——— РАДИОНУКЛИДЫ **——**

УЛК 539.163:574

ПЛУТОНИЙ В ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЕ: ИСТОЧНИКИ, МЕХАНИЗМЫ РАСПРОСТРАНЕНИЯ, КОНЦЕНТРАЦИИ

© 2021 г. С. Н. Лукашенко¹, М. А. Эдомская^{1,*}

¹ Всероссийский научно-исследовательский институт радиологии и агроэкологии, Обнинск, Россия *E-mail: maisher@mail.ru

Поступила в редакцию 12.10.2020 г. После доработки 09.04.2021 г. Принята к публикации 28.04.2021 г.

Обобщена информация об источниках и механизмах поступления плутония в окружающую среду. Дан обзор величин и распределения глобальных выпадений плутония, а также данных по техногенным источникам поступления изотопов плутония в окружающую среду. Для этого рассмотрено поступление плутония в результате ядерных взрывов на испытательных полигонах, таких как Невада, Семипалатинский полигон, Новая Земля и т.д., а также масштабы загрязнения объектов окружаюшей среды в результате проведенных испытаний. Приведены данные о поступлении плутония вследствие ядерных и радиационных аварий на атомных станциях (Чернобыльская АЭС, Фукусима и др.) и на предприятиях ядерного комплекса (Кыштымская авария и др.). Отдельно рассмотрен такой путь поступления плутония в природную среду как выбросы и сбросы предприятий ядерного комплекса (Селлафилд, ГХК (Красноярск) и др.). Обобщена и представлена информация об уровнях и содержании изотопов плутония в различных средах и объектах окружающей среды, а также информация о параметрах, характеризующих миграцию плутония в различных средах, и переход между ними. Рассмотрены формы нахождения плутония в почвах (распределение по гранулометрическим фракциям, химические формы, "горячие" частицы и т.д.), а также обобщена информация относительно характерных уровней концентраций плутония в почвах для различных объектов. Приведены данные о концентрациях плутония в воздушной среде. Представлена информация о формах нахождения плутония в водной среде, а также о характерных уровнях концентраций плутония в различных водных объектах, включая мировые океаны. Обобщена информация о коэффициентах перехода изотопов плутония в системе "почва-растения". Особое внимание уделено изотопам плутония в биологических объектах и организме человека.

Ключевые слова: Ри, изотопы плутония, ядерные испытания, ядерные аварии, миграция, формы нахождения, почва, водная среда, биологические объекты, человек, коэффициенты перехода, накопления

DOI: 10.31857/S086980312104007X

Плутоний — радиоактивный элемент с атомным номером 94 относится к семейству актиноидов. Открыт в 1940—1941 гг. американскими учеными Г. Сиборгом, Э. Макмилланом, Дж. Кеннеди и А. Валем, которые получили изотоп ²³⁸Ри в результате облучения урана ядрами тяжелого водорода — дейтонами [1]. Плутоний не имеет стабильных изотопов. Наиболее важным видом радиоактивного распада основных изотопов плутония является α-распад. Ядерно-физические характеристики основных радиоизотопов приведены в табл. 1 [2].

Плутоний природного происхождения присутствует в окружающей среде в следовых концентрациях. Одним из источников природного происхождения плутония является образование ²⁴⁴Pu в сверхновых звездах при помощи нуклео-

синтеза. Содержание 244Ри в земной коре от сверхновых звезд оценивается величиной –3 × \times 10⁻²⁵ грамм на грамм земной коры [3]. Вторым источником природного плутония являются непрерывно происходящие реакции В-распада 239 Np, который, в свою очередь, возникает при ядерной реакции U с нейтронами (например, нейтронами космического излучения) [4]. Предполагая, что среднее содержание ²³⁸U в земной коре составляет 2.7×10^{-3} г/кг, приблизительная оценка дает среднюю концентрацию 239 Pu $- 2 \times$ \times 10⁻¹⁴ г/кг или около 5 \times 10⁻⁵ Бк/кг [3]. Таким образом, плутоний в окружающей среде имеет преимущественно техногенное происхождение, обусловленное испытаниями ядерного оружия, выбросами при ядерных и радиационных авари-

Таблица 1. Ядерно-физические свойства основных радиоактивных изотопов плутония **Table 1.** Nuclear-physical properties of the main plutonium isotopes

			_	
Радионуклид	$T_{1/2}$, лет	Тип распада	Средняя энергия α-излучения и ядра отдачи МэВ/(Бк с)	Примечание
²³⁶ Pu	2.9	СД, α	5.85	Ранее (наряду с ²³⁸ Pu) применялся для изготовления радиоизотопных источников энергии. Используется в качестве трассера для радиохимического анализа
²³⁸ Pu	8.8×10^{1}	СД, α	5.58	Используется в радиоизотопных источниках энергии
²³⁹ Pu	2.4×10^4	α	5.23	Основной изотоп, используемый при производстве ядерного вооружения и ядерного топлива
²⁴⁰ Pu	6.5×10^{3}	СД, α	5.24	Является основной примесью в ²³⁹ Pu
²⁴¹ Pu	1.4 × 10 ¹	β-	1.22×10^{-4}	Обычно присутствует в только что выра- ботанном оружейном плутонии. Является единственным основным β-излучателем, однако он распадается с образованием более токсичного ²⁴¹ Am
²⁴² Pu	3.8×10^{5}	СД, а	4.974	Используется в качестве трассера для радиохимического анализа
²⁴⁴ Pu	8.1 × 10 ⁷	α, СД, β-	_	В обычных ядерных реакторах нарабатывается в мизерных количествах. Используется при проведении точных радиохимических измерений

Примечание. СД – спонтанное деление; ЗЭ – захват электронов.

ях, выбросами предприятий ядерно-топливных циклов в виде $^{238-241}$ Pu.

Химические свойства плутония во многом сходны со свойствами его предшественника в периодической системе урана. Известны степени окисления от +2 до +7. В растворах существует в формах Pu^{3+} , Pu^{4+} , PuO_2^+ , PuO_2^{2+} и PuO_5^{3-} , отвечающих степеням окисления от +3 до +7. Указанные ионы (кроме PuO_5^{3-}) могут находиться в растворе одновременно в равновесии. Ионы плутония всех степеней окисления склонны к гидролизу и комплексообразованию.

Химическая форма плутония, поступающего в природную среду, в зависимости от источника может меняться от труднорастворимых соединений, до относительно легкорастворимых форм [5]. Например, в зарядах атомных бомб использовались сплавы плутония с другими металлами. При этом растворимость двойных сплавов плутония с металлами побочных подгрупп очень ограничена; исключением являются твердые растворы с алюминием [4, 6]. Выделяют следующие наиболее распространенные формы плутония, присутствующие в различных объектах: раство-

ренный плутоний; оксиды плутония; плутоний, связанный с органическими и неорганическими веществами [7].

Плутоний — радиотоксичный элемент. Несмотря на его плохую усвояемость в желудочнокишечном тракте, при поглощении 0.5 г плутония развивается острое внутреннее облучение, способное привести к летальному исходу. Самым опасным путем поступления плутония в организм человека являются органы дыхания. Вдыхание дозы в 20 мг приводит к смерти от фиброза в течение месяца [4, 8].

Плутоний в биологических системах, как правило, имеет степень окисления + 4 и имеет схожие с железом свойства. Таким образом, при попадании изотопов плутония в кровь с большой долей вероятности следует ожидать их концентрирования в железосодержащих тканях, таких как костный мозг, селезенка, печень. Период выведения изотопов плутония из костной ткани оценивается в 80–100 лет. Международная комиссия по радиологической защите установила величину максимального ежегодного поглощения плутония на уровне 280 нанограмм [4].

ИСТОЧНИКИ ПЛУТОНИЯ В ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЕ

Плутоний в окружающей среде имеет практически только техногенное происхождение, связанное с испытанием ядерного оружия, ядерными и радиационными авариями, выбросами и сбросами предприятий ядерно-топливных циклов.

