

ФОРМЫ НАХОЖДЕНИЯ ПЛУТОНИЯ И НЕКОТОРЫХ ХИМИЧЕСКИХ ЭЛЕМЕНТОВ В ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЯХ МОРЯ ЛАПТЕВЫХ И КАРСКОГО МОРЯ

© 2023 г. Т. А. Горяченкова^а, И. Е. Казинская^а, А. В. Травкина^{а,*},
Д. П. Стародымова^б, А. П. Новиков^а

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

^б *Институт океанологии им. П.П. Ширшова РАН,
117997, Москва, Нахимовский пр., д. 36*

**e-mail: a_travkina@mail.ru*

Поступила в редакцию 20.03.2023, после доработки 18.04.2023, принята к публикации 22.04.2023

Приведено сравнение форм нахождения ^{239}Pu и химических элементов, включая редкоземельные элементы (РЗЭ), в донных отложениях Карского моря и моря Лаптевых. Формы нахождения исследованы тремя различными методами селективного выщелачивания. Получены данные по содержанию химических элементов и ^{239}Pu в составе комплексов, обладающих разной лабильностью: легкорастворимых, связанных с органическим веществом, в том числе с группами гуминовых кислот (ГК) и фульвокислот (ФК), а также с аморфными оксидами Fe и Mn. Показано, что гумусовые и низкомолекулярные органические кислоты и их соединения с химическими элементами могут влиять на поведение плутония в системе морская вода–донные отложения в акваториях арктических морей. Оценена возможность использования ряда РЗЭ как маркера для прогнозирования миграционного поведения плутония.

Ключевые слова: морские донные отложения, ^{239}Pu , химические элементы, формы нахождения.

DOI: 10.31857/S0033831123050106, **EDN:** XTLTTE

ВВЕДЕНИЕ

Поступление техногенных долгоживущих радионуклидов (в частности, изотопов плутония) в акватории морей арктического региона происходит главным образом водным путем – со стоками рек, протекающих по загрязненным территориям, с морскими течениями и грунтовыми водами, находящимися в контакте с загрязненными почвами. В сравнении с этим роль воздушного переноса с аэрозолями и эоловой взвесью относительно невелика. Радиоактивное загрязнение арктических вод представляет особый интерес ввиду активного использования этих территорий для испытаний ядерного оружия (ЯО) в прошлом, деятельности предприятий ядерного топливного цикла, включая утили-

зацию радиоактивных отходов, а также активного водообмена шельфовых морей Арктики с другими водными массами.

В сумме на полигоне Новая Земля было произведено 87 взрывов в атмосфере, 3 – под водой и 42 взрыва под землей. После прекращения испытаний ядерного оружия интенсивность поступления радионуклидов на поверхность земли снизилась, а основным источником поступлений стали стратосферные запасы, накопленные в период 1954–1963 гг. Атмосферные испытания ЯО оказывали влияние на глобальные выпадения техногенных радионуклидов, но вызвали меньшее локальное загрязнение, нежели наземные или подводные ядерные взрывы, так как воздушные взрывы осуществлялись на достаточно большой высоте (3–4 км). В результате

подводных ядерных взрывов в губе Черная локальное заражение местности оказалось очень высоким. По данным Смита с соавторами, концентрации радионуклидов в донных осадках Карского моря в губе Черная составляли (Бк/кг): $^{239,240}\text{Pu}$ 15000, ^{137}Cs 250, ^{60}Co 100, а общий запас $^{239,240}\text{Pu}$ в донных осадках составил 11 ТБк [1].

Ввиду особенностей строения морского дна в районе проведения подводных испытаний (вдоль архипелага Новая Земля протягивается желоб) вынос радионуклидов за пределы загрязненной зоны относительно ограничен. Напротив, продукты воздушных взрывов выносятся в стратосферу и переносятся на большие расстояния, являясь причиной глобального радиоактивного загрязнения во всем Северном полушарии. Поскольку стратосферные накопления перераспределяются в течение длительного времени, их радионуклидный состав определяется в основном долгоживущими радиоактивными изотопами, в частности изотопами $^{238-241}\text{Pu}$.

