

**Анализ трансурановых элементов и
продуктов деления в морских и пресных
водоемах
(на примере Дальневосточного региона)**

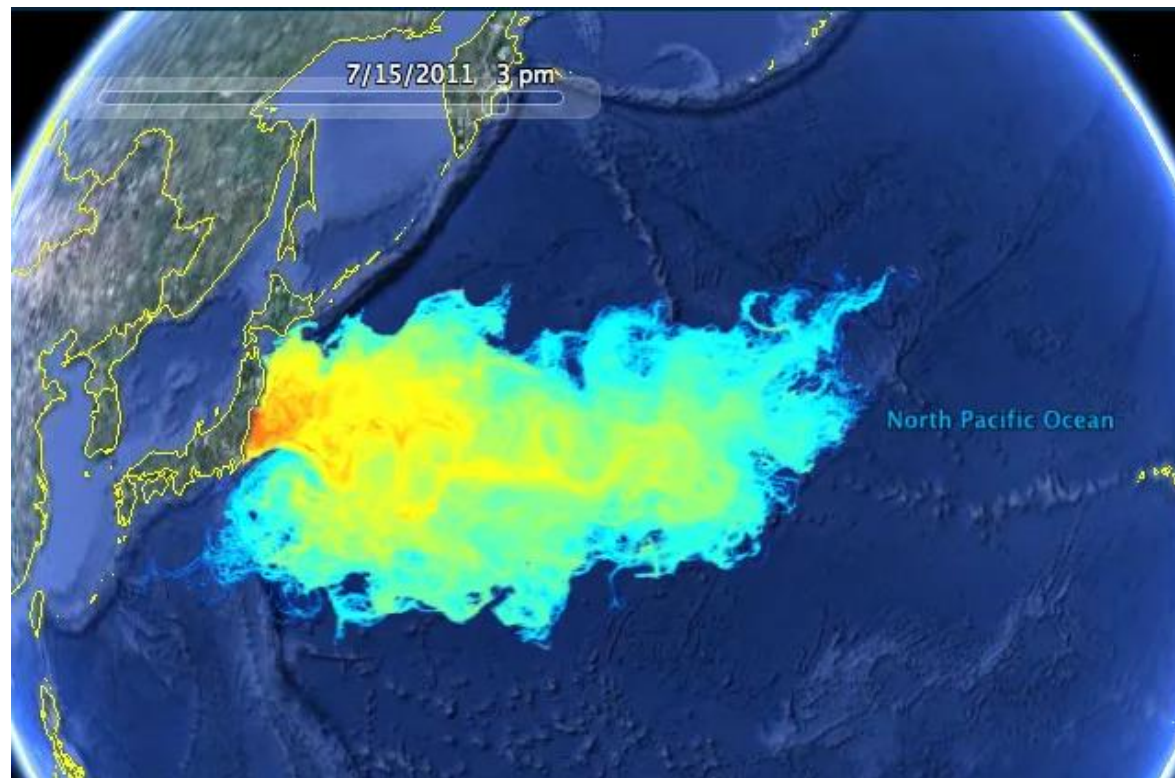
к.г.н., с.н.с. Кузьменкова Наталья Викторовна

kuzmenkovanv@ty.msu.ru

13 апреля 2021 правительство Японии приняло решение сбросить более миллиона тонн жидких радиоактивных отходов в Мировой океан

Накопленные жидкие радиоактивные отходы в основном содержат ^3H , ^{14}C , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{125}Sb , ^{90}Sr , ^{129}I , ^{99}Tc , ^{106}Ru и ^{238}Pu

Разработка экспрессных, селективных и эффективных методик выделения радионуклидов из объектов окружающей среды и подготовка счетных образцов для масс-спектрометрических измерений является актуальной проблемой современной радиэкологии