Проведение ядерных взрывов

Во всем мире было проведено более 2400 испытаний ядерного оружия. Атмосферные ядерные взрывы стали крупнейшим источником плутония в окружающую среду. Пять основных государств, обладающих ядерным оружием, проводили ядерные испытания в атмосфере: Соединенные Штаты, Великобритания, Франция, Китай и Советский Союз.

США. Первое поступление искусственного плутония в атмосферу произошло в июле 1945 г. при детонации первой плутониевой бомбы, содержащей 6 кг плутония, близ Аламогордо в Нью-Мексико, испытание получило название Тринити (Trinity) [3].

Невадский испытательный полигон. Территория полигона около 3500 км², на нем было осуществлено 928 ядерных взрывов. В результате подземных ядерных испытаний на поверхности и в недрах полигона осталось 1500 ТБк (2.3 кг) 238 Pu, 5900 ТБк (2600 кг) 239 Pu, 1600 ТБк (180 кг) 240 Pu, 22000 ТБк (5.7 кг) 241 Pu и 0.6 ТБк (4.1 кг) 242 Pu. Следует отметить, что содержание изотопов плутония в почве крайне неоднородно и, безусловно, зависит от типа ядерного испытания. Наибольшее количество плутония сосредоточено на площадке 13 (33% от общего количества), площадью в 400 га, где среднее содержание $^{239+240}$ Pu составляет 5.6 × 103 Бк/кг. Максимальные уровни плутония наблюдаются на площадке 11, где концентрация $^{239+240}$ Pu достигает 3 × 106 Бк/кг [9].

Маршалловы острова. В результате 66 ядерных испытаний, проведенных в 1946-1958 гг., Маршалловы Острова (Бикини и Эневетак) стали одним из нескольких объектов в мире, где наблюдается наиболее высокий уровень загрязнения плутонием. Концентрации $^{239+240}$ Ри в образцах почвы охватывают диапазон почти пяти порядков: от фоновых значений (0.04 Бк/кг) на Taongi до 4140 Бк/кг на Enewetak [10].

Великобритания. В период 1952—1963 гг. Великобритания произвела 12 атмосферных ядерных испытаний в Австралии на острове Монтебелло (Montebello), на Эму Филд (Emu Field) и полигоне Маралинга. На этом же полигоне было проведено несколько сотен подкритических испытаний и испытаний в целях безопасности. Также Великобритания провела семь атмосферных испытаний в Республике Кирибати.

На полигоне Маралинга около 22 кг плутония и примерно столько же обогащенного урана было рассеяно в результате проведенных испытаний [9]. Большая часть Pu выпала в форме очень мелких частиц, концентрация ^{239}Pu в 10 см слое почвы варьирует от 1 до 2600 Бк/кг [11]. Содержание изотопов плутония на территории Австралии за пределами полигона оценивают в $n \times 10^{-1}$ Бк/кг. При этом на острове Монтебелло наблюдаются повышенные содержания ^{239}Pu и ^{240}Pu , которые достигают значений 310 и 52 Бк/кг соответственно [12].

Франция. Полигон в Алжире. С 1960 по 1966 г. Франция провела 30 подземных ядерных испытаний и четыре атмосферных испытания. Кроме того, было проведено 35 экспериментов с использованием плутониевых гранул в Реганском оазисе и пять экспериментов по диспергированию плутония, в каждом из которых использовалось 20-200 г плутония на эксперимент. В результате исследований, проведенных миссией МАГАТЭ в 1999 г., было выявлено, что общее загрязнение незначительно. Исключение составляет загрязнение после испытания Берилл, проведенного в 1962 г., где суммарная остаточная активность ^{239 + 240}Pu оценивается величиной 1-2 ТБк. Однако диапазоны концентраций ²³⁸ Ри и ^{239 + 240} Ри для территории Алжира вне территории испытательных площадок составляют 0.012-0.013 и 0.24-0.61 Бк/кг соответственно [13].

Французская Полинезия. В течение 1966—1996 гг. Франция провела 178 испытаний ядерного оружия на островах Муруроа и Фангатауфа во Французской Полинезии: 41 атмосферное испытание и 137 подземных испытаний, а также 15 испытаний по исследованию безопасности, при которых ядерные устройства взрывались с помощью обычных взрывчатых веществ для имитации аварийных ситуаций. Испытания по безопасности привели к диспергированию около 3.5 кг ²³⁹Pu [3, 14]. Концентрации ²³⁸Pu и ^{239 + 240}Pu на территории Французской Полинезии на исследованных участках варьируют в диапазоне 0.6—26 и 19—500 Бк/кг соответственно [15]

Китай. Полигон Лобнор. В течение 1964—1996 гг. В Китае было проведено 45 атмосферных и подземных испытаний. Выпадения от первого испытания 1964 г. фиксировались в Японии спустя 3—4 дня после взрыва. Информации о загрязнении полигона в открытой печати нет. Имеется информация, что в регионе, где расположен Лобнор, отмечены концентрации $^{239+240}$ Ри в диапазоне 13—546 Бк/м².

СССР (Россия), полигон "Новая земля". На северном испытательном полигоне Новая Земля (СИПНЗ) в 1955—1990 гг. было проведено 88 атмосферных, три подводных и 39 подземных ядер-

ных испытаний. На сегодняшний день точных данных по содержанию изотопов плутония в почве СИПНЗ нет. Загрязнение плутонием можно ожидать на и в непосредственной близости к основным испытательным площадкам: Черная губа, Маточкин шар и Сухой нос.

Опубликована информация, что содержание $^{239+240}$ Ри в открытых районах Баренцева моря в донных отложениях находится в диапазоне 0.2-3.2 Бк/кг. Содержание ^{239 + 240} Ри в грунтах Кольского и Мотовского заливов оценивается в 0.3-5.6 Бк/кг, в губах Ура, Ара, Пала в поверхностном слое донных отложений 1.4—2.2 Бк/кг, в губе Сайда, Западная Лица и Оленья – до 4-6 Бк/кг. По мере приближения к Новой Земле содержание $^{239+240}$ Ри в осадках возрастает до 5—15 Бк/кг. Самые высокие уровни загрязнения плутонием зафиксированы непосредственно в губе Черная на Новой Земле. Здесь активность ^{239, 240}Pu в донных отложениях колеблется от 300 до 8500 Бк/кг. достигая максимальных значений в алевритовых осадках на дне губы (глубина 80–100 м) [16].

СССР (Казахстан), Семипалатинский испытательный полигон (СИП). СИП был одним из основных полигонов, использовавшихся бывшим Советским Союзом для испытаний ядерного оружия. С 1949 по 1989 г. было проведено 456 ядерных испытаний, что составляет 64% от всех испытаний в СССР. СИП в настоящее время является наиболее полно изученным ядерным полигоном с точки зрения оценки последствий проведенных испытаний [17, 18].

Наземные и воздушные испытания. Площадка "Опытное поле" была первой испытательной площадкой Семипалатинского полигона, которая предназначалась для проведения атмосферных (наземных и воздушных) ядерных испытаний в период с 1949 по 1962 г. Площадка представляет собой равнину диаметром примерно 20 кми занимает плошадь размером около 300 км^2 . Площадка расположена на расстоянии около 50 км от города Курчатова (Восточно-Казахстанская обл.). Всего на "Опытном поле" было проведено 116 ядерных испытаний, из них 86 были воздушными, 30 — наземными. При проведении воздушных испытаний выпадения непосредственно на территории полигона отсутствуют, практически все образовавшиеся радиоактивные элементы поступают в верхние слои атмосферы и в результате выпадают на поверхность всей Земли.

В пределах площадки "Опытное поле" существовал ряд технических площадок (П-1, П-3, П-5), где непосредственно проводились наземные ядерные испытания. На площадке П-1 были проведены три наиболее мощных наземных ядерных испытания. В местах проведения наземных испытаний имеются воронки с навалами грунта и фрагментами оплавленной почвы, содержащей

продукты ядерных взрывов. На других технических площадках (П-2, П-7, П-2М) проводились, в основном, гидроядерные и гидродинамические эксперименты. В процессе этих экспериментов практически отсутствовало значимое ядерное энерговыделение. Это привело к образованию небольшого количества "продуктов деления", но большого количества диспергированных делящихся материалов, прежде всего плутония.