Потенциальную опасность представляют захороненные в период с конца 1950-х гг. до 1992 г. в Карском и Баренцевом морях жидкие (суммарной активностью 0.75 ПБк) и твердые (суммарной активностью 83.6 ПБк) радиоактивные отходы. В Карском море захоронено семнадцать ядерных реакторов – семь из них содержат отработавшее ядерное топливо (ОЯТ), включая экранную сборку атомного ледокола «Ленин» с частично выгруженным топливом.

Экологическая оценка состояния среды моря Лаптевых проведена не в полной мере, практически отсутствуют данные по содержанию и формам нахождения техногенных радионуклидов в воде и донных отложениях этого моря. Море Лаптевых отличается обширным шельфом и обильным стоком речных вод, в первую очередь рек Лена (до $700 \text{ км}^3/\text{год}$) и Хатанга. В зимний период в воде моря Лаптевых отмечается минимальное значение биомассы (до $0.8 \text{ мкг } C_{\text{орг}}/\text{л}$), осенью биомасса микропланктона достигает $5.7 \text{ мкг } C_{\text{орг}}/\text{л}$ в прибрежной зоне дельты р. Лена [2].

На поведение радионуклидов в арктической морской воде влияют низкие температуры, преимущественно окислительный режим в водах и поверхностных осадках, специфическая биопродуктивность, ледовый покров. Если у радионуклидов

^{137}Cs и ^{90}Sr в воде и донных осадках имеются изотопные носители, то плутоний их не имеет. Учитывая сложность аналитического определения содержания плутония в природных объектах [3], поиск элементов-аналогов со сходными механизмами миграции необходим для более успешного моделирования процессов перераспределения плутония между компонентами морской экосистемы.

Для прогнозирования поведения техногенных радионуклидов в окружающей среде, установления степени их подвижности и биодоступности данных по их суммарным (общим) содержаниям чаще всего недостаточно, требуется информация об их физико-химических формах [4]. Понятие физико-химической формы включает:

связывание с частицами разного размера;

распределение по различным геохимическим фракциям – обменной, окисляемой, восстанавливаемой, сульфидной, связанной с органическим веществом.

распределение по катионной, анионной или нейтральной формам;

химическую форму радионуклида (в состав какого соединения он входит, ближайшее лигандное окружение, степень окисления и т. д.).

Полученные нами значения содержания химических элементов, включая редкоземельные элементы, для донных отложений моря Лаптевых и заливов Карского моря сопоставимы с литературными данными, описанными ранее для изучаемых районов [5]. Содержание РЗЭ в целом характеризует литогенный вклад в образование осадка.

Целью данной работы является изучение и сопоставление форм нахождения ^{239}Pu и других химических элементов в донных отложениях моря Лаптевых и Карского моря, сравнение их миграционного поведения, которое характеризует подвижность этих элементов в природной среде.

ОБЪЕКТЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Методы определения физико-химических форм радионуклидов можно разделить на косвенные и прямые (спектральные). Косвенные методы включают предварительное выделение (экстракционное, сорбционное, фильтрационное и т. п.) тех или иных форм или фракций с дальнейшим определением в

них радионуклидов и химических элементов доступными методами. Прямые методы позволяют получить информацию о формах радионуклидов без химического воздействия на пробу. Они обладают существенно большей информативностью по сравнению с косвенными, однако в целом их чувствительность значительно ниже, что связано с низким содержанием радионуклидов и некоторых химических элементов в объектах окружающей среды.

Косвенные (или химические) методы широко используются для определения физико-химических форм радионуклидов и химических элементов в окружающей среде, поскольку обладают высокой чувствительностью. Однако результаты косвенных определений носят оценочный характер, так как воздействие на пробу в процессе выделения может привести к изменению равновесного распределения форм. Несмотря на условность косвенных методов, они широко применяются в геохимии, почвоведении, радиохимии, а полученные результаты позволяют судить о поведении и геохимической подвижности химических элементов в природной среде [3, 6, 7].