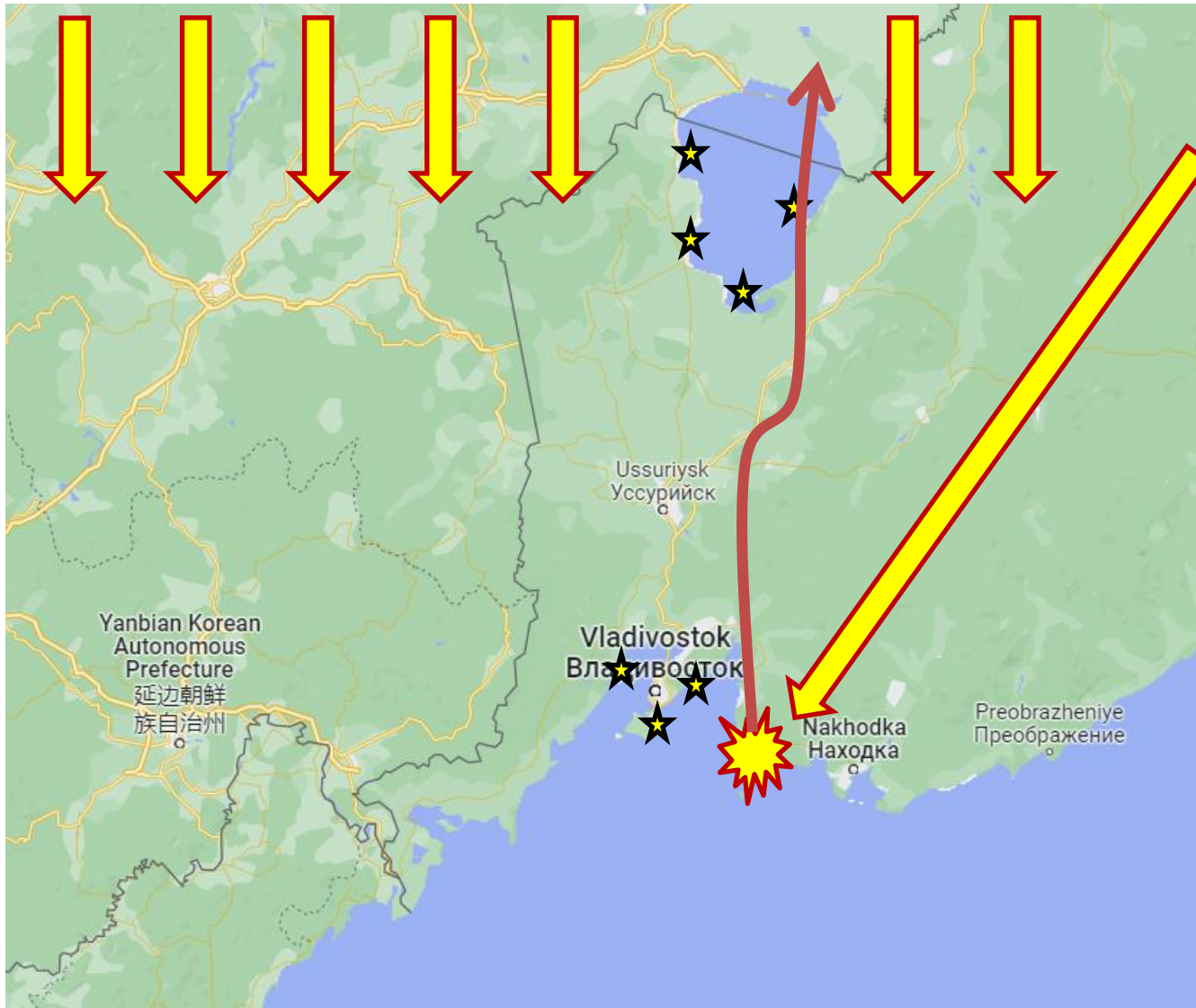


- Среди актинидов особую важность имеют **Np, Pu и Am**.
- Пример: в одной тонне отработанного уранового топлива теплового реактора после 10 лет выдержки содержится порядка 8,7 кг Pu, 0,45 кг Np, 0,58 кг Am.
- Среди продуктов деления важное значение имеют **Tc и I**, так как являются одними из основных продуктов деления отработавшего ядерного топлива после ^{137}Cs и ^{90}Sr .