В 2012—2016 гг. были выполнены масштабные исследовательские работы, которые позволили охарактеризовать радиационную ситуацию на всем "Опытном поле" с разрешением 20 м. Результаты исследований показали, что радиоактивное загрязнение местности на площадке не является повсеместным, а приурочено непосредственно к местам проведения испытаний — эпицентрам и эпицентральным зонам, а также к следам радиоактивных выпадений от проведенных испытаний.

В целом все места проведения испытаний по содержанию изотопов плутония можно условно разделить на две группы:

- 1) места проведения наземных ядерных испытаний с большим энерговыделением и с высоким (интенсивным) нейтронным потоком. Почва в эпицентрах характеризуется как значительными концентрациями продуктов деления (137 Cs, 90 Sr) ядерного взрыва, так плутония до $n \times 10^4$ Бк/кг. Диаметр зоны загрязнения, где концентрация плутония существенно превышает фоновый уровень, не превышает 2 км;
- 2) места ядерных экспериментов с малым или полным отсутствием ядерного энерговыделения. На данных участках концентрация плутония могла достигать значений $n \times 10^7$ Бк/кг, однако на наиболее опасных участках проведено изъятие грунта или рекультивация, так что в настоящее время концентрация $^{239+240}$ Ри не превышает значений $n \times 10^4$ Бк/кг. При этом площадь значительно загрязненных участков составляет $n \times (10^3-10^4)$ м².

Радиоактивное загрязнение за пределами территорий испытательных площадок сформировалось в результате выпадений продуктов ядерных взрывов из радиоактивных облаков, которые перемещались в различных направлениях от мест проведения испытаний. Из всех наземных ядерных испытаний, произведенных на СИП, можно выделить не более десятка ядерных испытаний, которые, в основном, определили масштабы радиоактивного загрязнения окружающей среды на территории полигона вне испытательных площадок и прилегающих к нему регионов. Исследования последнего десятилетия подтвердили наличие следов радиоактивных выпадений далеко за пределами испытательных площадок. Следы от наземных ядерных испытаний вытянуты от "Опытного поля" практически до границ полигона. При ширине следов до 15 км их длина составляет свыше 100 км. Максимальное содержание $^{239+240}$ Ри в почвах на следах радиоактивных выпадений выявлено на расстоянии около 40 км от эпицентра испытаний на площадке Π -1 в количествах до $n \times 10^2$ Бк/кг, по мере удаления от эпицентра концентрация плутония снижается и на границе СИП составляет $n \times 10^1$ Бк/кг.

Подземные испытания. Подземные испытания на СИП проводились на трех площадках: взрывы в скважинах — на площадках "Балапан" и "Сары-Узень", взрывы в штольнях — на площадке "Дегелен". При проведении подавляющего большинства подземных испытаний не происходило выброса плутония в окружающую среду, безусловно, за исключением аварийных ситуаций, которые имели место.

По историческим данным на "Балапане" было произведено 105 боевых испытаний в 106 скважинах, а на "Сары-Узене" — 24 испытания в 25 скважинах. Проведение ядерных экспериментов на обеих площадках началось в 1965 г. и продолжалось вплоть до 1980-х годов. Средняя глубина закладки ядерного заряда на "Балапане" составляла 650 м, а на "Сары-Узене" — около 250 м. Мощность взрывов довольно сильно варьировала и достигала 150 кт.

Основная часть площадок, не попавшая под локальные радиоактивные выпадения, характеризуется следующими значениями средней концентрации техногенных радионуклидов: ^{239 + 240}Pu $n \times 10^{1}$ Бк/кг, 137 Cs – $n \times 10^{1}$ Бк/кг. Радиоактивное загрязнение приустьевых площадок скважин можно условно разделить на три типа: чистые скважины (24 шт. – "Балапан", 10 шт. – "Сары-Узень"), скважины с незначительным радиоактивным загрязнением (73 шт. - "Балапан", 12 шт. - "Сары-Узень") и скважины со значимыми уровнями удельной активности (9 шт. – "Балапан", 6 шт. – "Сары-Узень"). Пятна радиоактивного загрязнения на приустьевых площадках, возникшие в результате аварийных ситуаций, имеют размеры $n \times$ \times 10³ м², при этом концентрации ^{239 + 240} Pu в почве могут достигать уровней $n \times 10^5$ Бк/кг.

Испытательная площадка "Дегелен" использовалась для проведения ядерных испытаний средней и малой мощности. Общая площадь составляет ~300 км². Подземные ядерные испытания проводились в штольнях. Всего в период с 1961 по 1989 г. было проведено 209 ядерных испытаний в 181 штольне.

Радиоэкологическое обследование площадки "Дегелен" показало, что большая часть ее территории не имеет радиоактивного загрязнения, так как основная доля (более 90%) радиоактивности, наработанная в процессе ядерных испытаний, сосредоточена в полостях штолен. Однако суще-

ствуют участки с повышенными концентрациями радионуклидов в объектах окружающей среды (почва, вода, растительность). Такие участки сформированы, в основном, тремя путями: 1) нештатные ситуации при проведении ядерных испытаний; 2) вскрытие штолен после проведения испытаний; 3) вынос радиоактивности из полостей штолен водным путем. Наиболее загрязненными участками площадки "Дегелен" являются припортальные площадки штолен с водотоками. Многолетние мониторинговые исследования показывают, что вынос радионуклидов водным путем из полостей ядерных взрывов продолжается и в настоящее время. Всего таких штолен на площадке "Дегелен" от 8 до 12, в зависимости от погодных условий в разные годы (большое влияние оказывают атмосферные осадки).

Анализ имеющейся информации о максимальных значениях удельных активностей радионуклидов в воде водотоков из различных штолен показал, что они достигали по $^{239+240}$ Pu -6.4 Бк/л (шт. 503), 241 Am -2.6 Бк/л (шт. 177). Радиоактивное загрязнение сосредоточено в донных отложениях русел ручьев, имеющих в поперечнике размеры не более 10 м. Максимальных значений радиоактивное загрязнение достигает, как правило, вблизи порталов штолен, около выхода водотоков на дневную поверхность, составляя по $^{239+240}$ Pu значения $n \times 10^4$ Бк/кг. По мере удаления от порталов штолен загрязнение местности резко уменьшается. Дальность распространения ^{239 + 240}Pu с водой вдоль русла ручья в большинстве случаев не превышает сотен метров от источника, соответственно общая площадь загрязнения составляет $n \times 10^4$ м².

Испытания боевых радиоактивных веществ. Ядерные взрывы не единственный вид испытаний, проводившихся на территории СИП. В 1953—1957 гг. были реализованы программы по испытанию боевых радиоактивных веществ (БРВ). БРВ представляли собой жидкие или порошкообразные радиоактивные рецептуры. Испытания БРВ проводились на площадках "4" и "4а", расположенных западнее и севернее "Опытного поля". Рассеяние БРВ осуществлялось путем подрыва отдельных снарядов, бомбардировки участков минометными снарядами, сброса бомб с бомбардировщиков или распыления БРВ с самолетов. В результате проведенных исследований на территории площадок было обнаружено более 30 участков локального радиоактивного загрязнения. Основным загрязнителем является радионуклид 90Sr, максимальная удельная активность которого в почвенном покрове достигает 5×10^8 Бк/кг. Присутствуют и другие радионуклиды, включая $^{239+240}$ Pu, но в гораздо меньшем количестве, на уровне $n \times 10^3$ — $n \times 10^4$ Бк/кг. Площади участков радиоактивного загрязнения составляют $n \times 10^2 - n \times 10^5 \,\mathrm{M}^2$.