Для определения форм нахождения методами фракционирования в данной работе применяли схемы селективного последовательного выщелачивания химическими реагентами и фракционирования по группам органического вещества. Первый метод позволяет оценить геохимические формы подвижности радионуклидов и других химических элементов (водорастворимую, обменную, подвижную, кислоторастворимую и труднорастворимую), а также долю анализата, связанную с органическим веществом, карбонатами и оксидами. Второй метод позволяет оценить связи радионуклидов и химических элементов с различными группами органического вещества почв, донных отложений, взвешенного и коллоидного вещества природных вод.

Объектами исследования служили образцы донных отложений, отобранных в разное время в акватории моря Лаптевых и заливов Карского моря. Отбор донных отложений проводили с помощью боксера.

Формы нахождения ^{239}Pu в образцах донных отложений массой 15 г (станции 5591 и 5596) моря Лаптевых и донных отложений из мелководных заливов Цивольки и Седова архипелага Новая Земля

(Карское море), отобранных с горизонта 2–4 см, изучали после внесения в них раствора $^{239}\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ объемом 0.05 мл в лабораторных условиях при тщательном перемешивании образца. Активность ^{239}Pu , внесенного в образцы донных отложений, составляла 120 ± 50 Бк/г. Время нахождения изотопа плутония в образцах донных отложений до начала эксперимента составляло не менее 6 месяцев. Как показали предыдущие исследования, этой продолжительности выдержки фаз достаточно для установления квазиравновесия, когда формы нахождения остаются неизменными [8, 9]. Для изучения форм нахождения ^{239}Pu и химических элементов использовали несколько наиболее широко применяемых методов: 1) метод Tessier [10]; 2) метод, разработанный и применяемый в ГЕОХИ РАН [6, 7, 11]; 3) метод оценки связей ^{239}Pu и химических элементов с органическим веществом образцов [12].

Метод Tessier основан на последовательном выщелачивании Pu и химических элементов реагентами, извлекающих определенные группы соединений: 0.4 М MgCl_2 (обменная); 1 М CH_3COONa (pH 5.0) (карбонаты); 0.04 М $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$ в 25%-ной CH_3COOH (pH 2) (извлечение оксидов Fe и Mn); обработка пробы 30%-ной H_2O_2 для разрушения органики, затем 0.02 М HNO_3 (связь с органическим веществом); остаток (7.5 М HNO_3 , кипячение, HF).

В методе, применяемом в ГЕОХИ РАН, извлекают определенные группы соединений образца, различающихся по степени подвижности: обменную и легкорастворимую (1 М $\text{CH}_3\text{COONH}_4$, pH 4.8); подвижную (1 М HCl); труднорастворимую (6 М HCl).

Изучение возможных связей ^{239}Pu и химических элементов с отдельными группами органического вещества проводили путем фракционирования их из отдельных навесок образцов по методу Д.С. Орлова. Декальцирование образца проводили трехкратной обработкой 0.1 М HCl, органическое вещество извлекали 0.1 М NaOH, затем щелочной раствор подкисляли до pH 2, в осадок выпадала гуминовая кислота (ГК), в кислом растворе оставалась фульвокислота (ФК) и различные низкомолекулярные органические кислоты. В остатке находятся прочно связанные с минеральной частью донных отложений труднорастворимые органические вещества.

Удельную активность ^{239}Pu в вытяжках, полученных в ходе эксперимента по изучению форм его

Таблица 1. Характеристики станций отбора проб донных осадков

Станция	Координаты станций		Соленость, ‰
	широта	долгота	
5591	75°24.7'	115°26.6'	24
5596	74°15.0'	130°29.7'	21
Залив Цивольки	74°11.0'	59°09.6'	31
Залив Седова	74°38.5'	59°53.7'	33

нахождения, определяли из малых аликвот экстрактов (0.1 мл), внесенных в раствор 0.35 М HNO_3 с раствором LaF_3 (50–70 мкг). Полученный осадок отфильтровывали через ядерный фильтр производства г. Дубна (размер пор 0.1 мкм) с последующим измерением на альфа-спектрометре Alpha Analyst (Canberra).

Определение химических элементов проводили с использованием масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой на приборе Agilent 7500a.