Существующие методики не позволяют выделить и трансурановые элементы (Np, Pu, Am) и продукты деления (Tc, I) из одного образца с высокими выходами



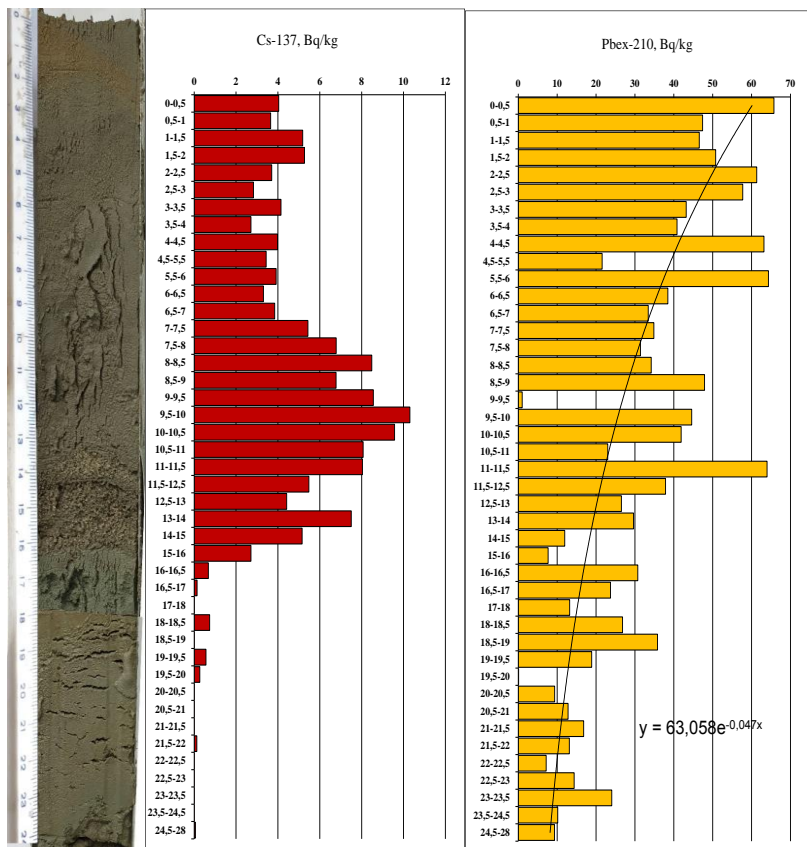
В июле и августе 2021-2023
проведен отбор проб почвы,
воды, взвеси и донных осадков
залива Петра Великого и озера
Ханка