Проведение мирных ядерных взрывов. В период с 1961 по 1989 г. Советский Союз и Соединенные Штаты осуществили более 150 так называемых мирных ядерных взрывов, которые качественно не отличаются от испытаний оружия, но намного меньше с точки зрения выбросов изотопов плутония за пределы площадок. На СИП в период с 1965 по 1968 г. было произведено четыре экспериментальных мирных ядерных взрыва с выбросом грунта для отработки способов создания искусственных водохранилищ и каналов. Как правило, в результате подобных испытаний образовывались воронки и кратеры радиусом от нескольких десятков до сотен метров. Основная часть радионуклидов, образовавшихся во время взрывов, сосредоточена в зонах навала грунта, а сверхнормативное радиоактивное загрязнение прилегающей территории ограничено расстоянием от 200 м ("Телькем-1, -2") до 5 км ("Атомное озеро"). Концентрация $^{239+240}$ Ри максимальна в зоне навала, достигая значений $n \times 10^4$ Бк/кг.

В период с 1965 по 1988 г. на территории СССР в рамках реализации государственной программы "Ядерные взрывы для народного хозяйства" было произведено 124 мирных ядерных взрыва (МЯВ), 117 из них за пределами границ испытательных полигонов ядерного оружия [19]. Все ядерные взрывы были подземными, 80 (по другим источникам 81) взрывов проведено в РСФСР, 39 — в Казахской ССР, 2 — в Украинской ССР, 2 — в Узбекской ССР, 1 — в Туркменской ССР. Подавляющее большинство взрывов зарядов (130) было произведено в скважинах, один — в шахте и четыре — в штольнях.

Несмотря на предпринимаемые защитные меры во время подземных испытаний, происходили выбросы радиоактивных веществ в атмосферу. В СССР радиационные события при ядерных испытаниях делились на штатные и нештатные радиационные ситуации. При проведении МЯВ на территории Российской Федерации было несколько взрывов, при проведении которых возникла аварийная ситуация, в частности испытания "Глобус-1" и "Кратон-3". На двух объектах "Тайга" и "Кристалл" произошло плановое радиоактивное загрязнение, поскольку целью данных взрывов было приповерхностное перемещение больших объемов грунта, т.е. фактически быпроведены экскавационные испытания. В работе [20] приведены данные, характеризующие радиоэкологическую обстановку на объектах "Кратон-3" и "Кристалл", расположенных в Якутии. На участке "Кратон-3" наблюдались концентрации $^{239+240}$ Ри в диапазоне от 6.2 до 5900 Бк/кг в поверхностных почвах (0×5 см). Отмечено, что радиоактивное загрязнение на "Кристалле" демонстрирует крайне неравномерное распределение $^{239+240}$ Ри в радиусе 150 м от объекта.

Военное использование ядерных взрывов

Нагасаки (Япония). Приблизительно 1.2 кг плутония подверглись делению при взрыве бомбы в Нагасаки, еще 14 кг были выброшены в окружающую среду, а 37.5 г были депонированы непосредственно в районе Нагасаки. Исследования в районе Нагасаки показали, что изотопные отношения в почве отличались от тех, которые были обусловлены глобальными выпадениями. Содержание ^{239 + 240}Ри в почвах, собранных в районе Нисияма, Нагасаки в среднем составляет 46 Бк/кг (смаксимальным значением 73 Бк/кг). Отношение ²⁴⁰Ри/²³⁹Ри в зоне загрязнения составило 0.03—0.04 (атомное отношение) [21—23].

Войсковые учения. США провели восемь учений под кодовым названием DesertRock (Дезерт Рок) на полигоне в Неваде, в которых в районе ядерного взрыва войска проводили марш-броски и десантирования [24]. Первый взрыв произошел 1 ноября 1951 г., последний — в 1957 г. В СССР 14 сентября 1954 г. на Тоцком полигоне в Оренбургской области были проведены масштабные военные учения с применением атомной бомбы. Взрыв был воздушным, мощностью около 40 килотонн. В открытой печати существует много публицистической информации о данном учении, однако в научной литературе информации о текущем состоянии зоны проведения данного взрыва найти не удалось. Однако, учитывая, что в СССР атомные бомбы, как правило, использовали плутоний, то можно ожидать повышенных концентраций плутония в этой зоне [25].

Аварийные выбросы от атомных электростанций

Авария в Уиндскейле. После пожара 10 октября 1957 г. на атомном комплексе "Селлафилд", графства Камбрия, Англия, было выброшено около 0.02 ТБк $(8.7 \text{ г})^{239}$ Ри, вероятно, связанного с частицами облученного топлива [3, 26].

Авария на Чернобыльской АЭС, 1986 г. Во время аварии было выброшено в окружающую среду около 20 ТБк ²³⁸Ри, 15 ТБк ²³⁹Ри, 23 ТБк ²⁴⁰Ри, 3000 ТБк (1.4 кг) ²⁴¹Ри и 0.04 ТБк для ²⁴²Ри. Следует отметить, что степень опасности Чернобыльских радиоактивных выпадений определяется в первую очередь 137 Cs, в меньшей степени 90 Sr и еще в меньшей трансурановыми элементами, что объясняется малой летучестью соединений последних. Выпадение соединений радиоактивных стронция, америция и плутония из атмосферы проходило быстрее, чем выпадение цезия, и площади загрязнения ими ограничены относительно небольшими территориями. Соотношение 137 Cs/ $^{239+240}$ Pu составляет около тысячи ($n \times 10^2 - n \times 10^3$), ориентировочные соотношения трансурановых изотопов — 238 Pu: $^{239+240}$ Pu: 241 Am = 0.5 : 1 : 0.76 [27].

2021

Распространение ^{239, 240} Pu ограничилось практически зоной отчуждения (близкой по своей конфигурации к 30-километровой зоне) [28]. Уровни радиоактивности плутония в радиусе 1 км вокруг чернобыльской площадки достигают уровней 1100 Бк/кг [3, 29]. Содержание ²³⁸Pu, ^{239 + 240}Pu, ²⁴¹Pu в почвах с. Копачи, расположенном в 4 км от ЧАЭС, составило 6, 12 и 14 Бк/кг соответственно, причем основное содержание изотопов наблюдается до глубины 1 см. Так, содержание 238 Pu, $^{239+240}$ Pu, 241 Pu для глубины 0-1 см составляет 22, 44, 480 Бк/кг, для глубины 1-2 см -6, 8, 86 Бк/кг, для 4-5 см — 1.2, 2 и 18 Бк/кг [12]. На западе Брянской области в районе г. Новозыбков концентрации $^{239+240}$ Ри на территории $n \times$ \times 10² км² находятся на уровне 5 Бк/кг [27].

Авария на АЭС "Фукусима", 2011, Япония. Высвобожденное количество изотопов плутония в данном инциденте было значительно меньше, чем при Чернобыльской аварии. Предполагаемый выброс 238 Ри составляет (2.9–6.9), $^{239+240}$ Ри – (1–14), 241 Ри – (1.1–2.6) ГБк, что соответствует массе около 0.71 г [3, 30]. Содержание 238 Ри в районе Футаба-маичи и Наиемичи составляют 0.065 и 1.1 Бк/кг соответственно, а $^{239+240}$ Ри в районе Наиемичи 0.5 Бк/кг [31], что уже сравнимо с уровнем глобальных выпадений.

Известные аварии на ТриМайлАйлэнд, Лабораториях Чок Ривер не привели к значимым выбросам трансурановых элементов.

Выбросы в результате деятельности предприятий топливного энергетического комплекса

Выбросы и сбросы на комплексе Селлафилд (Великобритания). В период с 1952 по 1992 г. с площадки "Селлафилд" в атмосферу было выброшено 3.7 ТБк (1.63 кг) ²³⁹Ри и 23 ТБк (6.3 г) ²⁴¹Ри. Суммарные выбросы в атмосферу были более чем на два порядка меньше, чем сбросы в Ирландское море в виде радиоактивных стоков, которые в период с 1950 по 1992 г. составили около 720 ТБк ²³⁸, ²³⁹, ²⁴⁰Ри. Количество плутония, сброшенного со сточными водами, составляет 120 ТБк (0.2 кг) для ²³⁸Ри, 620 ТБк (270 кг) для ²³⁹Ри и 22000 ТБк (5.7 кг) для ²⁴¹Ри. Масштабы загрязнения оценить сложно, однако приводится информация, что содержание ²³⁸Ри и ²³⁹ + ²⁴⁰Ри в почвах зоны влияния комплекса "Селлафилд" лежат в диапазоне 0.9—1980 и 0.6—8860 Бк/кг соответственно [32—35].