В пробах фракций, полученных по указанным выше схемам, методом ICP-MS определяли содержание следующих элементов: Li, Be, Al, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, As, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Mo, Ag, Cd, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Hf, Ta, W, Tl, Pb, Bi, Th, U. Калибровку прибора осуществляли с помощью серии стандартных растворов purestandarts (68-элементный стандарт) с концентрациями от 0.1 до 10 мкг/л. Для контроля дрейфа прибора использовали внутренний стандарт (индий), равные аликвоты которого были добавлены в каждый образец непосредственно перед измерением. Одновременно с образцами измеряли холостые пробы, представляющие собой реагенты, применявшиеся для каждой из вытяжек. Результаты пересчитывали на сухую массу изначального донного осадка.

Для сопоставления распределения плутония и различных химических элементов по фракциям проводили корреляционный анализ.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Координаты станций отбора проб осадков, а также соленость морской воды в исследуемых районах представлены в табл. 1.

Суммарная активность $^{239,240}\text{Pu}$ в донных отложениях станций 5591 и 5596 моря Лаптевых лежит ниже величины предела обнаружения, составляющего 0.1 Бк/кг [13]. Активность $^{239,240}\text{Pu}$ в донных отложениях различных частей Карского моря, включая залив Цивольки, изменяется в широких пределах 0.2–3.8 Бк/кг [14]. Содержание $C_{\text{орг}}$ в образцах 5591 и 5596 моря Лаптевых составляет 11.1 и 7.8 мг/г соответственно, что существенно ниже, чем содержание $C_{\text{орг}}$ в почвах средней части России (34 и 68 мг/г для дерново-подзолистой почвы и чернозема) [15].

Содержание основных химических элементов, влияющих на формы нахождения плутония, в колонках 5591 и 5596 моря Лаптевых различается, что связано с местом отбора донных отложений. Так, содержание Fe, V, Cr, Co, Ni, Pb и ряда других элементов в донных отложениях станции 5591 выше, чем в образце станции 5596, удаленной от береговой линии моря Лаптевых [13]. По всей вероятности, имеет место вклад речных взвесей рек Лена и Хатанга в повышенное содержание химических элементов в донных отложениях станции 5591. В донных отложениях заливов Карского моря найдено более высокое по сравнению с морем Лаптевых содержание Mn, Fe, V, Co, Ni, Zn, Pb, Th, U (табл. 2).

На рис. 1 представлены результаты распределения ^{239}Pu и РЗЭ по формам их нахождения, полученных методом Tessier. Элементы выбраны в соответствии с результатами линейного корреляционного анализа.

Результаты, приведенные на рис. 1, показывают, что в наиболее подвижной обменной форме (вытяжка 0.4 М MgCl_2) изотоп ^{239}Pu и РЗЭ не обнаружены. В составе карбонатов в образцах донных отложений моря Лаптевых найдено 1.8–3.1% ^{239}Pu и менее 1% редкоземельных элементов. С оксидами Fe и Mn связана значительная часть ^{239}Pu и химических элементов (8–20 и 7–38% в образцах 5591 и 5596 соответственно). В составе органического вещества донных отложений найдено 30–35% ^{239}Pu и 32–45% РЗЭ. В нерастворимом остатке образца 5591 определено более высокое содержание ^{239}Pu и химических элементов, чем в образце 5596. Нахождение ^{239}Pu и химических элементов в составе относительно растворимых органических и неорганических соединений образца 5596 обусловлено спецификой вклада рек Лена и Хатанга в химический