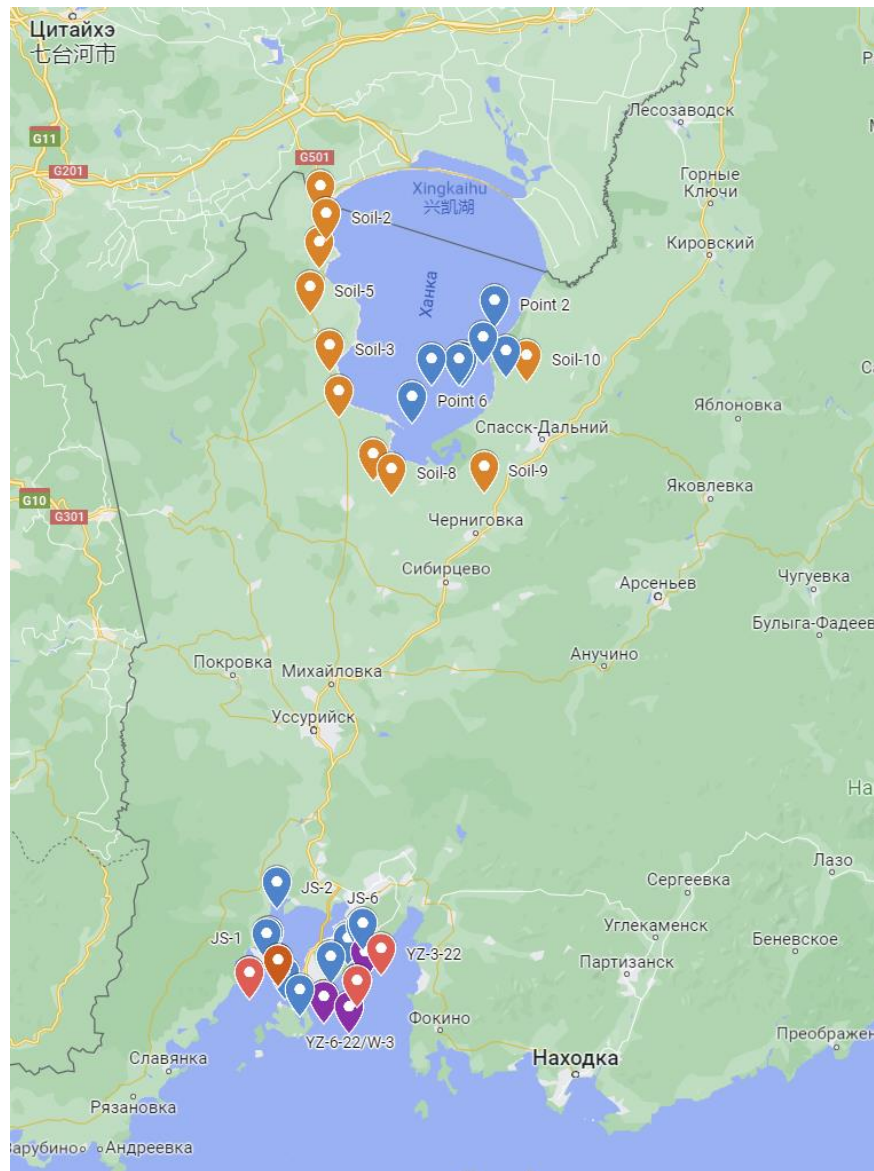
- 1) Авария в бухте Чажма
10 августа 1985
24 часа после инцидента:
в воздух было выброшено
(%): ^{60}Co ~90, ^{131}I ~1, ^{133}I ~4, ^{135}I ~3, ^{137}Cs и ^{90}Sr <0.02. На расстоянии 200–400 км от места аварии, активность поверхности не превышала 1 Бк/м², из загрязнителей достоверно определен был только ^{60}Co .
- 2) Глобальные выпадения
- 3) Авария На АЭС Фукусима

Авария в бухте Чажма держалась в секрете до 1993 года.

Озеро Ханка и залив Петра Великого



Распределение химических элементов указывает на равномерное поступление наносов в последние 150 лет.
 Скорость осадконакопления в озере – 1,6 мм/год. Для Амурского залива – 4,1 мм/год.



Исследование распределения вода-взвешенное вещество-донный осадок



Кол-во прокаченной воды, л	Первый фильтр (1-5 мкм) (шт.)	Второй фильтр (1-5 мкм) (шт.)
6500	5	1
5000	4	1
5300	2	1

Чем ближе к открытому морю располагалась точка, тем меньше количество взвеси осаждалось на фильтрах.



Полипропилен
переменной
пористости

Методика концентрирования из больших объемов воды



Отфильтрованные пробы воды подкисляют до pH 3-4

+ метки химического выхода

^{243}Am 0.10 мл/50Л (135.51 ppt)

^{242}Pu 0.10 мл/50Л (50.46 ppt)