Площадка Даунри (Великобритания). Аварийные выбросы маленьких частиц топливного материала (0.2—2 мм) происходили в 1960—1970 гг. Частицы содержали продукты деления, а также трансурановые элементы.

Завод по переработке в Ла-Аг (Франция). На заводе проводился первый этап переработки облу-

ченного ядерного топлива. По оценкам до 1985 г. в Английский канал было сброшено 3 ТБк $^{238+239+240}\mathbf{P}_{11}$.

Площадка Маркуль (Франция). Переработка ядерного топлива для военных целей в Маркуле привела к значительным выбросам в реку Рона $(0.7-4)\times10^9$ Бк 238 Pu, 7×10^{10} Бк $^{239}+^{240}$ Pu в 1960-х годах и примерно $6-10^9$ Бк 239 Pu, 2×10^{10} Бк $^{239}+^{240}$ Pu в 1978-1991 гг. Содержание $^{239}+^{240}$ Pu и 238 Pu во взвешенных твердых частицах р. Рона по состоянию на 1998 г. составило 0.15 и 0.48 Бк/кг соответственно [36].

Токайский ядерный комплекс (Япония). Токайский комплекс был первым заводом в Японии по переработке отработавшего ядерного топлива. Низкорадиоактивные отходы сбрасывались в Тихий океан с 1977 г. Однако по оценкам суммарный выброс на несколько порядков меньше, чем выбросы на Селлафилде и Ла-Аге. Всего по оценкам с 1977 по 2007 г. было сброшено приблизительно 4×10^8 Бк изотопов плутония.

Комбинат Рокки Флэтс (Rocky Flats) (США). Всего за время эксплуатации завода произошло свыше 200 аварий, причем большинство с выбросом радиоактивных веществ. С 1958 по 1968 г. попадание плутония в окружающую среду происходило в результате утечки из емкостей, содержащих загрязненное плутонием отработанное масло. По расчетным данным 0.2 ТБк плутония было попало в почву по этому механизму. Активность $^{239+240}$ Ри в верхнем слое отбора проб (0—20 см) варьируется от 2220 до 11460 Бк/кг, со средней активностью 7250 Бк/кг [37].

Комплекс Хэнфорда (США). В 1943 г. территория вблизи Хэнфорда, штат Вашингтон, была выбрана для размещения производств для получения плутония для производства ядерного оружия. В результате операций в Хэнфорде образовалось огромное количество радиоактивных и химических отходов, большая часть которых содержится в 177 специальных емкостях, многие из них негерметичны. Хотя более 96% радиоактивности приходится на ¹³⁷Cs и ⁹⁰Sr, резервуары также содержат 8000 ТБк плутония. По оценкам, в могильнике, расположенном в 13 км к северу от 300 Района, содержится 5-10 кг плутония. $400~{\rm T}$ Бк 239 Ри было выброшено в виде жидких отходов в окружающую среду. Данных по содержанию изотопов плутония в почвах или других объектах окружающей среды в открытых источниках не обнаружено.

Лос-Аламосская лаборатория (США). Наиболее значительной точкой выброса был каньон Мортандад, в который были сброшены $0.01~{\rm T}$ Бк ($3~{\rm r}$) $^{239+240}$ Ри и $0.004~{\rm T}$ Бк ($6~{\rm Mr}$) 238 Ри. В 1990-х годах были предприняты значительные усилия для контроля радиоактивных сбросов в каньон Мор-

тандад. Тем не менее в результате некоторых исследований определено, что суммарное содержание плутония в воде находится в диапазоне 1.5—460 мБк/л, в донных отложениях 0.04—2.2 Бк/кг [38]. Состав и состояние мест размещения твердых отходов в Лос-Аламосской национальной лаборатории не были полностью охарактеризованы. Девять из 25 зон утилизации материала содержали общее количество плутония 1600 ТБк, из которых не менее 800 ТБк (0.2 кг) было ²⁴¹Рu. Общий запас плутония по массе является неопределенным, но известно, что он превышает 43 кг.

Национальная лаборатория Саванна Ривер (США). За 35-летний период с 1954 по 1989 г. в атмосферу было выброшено примерно 0.14 ТБк плутония, а в поверхностные воды сброшено 0.023 ТБк плутония. Содержание 238 Ри и $^{239+240}$ Ри в донных отложениях находится в диапазоне 0.003—14 Бк/кг и 0.01—52 Бк/кг соответственно [39].

Национальная лаборатория Айдахо (США). Основным местом захоронения трансурановых элементов в Национальной лаборатории Айдахо является Комплекс по обращению с радиоактивными отходами (RWMC). Всего было захоронено 21 ТБк (0.03 кг) ²³⁸Ри и 780 ТБк (340 кг) ²³⁹Ри вместе с 1800 ТБк (14 кг) ²⁴¹Ат. Образцы почвы, собранные около зоны подземного захоронения (3ПЗ), показывают, что это хранение привело к загрязнению трансурановыми элементами за пределами периметра ЗПЗ. Максимальные концентрации в поверхностных почвах (0—4 см) имели место в дренажной впадине вблизи периметра и составляли 51 Бк/м² ²³⁹Ри и 1184 Бк/м² ²³⁸Ри [40].

"Маяк" Производственная площадка (Озерск (Челябинск-65), Россия). Основными источниками загрязнения плутонием окружающей среды в зоне влияния ПО "Маяк" являются: аварийные ситуации 1957 г. (взрыв емкости с радиоактивными отходами, что обусловило образование Восточно-Уральского радиоактивного следа) и 1967 г. (ветровой разнос активности с берегов оз. Карачай); регламентные технологические выбросы плутония в атмосферу из труб действующих производств объединения и сбросы в водные объекты; ветровой подъем плутония с участков загрязненной территории промышленной площадки и санитарно-защитной зоны предприятия, а также головной части Восточно-Уральского радиоактивного следа (ВУРС).

Плотность загрязнения почвы плутонием на большей части территории вокруг промышленной зоны составляет от 0.003 до 0.022 Ки/км². (1.2—10 Бк/кг). Повышенные уровни загрязнения от 0.022 до 0.22 Ки/км² (10—100 Бк/кг) наблюдаются на территории, прилегающей к санитарнозащитной зоне (C33), подвергшейся загрязнению в 1957 и 1967 г. Данные разных исследований загрязненности территории зоны влияния Π О

"Маяк" плутонием существенно отличаются. Наблюдаемые расхождения, вероятно, обусловлены тем, что распределение плутония в зоне влияния ПО "Маяк" весьма неравномерное и носит пятнистый характер. При этом реальная зона распространения радиоизотопов плутония вокруг ПО "Маяк" превышает 100 км. Например, в зоне 40–100 км обнаружены участки с концентрацией 238 + 239 + 240 Ри с концентрацией $^{0.5}$ —12 Бк/кг. При этом доля изотопа 238 Ри составляет от 40 до 80%.

Плотности загрязнения почв $^{239+240}$ Ри для центральной части ВУРСа превышают или близки к уровню $0.1~{\rm Ku/km^2}$ (45 Бк/кг), по оси ВУРСа на расстояниях $20-60~{\rm km}$ обнаруживаются концентрации $15-150~{\rm Бк/kr}$. На Карачаевском следе повышенные плотности загрязнения почв плутонием от $20-200~{\rm Бк/kr}$ фиксируются в городе Новогорный и ареале землепользования поселка Худайбердинский [41].

Горно-химический комбинат (Железногорск (Красноярск-26), Россия). Точных данных по объемам выброса изотопов плутония в открытых источниках нет. 1 ТБк (с поправкой на распад до 1995 г.) ^{239 + 240 + 241} Ри было сброшено в р. Енисей. Наиболее загрязненными плутонием являются пойменные почвы и донные отложения Енисея зоны влияния ГХК, которая тянется до 1500 км вниз по течению реки от г. Железногорска. Здесь при средней удельной активности плутония 5.4 \pm $\pm\,0.8$ Бк/кг в отдельных пробах зафиксированы значения, достигающие 50 Бк/кг (в аллювиальных почвах острова "Городской" вблизи г. Енисейска) (диапазон варьирования от 0.1 до 50 Бк/кг) [42].

