34.
- Сапожников Ю.А., Алиев Р.А., Калмыков С.Н. (2006) *Радиоактивность окружающей среды*. М.: БИНОМ, 286 с.
- Joshi S. (1985) Lanthanum fторide coprecipitation technique for the preparation of actinides for alpha-particle spectrometry. *J. Radioanal. Nuclear. Chem.* **90**, 409-414.
- Tessier A., Campbell P., Bisson M. (1979) Sequential extraction procedure for the speciation of the particulate trace metals. *Anal. Chem.* **51**, 844-851.
- Travkina A.V., Goryachenkova T.A., Borisov A.P., Solovieva G.Yu., Ligaev A.N., Novikov A.P. (2017) Monitoring of environmental contamination of Kara Sea and shallow bays of Novaya Zemlya. *J. Radioanal. Nuclear Chem.* **311**, 1673-1680.