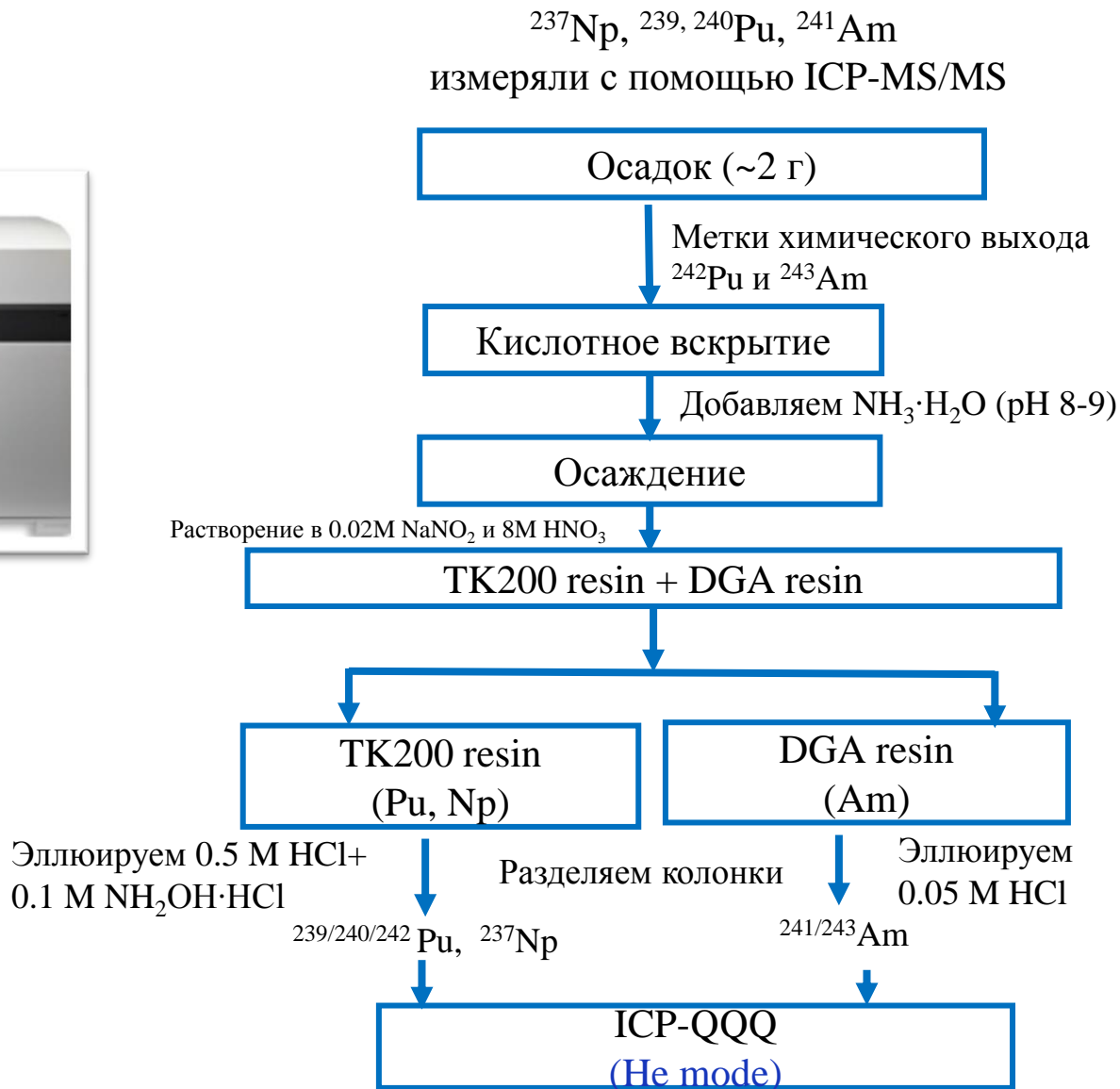
NH_4ReO_4
0,077 мг/50 Л

- Растворяем осадок в $(\text{Fe}(\text{OH})_2)$ с HCl
 - Добавляем H_2O_2
 - Осаждаем NH_3
- Отделяем осадок $(\text{Fe}(\text{OH})_3)$ с раствором, содержащим Tc
- Растворяем осадок в HNO_3 - упариваем

- Добавляем
20 г $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (0.08 г/Л Fe^{3+})
25 г $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_5$
 NH_3 до pH 9
- Оставляем на ночь



Методика выделения и измерения актинидов из донного осадка





ICP-MS
 ^{127}I

Вода (100-900 мл)

+ ^{127}I носитель, переводим йод в I^- с помощью NaHSO_3 (pH 1-2), добавляем CHCl_3 для экстракции + NaNO_2 (перевод I^- в I_2)

Органическая фаза (I_2)