Сибирский химический комбинат (Северск (Томск-7), Россия). Сибирский химический комбинат (СХК), расположенный в г. Северск в 25 км от г. Томска, был крупнейшим в бывшем Советском Союзе предприятием по производству и переработке оружейного плутония. СХК начал функционировать в 1948 г. Комплекс производств включал в себя реакторы, несколько установок по переработке и обогащению, хранилища и участок глубокой закачки радиоактивных отходов.

На СХК произошло более 20 аварий, которые привели к значительным выбросам радиоактивности в окружающую среду [3]. Однако информация о масштабах загрязнения плутонием ограничена, поэтому оценки концентраций плутония в объектах окружающей среды весьма неопределенны. Выбросы и сбросы плутония СХК включают (но, вероятно, не ограничиваются ими) следующее:

- сбросы непосредственно в р. Томь отходов реактора по производству плутония, работавший с 1955 по 1990 г. Общий выброс $^{239+240+241}$ Ри оценивается величиной 0.74 ТБк;

— авария в резервуаре для хранения, содержащем радиоактивные растворы в апреле 1993 г. В результате взрыва были заражены десятки квадратных километров. По оценкам было выброшено 2.8 г плутония, при этом максимальное загрязнение почвы плутонием составило 17 Бк/кг.

Опубликованы данные об относительно высоких концентрациях актинидов (до 75 Бк/кг ^{239 + 240}Pu) в почве, собранной на берегу канала Ромашка, в который исторически сбрасывались отходы СХК [43].

Аварийные ситуации с ядерными боеголовками, радионуклидными источниками энергии

США, остров Джонстон. 7 июня 1960 г. на военно-воздушной базе Макгуайр произошел пожар. Мероприятия по тушению пожара и погодные условия во время пожара привели к выбросу частиц плутония, которые распространились на площадь около 28000 м². Концентрация плутония во фракции почвы 75—147 мкм достигала 6340 Бк/кг, что на четыре порядка выше уровня глобальных выпадений.

Паломарес (Испания). В январе 1966 г. бомбардировщик В-52 и танкер-заправщик КС-135 столкнулись во время заправки на большой высоте над Средиземным морем в районе деревни Паломарес, Испания. Две бомбы взорвались после падения на землю. В результате вещество заряда, плутоний и уран, были диспергированы и рассеялись на площади около 2 км². Было проведено изъятие наиболее загрязненного грунта, оставшееся количество плутония оценивается величиной 0.1 ТБк (0.04 кг) ^{239 + 240} Ри. Максимальные концентрации ^{239 + 240} Ри в почве наблюдаются на границе деревни Паломарес, достигая 700 Бк/кг [44].

Туле (Гренландия/Дания). 21 января 1968 г. американский бомбардировщик, несущий четыре плутониевые бомбы, загорелся и упал в покрытое льдом море в 11 км от авиабазы Туле в Гренландии. В результате химического взрыва около 6 кг плутония ($^{\sim}10^{13}$ Бк) было рассеяно на площади нескольких квадратных километров. Основная часть плутония была удалена путем механического сбора обломков боеприпасов [3]. По оценкам, остаточное загрязнение составляет около 1.4—6 ТБк ($^{\sim}0.53-2.3$ кг) для 239 Pu. В августе 1997 г. концентрация $^{239}+^{240}$ Pu в морской воде у северо-западного побережья Гренландии находилась в диапазоне $^{\sim}2.4-18$ мБк/м 3 со средним значением $^{\sim}5.5$ мБк/м 3 [45].

Россия: Подводная лодка Комсомолец К—278. 7 апреля 1989 г. российская атомная подводная лодка "Комсомолец" затонула в Норвежском море на глубине 1655 м вследствие пожара двигателя. По оценкам на лодке находится 13 ТБк (5.7 кг)

²³⁹Ри и 3.0 ТБк (0.36 кг) ²⁴⁰Ри в виде двух оружейных торпед, и еще 2.2 кг плутония в реакторе. В марте 2007 г. российской экспедицией фиксировалась утечка радионуклидов [46].

Россия: подводная лодка K—159. В рамках программы снятия с эксплуатации подводная лодка K—159 с двумя ядерными реакторами была перевезена из Гремихи на верфь Нерпа в Мурманске в 2003 г. На пути из Гремихи K-159 затонула на глубине 246 м к северу от Мурманска, из-за тяжелого шторма. Совместная норвежско-российская экспедиция на K—159 в 2014 г. сообщила, что утечек пока не наблюдалось.

Всего с 1955 по 2019 г. затонуло 8 атомных субмарин: 4 советских, 2 российских, 2 американских. Все они погибли в результате различных аварий. Лодка К—141 "Курск" в 2001 г. была поднята, остальные семь кораблей находятся на дне в разной степени сохранности на глубине от 33 до 5500 м в северной и центральной Атлантике, Бискайском заливе, Карском, Норвежском, Баренцевом морях. Информации о количестве плутония на данных объектах нет.

Разрушение спутника СНАП—9А. 21 апреля 1964 г. навигационный спутник, несущий 630 ТБк (1 кг) ²³⁸Ри, не смог стабилизироваться на орбите Земли и вновь вошел в атмосферу над Индийским океаном в Южном полушарии. Выброс плутония был впервые обнаружен через 4 мес. на высоте 30 км. В конце 1970 г. было подсчитано, что только 23 ТБк остались в атмосфере на высоте >12 км; основное количество плутония выпало на поверхность земли в виде твердых частиц размером от 5 до 58 мкм. Выпавший ²³⁸Ри привел к почти 3-кратному увеличению уровня глобальных выпадений по этому изотопу, особенно в Южном полушарии [3].

ГЛОБАЛЬНЫЕ ВЫПАДЕНИЯ

Как описывалось выше, природные источники плутония на Земле отсутствуют и находящийся в окружающей среде плутоний имеет практически только техногенное происхождение, связанное с испытанием ядерного оружия, ядерными и радиационными авариями, выбросами и сбросами предприятий ядерно-топливных циклов. При этом большая часть глобальных выпадений плутония (~99%) находится в почве и донных отложениях [4].

Изучению уровней глобального выпадения изотопов плутония посвящено множество работ [47—71]. Наиболее масштабной работой по оценке глобального распределения плутония, образовавшегося в результате испытаний ядерного оружия, является работа, проведенная в 1970—1971 гг. Лабораторией экологических измерений Министерства энергетики США, совместно с учеными

Таблица 2. Уровень глобальных выпадений ^{239 + 240}Pu [47—71] **Table 2.** The fallout of ^{239 + 240}Pu [47—71]

Table 2. The labout of Ta [m /1]							
Страна	Содержание ^{239 + 240} Pu, Бк/м ²		Лит. источник	Страна	Содержание $^{239+240}$ Pu, $5\kappa/m^2$		Лит. источник
	Диапазон	Среднее			Диапазон	Среднее	in the second se
Австралия	11-28	19	[47, 48]	Коста-Рика	_	35	[61]
Ангола	_	3.4	[47]	Мадагаскар	9.0 - 52	19	[62]
Бразилия	_	20	[47]	Мозамбик	0.60 - 7.0	4.0	[47, 63]
Великобритания	_	47	[47]	Новая Зеландия	_	17	[47]
Венесуэла	_	8.9	[47]	Норвегия	0.7 - 150	35	[47, 54, 64]
Германия	55-100	78	[47, 49]	Пакистан	_	59	[47]
Гренландия	_	23	[47]	Перу	_	4.4	[47]
Дания	44-81	54	[47, 50, 51, 54]	Португалия	_	56	[47]
Зимбабве	_	5.6	[47]	США	14-82	45	[47, 52, 54]
Индонезия	1.3-1.6	1.4	[53]	Финляндия	1.76-408	58	[65, 66]
Исландия	56-79	64	[47, 54]	Франция	49-350	130	[67, 68]
Италия	93-110	100	[47, 55]	Чили	1.20-7.5	4.0	[47, 63]
Катар	22-170	80	[56]	Черногория	9.6-87	270	[69]
Китай	4.4-460	97	[57, 58]	Шотландия	7.4-56	32	[70]
Кения	_	19	[47]	Эквадор	_	6.7	[47]
Колумбия	_	4.8	[47]	Южная Африка	1.4-11	6.0	[47, 63]
Корея	14-150	45	[59, 60]	Япония	23-63	43	[71]

со всего мира [47]. Другие работы, как правило, описывают отдельные, локальные районы. Кроме того, данные об уровне глобальных выпадений в литературных источниках представлены в разном виде в силу применения авторами разных единиц измерения, отбора проб почвы с разных глубин, разных технологий пробоотбора и т.д.