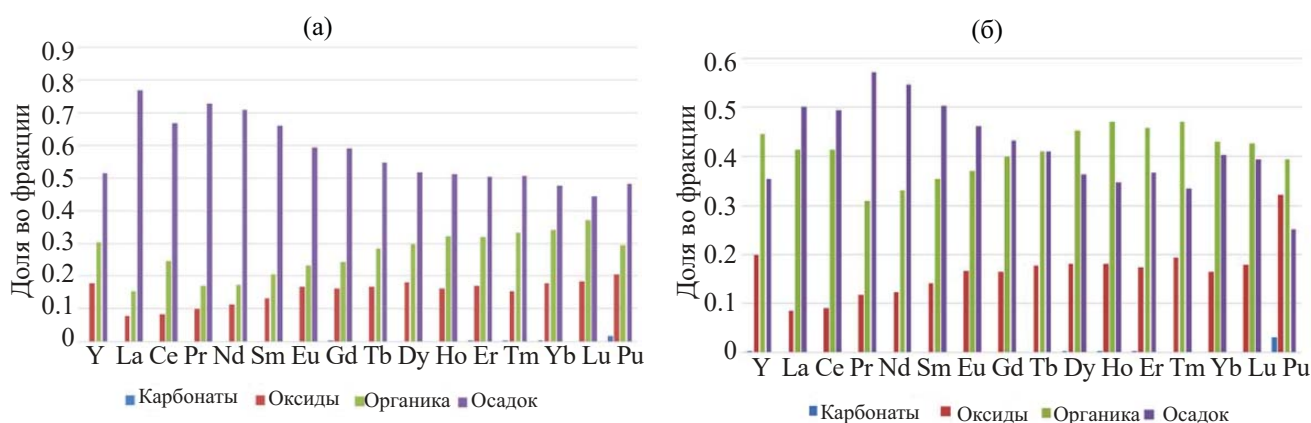


Рис. 1. Формы нахождения ^{239}Pu и РЗЭ в донных отложениях моря Лаптевых (а, б – образцы 5591 и 5596).

состав образца 5596, отобранного на более близком расстоянии от береговой линии моря Лаптевых по сравнению с образцом 5591. Распределение ^{239}Pu по фракциям органического и неорганического вещества, полученного по методу Tessier, наиболее близко к распределению РЗЭ (кроме скандия). Наибольшее совпадение поведения ^{239}Pu наблюдается с иттрием и тяжелыми представителями лантанидов от Tb до Lu. Это объясняется совпадением ионного радиуса иттрия и гольмия в состоянии окисления +3 (0.104 нм). Ионный радиус скандия (0.089 нм) намного меньше, чем у лантанидов. Однако схожее поведение плутония и РЗЭ не может быть объяснено совпадением ионных радиусов. Например, если ионный радиус Pu(III) соответствует ионному радиусу лютеция, то более устойчивый в растворах Pu(IV) имеет ионный радиус, более близкий к ионному радиусу скандия. Следует также отметить, что

корреляционная зависимость в поведении плутония и природных актинидов – урана и тория (коэффициенты корреляции R 0.84 и 0.80 соответственно) – выражена несколько слабее таковой для лютеция и тяжелых лантанидов, для которых величина R составляет более 0.99.

В целом внесенный в донные отложения плутоний оказывается немного более подвижным, чем РЗЭ, однако характер его распределения по фракциям соответствует распределению РЗЭ.

На рис. 2 приведено распределение ^{239}Pu и химических элементов по группам органического вещества донных отложений.

Основное количество ^{239}Pu (62%) и химических элементов (58–90%) найдено в составе негидролизованного остатка. С фракцией низкомолекулярных органических соединений и легкорастворимых неорганических веществ (декальцинат) связано 10–

Таблица 2. Содержание основных химических элементов и РЗЭ в донных отложениях моря Лаптевых и заливов Карского моря

Образец	Ca	Mn	Fe	Ti	V	Cr	Co	Ni	Cu	Zn	Pb	Th	U	Sr	Zr	
	%				мкг/г											
5591	2.4	0.03	4.5	0.5	150	112	29	44	48	105	18	31	7.2	321	223	
5596	2.2	0.04	3.0	0.4	103	71	17	23	73	68	8.0	27	4.1	491	477	
Залив Цивольки	2.0	0.4	5.2	0.7	166	131	35	77	63	133	38	44	11	250	114	
Залив Седова	2.1	0.5	5.4	0.4	159	101	36	53	43	94	121	32	8.4	197	147	
Образец	Sc	Y	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
	мкг/г															
5591	11	17	38	74	9.1	33	7.8	1.3	6.5	0.8	4.5	0.9	2.2	0.4	2.1	0.4
5596	15	21	28	55	6.8	25	4.3	0.9	3.9	0.6	3.1	0.7	1.6	0.3	1.8	0.3
Залив Цивольки	12	15	26	51	6.3	27	4.1	1.1	4.8	0.4	3.7	0.8	2.1	0.3	2.4	0.2
Залив Седова	17	13	25	54	6.4	25	5.7	1.2	4.5	0.7	4.5	0.8	2.4	0.3	2.7	0.3