добавление NaHSO_3 для перевода обратно в йодид. Повторяем экстракцию и реэкстракцию

Реэкстракция,
 I^-

добавление AgNO_3 , центрифугирование

AgI мишень

$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$

AMS ^{129}I





Вода Уссурийского залива

Номер точки	^{237}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

Актиниды во взвешенном веществе размером 1-5 мкм

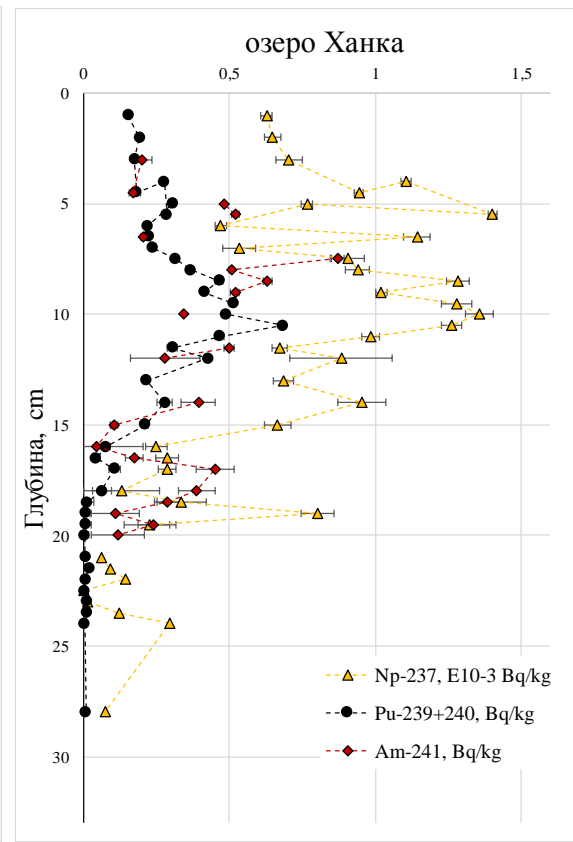
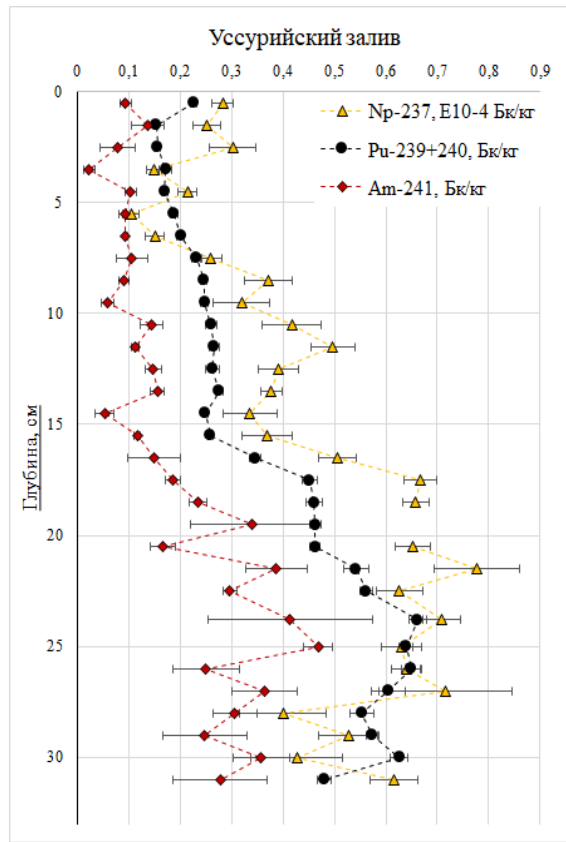
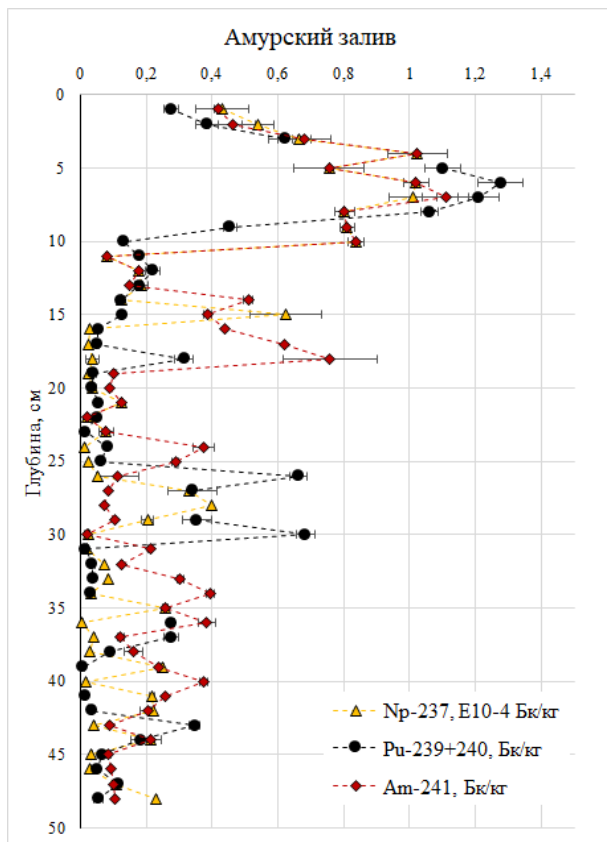
Точка	^{237}Np , $\times 10^{-3}$ мБк/м ³	^{239}Pu , мБк/м ³	^{240}Pu , мБк/м ³
6500	30,4 \pm 1,08	0,14 \pm 0,02	0,07 \pm 0,002
5000	21,0 \pm 0,82	0,11 \pm 0,03	0,07 \pm 0,002
5300	11,4 \pm 0,44	0,07 \pm 0,01	0,03 \pm 0,002