С целью обобщения информации об уровнях глобальных выпадений для работ, данные которых представлены в Бк/кг, произведен пересчет в Бк/м 2 с использованием средней плотности почвы $1.6~\rm r/cm^3$. Для данных с содержанием изотопов $^{239+240}$ Ри ниже предела обнаружения использовано значение предела обнаружения как истинная концентрация с целью недопущения существенного занижения результатов. Средние значения получены как среднее арифметическое по всем данным.

Результаты анализа литературных данных по уровням глобальных выпадений представлены в табл. 2.

Из данных таблицы видно, что в целом по миру уровень глобального выпадения $^{239+240}$ Ри составляет $n \times 10^1$ Бк/м². Учитывая, что >95% запаса плутония в почвенном покрове сосредоточено до глубины 20 см, то уровень глобальных выпадений $^{239+240}$ Ри с пересчетом на глубину отбора 0—20 см составит $n \times 10^{-1}$ Бк/кг. При этом в северном полу-

шарии уровень глобальных выпадений $^{239+240}$ Pu выше, чем для южного полушария [47].

ИЗОТОПЫ ПЛУТОНИЯ В РАЗЛИЧНЫХ СРЕДАХ И ОБЪЕКТАХ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ

Изотопы плутония в почвах

Поступая на земную поверхность, плутоний аналогично другим искусственным радионуклидам вступает в различные взаимодействия с почвенным раствором, почвенными частицами, окисляется и восстанавливается, мигрирует по почвенному профилю, что в результате приводит к специфическому характеру его форм нахождения в почве, его вертикального распределения и т.д., знания о которых важны для оценки радиоэкологического состояния объектов.

Формы нахождения плутония в почве

Химическая форма изотопов плутония существенно влияет на его миграционную способность, поскольку от формы связи плутония с почвенными частицами зависит его количество, способное перейти в почвенный раствор, что определяет долю, которая может включаться в трофические цепи. Как правило, выделяют сле-

дующие формы нахождения металлов в почве [72-74]:

- водорастворимая форма водорастворимые соли;
- обменная форма соединения, сорбированные почвой по механизму ионного обмена;
- органическая форма соединения, связанные с органической частью почвы;
- подвижная форма карбонаты, непрочно сорбированные окислы, глинистые минералы, фульваты, труднообменные ионы;
- прочносвязанная форма в составе труднорастворимых оксидов, прочно связанные ионы, адсорбированные по типу изоморфного замещения в кристаллических решетках.

В донных отложениях из Паломареса и Туле большая часть ^{239 + 240}Ри находилась в прочносвязанной форме (96—98%). Для донных отложений Ирландского моря наблюдается большая разница в органической и прочносвязанной формах: в одном случае наблюдается преобладание плутония в прочносвязанной форме (69%), в другом — высокая доля в органической (83%) фракции. Авторы связывают данное с расхождение с возможным нахождением плутония в составе "горячих" частиц [75].

В образцах почв поселка Феофания, расположенного в зоне Чернобыльских выпадений, высокая доля плутония наблюдалась в прочносвязанной (45-60%) и органической (30-40%) формах [75]. Доля прочносвязанного плутония в почвах Чернобыля находится на высоком уровне и составляет >85% [69, 76-78]. Однако встречаются разрезы почв с преобладанием миграционно-способного ²³⁸Pu, за счет подвижных форм, которые достигают 76% при практически полном отсутствии водорастворимых и обменных форм [79]. Различия в соотношениях форм нахождения радионуклидов плутония и, в целом, сравнительно большая миграционная способность 238 Ри могут быть вызваны, по мнению авторов, более интенсивным разрушающим влиянием его высокой радиоактивности на структуру силикатных частиц-носителей остаточного вещества ядерного заряда.

Для почв Семипалатинского испытательного полигона наблюдается небольшое различие в содержании органических форм в зоне "следов" и фоновых территорий "юго-восточной части" [80–83]. Например, в зоне "следа" от термоядерного испытания содержание органически связанной формы ^{239 + 240}Ри в среднем составляет 0.7%, а для "фоновой" территории более чем в 2 раза больше — 1.6% [81]. Кроме того, отмечается повышенное содержание обменной формы ^{239 + 240}Ри на условно "фоновых" территориях СИП и на площадке "Дегелен" [82]. В целом для террито-

рии СИП изотопы плутония в почвах находятся преимущественно в прочносвязанной форме (>85-100%).

Таким образом, в большинстве работ [75–88] наблюдается следующее распределение по формам нахождения плутония в почвах: водорастворимая форма — <4%; обменная форма — 0.5-14%; органическая форма — 1.1-22%; подвижная форма — 0.7-6%; прочносвязанная форма — >58-100%.

Однако такое распределение не наблюдается для района Камбрии, расположенного в зоне влияния завода Селлафилд, Великобритания, где независимо от типа почвы наблюдается следующий порядок: органическая (53-68%) > прочносвязанная (25-48%) > подвижная (1.5-4,5%) > обменная (0.4-2%) [89].

На формы нахождения плутония в почвах и их относительное количество существенную роль оказывает тип почвы. Например, по содержанию мобильных форм плутония почвы могут быть расположены в следующий ряд: дерново-подзолистые > песчаные > дерновые > торфяно-болотные [77, 90]. Количество плутония в составе гумусовых и низкомолекулярных кислот увеличивается в ряду: дерново-подзолистая < серая лесная < чернозем выщелоченный (от 31 до 54%) [90].

В работе [91] исследованы формы нахождения плутония для загрязненных в лабораторных условиях различных типов почв. Супесчаная почва была отобрана на Кирово-Чепецком полигоне, дерново-подзолистая – в Московской области, чернозем – в Курском природном заповеднике. Авторы отмечают, что значительное количество $(20.1\% \, ^{239}$ Pu) плутония в супесчаной почве найдено в водорастворимой и обменной формах. Однако в водорастворимой и обменной формах чернозема его содержание было меньше (5.8% ²³⁹Pu). что объясняется более высоким содержанием органического вещества в черноземе. При этом в дерново-подзолистой почве плутоний равномерно распределен по фракциям гуминовых кислот, а в черноземе 44.6% плутония связано с относительно подвижными гумусовыми кислотами.

Плутоний в составе "горячих частиц"

Учитывая механизмы поступления плутония в окружающую среду, например взрывы, в результате которых происходит диспергирование вещества, содержащего плутоний, или аварийные ситуации на станциях, когда происходит испарение плутоний-содержащих веществ с последующей конденсацией с образованием твердых частиц различного состава и размера, плутоний может находиться и в составе "горячих" частиц [92, 93]. Под "горячими" частицами понимаются частицы размером от десятков микрон до единиц миллиметров, имеющие уровень радиоактивности су-

щественно более высокий, чем в среднем по материалу, в который они включены.