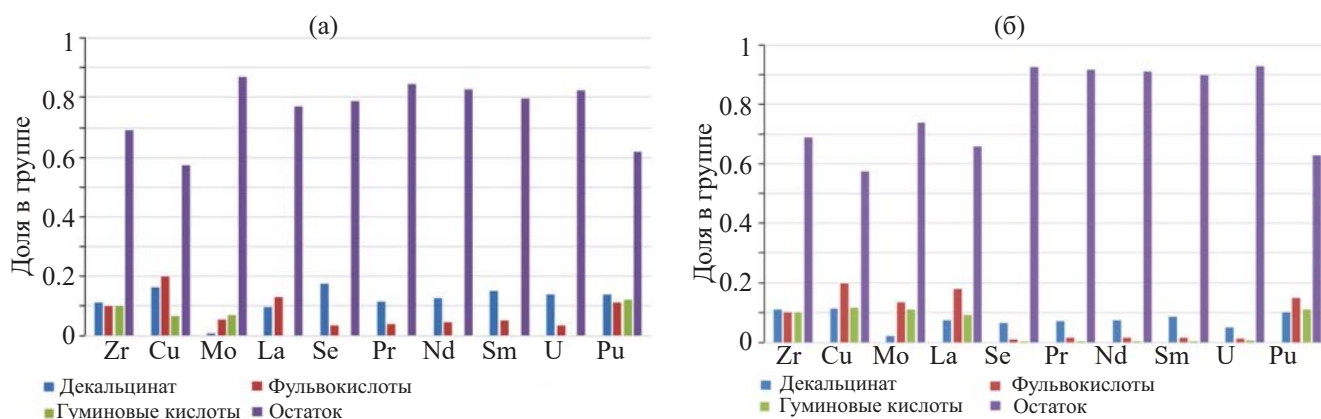


Рис. 2. Формы нахождения ^{239}Pu и химических элементов в составе органического вещества донных отложений моря Лаптевых (а, б – образцы 5591 и 5596).

14% ^{239}Pu и 3–15% химических элементов (Cu, Mo и Zr). В органическом веществе донных отложений станций 5591 и 5596 22–26% ^{239}Pu и 20–30% Cu, Mo и Zr связано с ФК и ГК. Связь РЗЭ (за исключением лантана) с группами ФК и ГК не обнаружена, а основное их количество найдено в остатке. С группой низкомолекулярных и ФК связаны в большей степени химические элементы в образце 5591 по сравнению с образцом 5596. Pu и химические элементы могут образовывать прочные комплексы с ФК и ГК в почвах и донных отложениях, эти органические кислоты могут как подавлять (ГК), так и активировать (низкомолекулярные органические кислоты и ФК) миграцию Pu и химических элементов. В образце станции 5596 найдено более высокое содержание ^{239}Pu и химических элементов в составе труднорастворимого остатка по сравнению с об-

разцом 5591, что обусловлено разным содержанием $S_{\text{орг.}}$ в этих образцах (7.8 и 11.1 мг/г соответственно).

Распределение урана по группам органического вещества сходно с лантанидами. Распределение плутония по группам органического вещества наиболее близко к элементам, применяемым в конструкционных материалах и, возможно, имеющим сходный путь проникновения в морскую среду.

При применении в эксперименте двух методов изучения форм нахождения (Tessier и Орлова) получены близкие результаты по нахождению ^{239}Pu и химических элементов в составе органического вещества донных отложений.

На рис. 3 представлены данные по распределению ^{239}Pu и химических элементов по формам, ха-