При выходе в открытое море количество взвешенного вещества и количество актинидов в нем уменьшается.

Это может указывать на так называемый «эффект разбавления» при условии большего перемешивания водных масс

№ и Pu, мигрирующие со взвешенным веществом 1-5 мкм составляют 0,1% и 0,04%

Содержание актинидов в кернах донных осадков



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. Удельные активности актинидов в озере Ханка в 1,5 раза ниже, чем в Японском море.

Профили вертикального распределения плутония, нептуния и америция в целом повторяются для всех кернов. Это указывает на один источник их поступления в донные осадки.

Коэффициенты перехода (л/кг) для взвешенного вещества (1-5 мкм) и донных осадков (среднее значение).

	^{237}Np	$^{239, 240}\text{Pu}$
Взвешенное вещество	0,11-0,30	0,02-0,07
Донные осадки	1262-1352	36842-46875

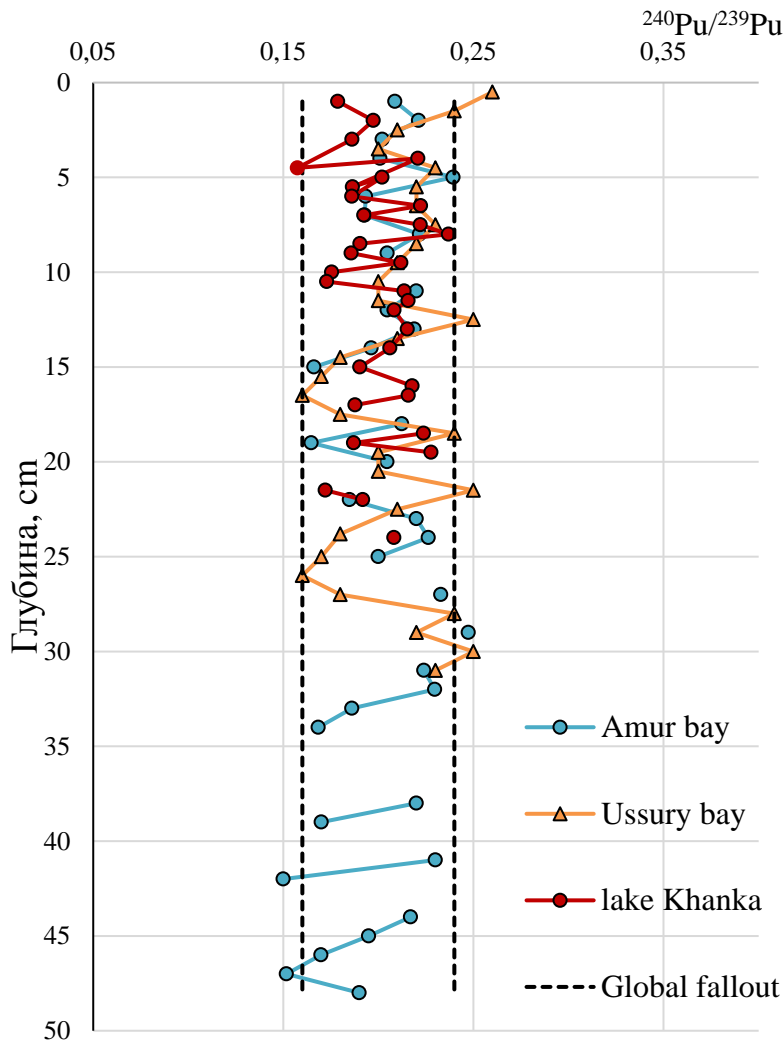
$$K_d \text{ (л/кг)} = C_s / C_e,$$

C_s - концентрация актинида, адсорбированного на твердой фазе (Бк/кг)

C_e - концентрация актинида в водной фазе (Бк/л)

Хотя плутоний и нептуний имеют одинаковое происхождение, нептуний мигрирует с гораздо большей скоростью, чем плутоний

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



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.

Авария в бухте Чажма не оказала значительного влияния на содержание актинидов в воде Уссурийского залива.



№	Тип	^{127}I , (мкг/л)		^{129}I , 10^7 атомов/л		$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$, 10^{-10}	
		Value	Unc.	Value	Unc.	Value	Unc.
1	Море	43.5	1.23	1.87	0.06	0.91	0.02
2		45.1	1.26	2.32	0.08	1.08	0.02
3		42.7	1.20	2.33	0.09	1.15	0.03
4	Озеро	5.41	0.16	29.0	0.88	113	1
5		7.38	0.22	35.6	1.09	102	1
6		8.35	0.24	39.9	1.16	101	1
7		8.51	0.24	35.3	1.04	87.5	0.6