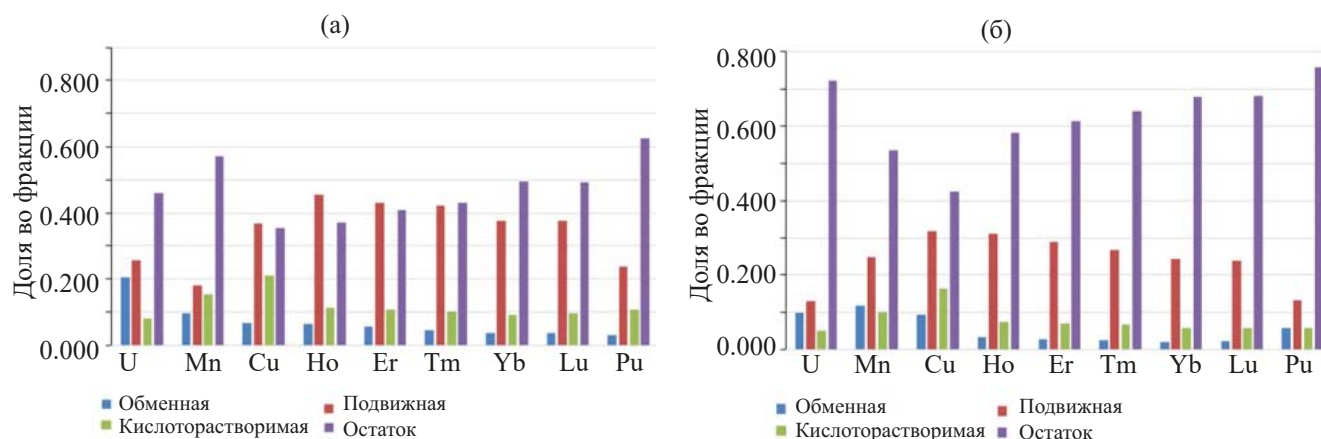


Рис. 3. Формы нахождения ^{239}Pu и химических элементов в донных отложениях Карского моря (а, б – заливы Цивольки и Седова соответственно).

рактизирующих степень их подвижности в образцах донных отложений Карского моря (потенциально подвижные и фиксированные формы).

В составе миграционно мобильной обменной формы, в которой находятся преимущественно легкорастворимые органические и неорганические соединения, найдено 2–3% тяжелых лантаноидов и 2–6% ^{239}Pu . В этой группе также обнаружено 10–20% урана, 10% марганца и 5–10% меди. С группой относительно подвижных соединений органической и неорганической природы, выделяемых при обработке донных отложений 0.1 М HCl , связано 13–24% ^{239}Pu и от 12 до 40% тяжелых лантанидов. Основная доля ^{239}Pu найдена в составе трудно растворимых соединений (кислоторастворимые в 6 М HCl и остаток), представленный гидроксидами Fe и Mn разной степени окристаллизованности и другими минеральными компонентами, подобное распределение характерно и для РЗЭ. Во фракциях геохимической мобильности поведение ^{239}Pu схоже с ураном, марганцем и тяжелыми лантанидами. Для образцов донных отложений из залива Седова доля ^{239}Pu и химических элементов в труднорастворимой форме выше, чем в образце из залива Цивольки, что обусловлено различным химическим составом донных отложений (табл. 2).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Изучены формы нахождения метки ^{239}Pu и химических элементов, включая РЗЭ, содержащихся в донных отложениях моря Лаптевых и Карского моря. Показано, что природные свойства изученных образцов (содержание $\text{C}_{\text{орг}}$, минералогический и химический состав донных отложений и др.) влияют на поведение ^{239}Pu и химических элементов в изученных объектах природной среды. Наиболее близко формы нахождения плутония соответствуют формам нахождения тяжелых лантанидов, которые могут служить маркерами его поведения в объектах морской среды. Несмотря на низкое содержание $\text{C}_{\text{орг}}$ в донных отложениях моря Лаптевых, органические вещества разной степени растворимости (низкомолекулярные и фульвокислоты, гуминовые кислоты) в значительной степени влияют на по-

ведение изученных элементов. При сравнении результатов, полученных двумя методами (Tessier и Орлова) было установлено, что до 40% ^{239}Pu входит в состав органического вещества донных отложений разной степени подвижности (низкомолекулярные и фульвокислоты), что указывает на потенциальную возможность ^{239}Pu мигрировать в системе морская вода–донные отложения. В целом следует отметить, что сродство к мобильным химическим формам характерно в большей степени именно для плутония и группы тяжелых лантанидов.

ФОНДОВАЯ ПОДДЕРЖКА

Данная работа выполнена по госзаданию FMUS-2019-0010.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Smith J.N.* // Contin. Shelf Res. 2000. Vol. 20. P. 255.
2. *Ветров А.А., Романкевич Е.А., Беляев Н.А.* // Геохимия. 2008. Т. 10. С. 1122.
3. *Novikov A.P.* // Geochem. Int. 2010. Vol. 48, N 13. P. 1285–1398.
4. *Сапожников Ю.А., Алиев Р.А., Калмыков С.Н.* Радиоактивность окружающей среды. М.: БИНОМ, 2006. 286 с.
5. *Budko D.F., Demina L.L., Travkina A.V., Starodymova D.P., Alekseeva T.N.* // Minerals. 2022. Vol. 12, N 3. P. 328.
6. *Павлоцкая Ф.И., Новиков А.П., Горяченкова Т.А., Казинская И.Е., Емельянов В.В., Кузовкина Е.В., Барсукова К.В., Лавринович Е.А., Коровайков П.А., Мясоедов Б.Ф.* // Радиохимия. 1998. Т. 40, № 5. С. 462.
7. *Горяченкова Т.А., Казинская И.Е., Кларк С.В., Новиков А.П., Мясоедов Б.Ф.* // Радиохимия. 2005. Т. 47, № 6. С. 550.
8. *Павлоцкая Ф.И., Горяченкова Т.А., Емельянов В.В.* // Атом. энергия. 1992. Т. 73, № 1. С. 32.
9. *Павлоцкая Ф.И., Горяченкова Т.А., Мясоедов Б.Ф.* // Радиохимия. 1997. Т. 39, № 5. С. 464.

10. Tessier A., Campbell P.G.C., Bisson M. // *Anal. Chem.* 1979. Vol. 51. P. 844.
11. Павлоцкая Ф.И., Горяченкова Т.А., Казинская И.Е., Новиков А.П., Мясоедов Б.Ф., Кузнецов Ю.В., Легин В.К., Шишинунова Л.В. // *Радиохимия*. 2003. Т. 45, № 5. С. 471.
12. Орлов Д.С. *Химия почв*. М.: МГУ, 1992. С. 399.
13. Горяченкова Т.А., Травкина А.В., Борисов А.П., Соловьева Г.Ю., Казинская И.Е., Лигаев А.Н., Новиков А.П. // *Геохимия*. 2023. Т. 68, № 3. С. 306.
14. Горяченкова Т.А., Борисов А.П., Соловьева Г.Ю., Лавринович Е.А., Казинская И.Е., Лигаев А.Н., Травкина А.В., Новиков А.П. // *Геохимия*. 2019. Т. 64, № 12. С. 1261.
15. Горяченкова Т.А., Казинская И.Е., Рылеева В.С., Новиков А.П. // *Радиохимия*. 2013. Т. 55, № 5. С. 553.

Speciation of Plutonium and Some Chemical Elements in the Bottom Sediments of the Laptev Sea and the Kara Sea

T. A. Goryachenkova^a, I. E. Kazinskaya^a, A. V. Travkina^{a,*},
D. P. Starodymova^b, A. P. Novikov^a

^a HSG Vernadsky Institute of Geochemistry and Analytical Chemistry of the Russian Academy of Sciences,
Moscow, 119991 Russia

^b HSG Shirshov Institute of Oceanology of the Russian Academy of Sciences, Moscow, 117997 Russia
*e-mail: a_travkina@mail.ru

Received March 20, 2023; revised April 18, 2023; accepted April 22, 2023

The comparison of the speciation forms of ²³⁹Pu and chemical elements, including rare earth elements (REE), in the bottom sediments of the Kara Sea and the Laptev Sea is given. The speciation forms were investigated by three different methods of selective leaching. Data were obtained on the content of chemical elements and ²³⁹Pu in the composition of complexes with different lability: easily soluble, bound to organic matter, including groups of humic acids (HA) and fulvic acids (FC), as well as with amorphous oxides of Fe and Mn. It is shown that humic and low molecular weight organic acids and their compounds with chemical elements can influence the behavior of plutonium in the seawater–bottom sediments system in the waters of the Arctic seas. The possibility of using a number of REE as a marker for predicting the migration behavior of plutonium is evaluated.

Keywords: marine sediments, ²³⁹Pu, chemical elements, speciation forms.