^{129}I поступал в море из реки, осаждался и быстро разбавлялся в морской воде, что приводило к снижению концентрации ^{129}I . На порядки более высокая концентрация стабильного ^{127}I в морской воде по сравнению с пресной увеличила разницу в атомных соотношениях $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$.



Проанализировано содержание ^{237}Np , $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в морской воде, взвешенном веществе и ядрах донных осадков озера Ханка, а также Уссурийского и Амурского заливов, отобранные в июле 2021 и августе 2022 года.

Впервые определены удельные активности ^{237}Np , $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в воде залива Петра Великого, которые составили $19-105 \times 10^{-3}$ мБк/м³; $2,0-5,3$ мБк/м³ и $24,1-33,5$ мБк/м³ соответственно.

Установлены фоновые уровни содержания актинидов и продуктов деления в донных осадках Дальневосточного региона.

Удельные активности, а также соотношение изотопов $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ ($\approx 0,18$) в донных осадках определено указывают, что основным источником поступления плутония являются глобальные выпадения. Определены скорости осадконакопления для Амурского залива (в эстуарии р. Раздольная) – $0,9$ мм/год; для Уссурийского залива – $4,1$ мм/год.

Установлены коэффициенты перехода актинидов для залива Петра Великого: «растворенные формы, включая коллоиды – взвешенное вещество – донный осадок». Коэффициенты распределения (взвешенное вещество-вода) составили $0,11-0,3$; $0,02-0,07$ для ^{237}Np , $^{239,240}\text{Pu}$ соответственно.

Основная масса актинидов содержится в донных осадках ($>99\%$). Америций обнаружен только в воде (в растворенной форме) и донных осадках. Технеций не обнаружен ни в одной из проанализированных проб.