Значительная часть искусственной радиоактивности и особенно плутония на СИП, особенно в эпицентрах ядерных взрывов, содержится в радиоактивных ("горячих") частицах [94, 95]. Полученные результаты свидетельствуют о наличии четырех принципиально различных типов "горячих" частии:

- сферические частицы с обычно блестящей глазурованной поверхностью. Детальное исследование показало внутреннюю пористую структуру и поверхностные слои, обогащенные трансурановыми элементами. Такие частицы часто наблюдаются в эпицентрах взрывов и образуются при плавлении горных пород с последующей кристаллизацией и одновременной сорбцией радионуклидов, в некоторых случаях конденсацией и кристаллизацией из газовой фазы;
- остеклованные частицы нерегулярной формы, являющиеся микроостатками разрушенных ядерных устройств, иногда вплавленные в исходные практически неизмененные почвенные частицы;
- частицы почвы с визуально неизмененной структурой, с микронными включениями актинидов, в частности Pu, что было подтверждено исследованием микроструктуры таких частиц. Чаще всего такие частицы встречаются в эпицентрах ядерных испытаний;
- частицы с аморфной структурой, обнаруженные в донных отложениях ручьев, вытекающих из штолен массива Дегелен. Активность этих частиц может на порядки превышать радиоактивность почвенной матрицы, их содержащих. Анализ формы, химического и изотопного состава таких частиц приводит к выводу, что эти частицы могли образоваться в результате процессов вторичного минералообразования. Скорее всего, речь идет о сорбции и совместном осаждении трансурановых элементов с оксидами и гидроксидами железа и марганца.

В распределении "горячих" частиц в почвах поселков Масаны, Бабчино и Брагино (Республика Беларусь) по глубине наблюдается незначительная вертикальная миграция "горячих" частиц в результате их механического перераспределения в пределах 10—15 см от поверхности почвы [90]. В более глубоких слоях "горячие" частицы в почвах любого типа, начиная с 1991 г., не обнаруживались.

Для почв 30-километровой Чернобыльской зоны в 1987—1988 гг. плутоний был в основном представлен в труднорастворимой форме в составе "горячих" частиц (>79%), однако в ряде случаев изотопы плутония были представлены в подвижной форме (до 73%) [96].

Вертикальное распределение плутония в почве

Исследованию распределения изотопов плутония в вертикальных разрезах почвогрунтов посвящен ряд работ [78, 79, 85, 97–101].

В распределении плутония по глубине в почвах Черногории максимальное содержание плутония (\sim 44%) приходится на верхний горизонт 0–5 см [79]. С дальнейшим увеличением глубины наблюдается снижение содержания плутония. Так, для глубин 5–10 см среднее содержание составило \sim 31%, а для 10-15 см — около 25% от общего содержания.

В вертикальных разрезах почвогрунтов Семипалатинского испытательного полигона в основном максимум (~95% от общего содержания) плутония находятся в 5-сантиметровом слое почвы [97]. Однако в солонцах иногда отмечалось максимальное значение (~80% от общего содержания) в слое 10—15 см. Авторы полагают, что такое нетипичное распределение можно объяснить наличием трещин на суглинистой поверхности почвы, когда в результате водной инфильтрации радионуклиды могут перемещаться в нижние слои.

Результаты анализа почв четырех участков г. Канберра, Австралия, показали, что содержание $^{239+240}$ Ри в слое 0-5 и 5-10 см практически одинаково и в среднем составляет 38 и 32% от общей активности [98]. Такое распределение авторы связывают с эрозионными процессами в данном регионе.

На рис. 1 представлена кривая вертикального распределения плутония в почвах, полученная на основании обобщения литературных данных [78, 79, 85, 97—101]. Все данные пересчитывались в единую размерность — Бк/кг с использованием средней плотности почвы 1.6 г/см³. Для данных с содержанием изотопов ^{239 + 240}Ри ниже предела обнаружения использовано значение предела обнаружения, как истинная концентрация, с целью недопущения существенного занижения результатов. В среднем наблюдается плавное убывание изотопов плутония с глубиной, при этом ~95% плутония содержится в слое 0—20 см (рис. 1).

Стоит отметить, что вышеприведенная закономерность наблюдается не всегда. Например, в почвах Ланьчжоу, столицы провинции Ганьсу, Китай, в 1200 км к востоку от ядерного полигона Лобнор, содержание $^{239+240}$ Ри было низким (<0.05 Бк/кг) в поверхностных слоях (0–5 см). С увеличением глубины наблюдалось увеличение его содержания, достигая максимума (0.23 Бк/кг) на глубине 13 см [99].

Исследования, проведенные на территории ВУРСа, по влиянию типа почв и их генетического строения на распределение плутония в отдельных почвенных профилях [102] показали, что в выще-

лоченном горизонте лесного и лугового биоценозов плутоний задерживается в подстилке и дернине. Его концентрация вниз по профилю изменяется более плавно, чем в лугово-черноземной и, особенно, серой лесной почве под березовым лесом паркового типа. В последней четко проявляются вынос из элювиального горизонта и накопление в гумусовом и иллювиальном горизонтах. В лугово-черноземной почве наряду с более "размытым" характером распределения плутония в профиле также наблюдается увеличение содержания в нижней части перегнойного горизонта, обусловленное неровной границей перехода в нижележащий иллювиальный горизонт. В этой же почве плутоний обнаружен на глубине 45 см (0.3 Бк/кг), что авторы объясняют ее гидроморфностью и повышенным содержанием карбонатов.

Распределение изотопов плутония по гранулометрическим фракциям почвы

Важным параметром, определяющим миграционные способности плутония в результате ветровой эрозии, вертикального и латерального перераспределения, является его распределение по гранулометрическим фракциям почв. Особое внимание имеют фракции ≤10 мкм, удельная активность которых формирует величину концентрации плутония в воздухе над загрязненными территориями. Такие частицы подвержены конвективному подъему и характеризуются большим временем пребывания в воздухе из-за малых скоростей осаждения, а потому – и ветровому переносу на большие расстояния с охватом гораздо более обширных территорий [103]. Помимо этого, данные частицы в наибольшей степени определяют ингаляционную дозу от изотопов плутония в человеческом организме.

В исследовании [33] сделана попытка оценить влияние содержания глины в ненарушенной поверхности почвы (0—4 см) в Корее на концентрацию плутония в различных гранулометрических фракциях (0—1400 мкм). Концентрации ^{239 + 240}Ри в отобранных образцах находились в пределах 0.24—55.6 Бк/кг. Четкого результата о зависимости распределения изотопов плутония по гранулометрическим фракциям от содержания глины в почве не было получено. Кроме того, в рассматриваемых образцах почвы не наблюдается пиковых значений в рассматриваемых диапазонах.

На рис. 2 в виде гистограммы представлены коэффициенты обогащения (K_0), определяемые как отношение удельной активности радионуклида в гранулометрической фракции к удельной активности в соответствующей исходной почве [106], для почв, отобранных на разном расстоянии от Чернобыля [107].

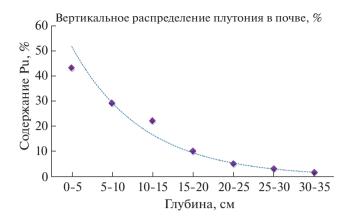


Рис. 1. Вертикальное распределение плутония в почве по глубине.

Fig. 1. Vertical distribution of plutonium in soil.

Из гистограммы рис. 2 видно, что более высокие коэффициенты обогащения наблюдаются во фракциях 5-50 мкм. Для почв RockyFlats наиболее высокие коэффициенты обогащения наблюдаются в мелких фракциях (0-75 мкм), а с увеличением размера частиц наблюдается уменьшение концентрации плутония [108].

Комплекс работ был посвящен исследованию распределения искусственных радионуклидов в почвах бывшего СИП. Были исследованы как участки со значительным радиоактивным загрязнением (эпицентры наземных взрывов, следы радиоактивных выпадений, места проведения экскавационных взрывов и т.д.), так и фоновые территории СИП [81, 106, 109]. Исследовались фракции в диапазоне <1 мкм — 1000 мкм.

Отмечается, что для эпицентров ядерных взрывов обогащенными по Ри являются крупные фракции >100 мкм. На следах радиоактивных выпадений часто проявляется какая-либо одна фракция с коэффициентом обогащения до 5-6, например, для следа от термоядерного взрыва 12.08.1953 г. фракция 250-500 мкм, для следа от наземного ядерного испытания, проведенного 24.09.1951 года, — 40—5 мкм. Распределение радионуклидов по гранулометрическим фракциям почвы на всех исследованных условно "фоновых" участках СИП, составляющих около 90% от общей его территории, достаточно равномерно, но имеет некоторую тенденцию возрастания концентрации плутония в тонких почвенных фракциях (<100 мкм), достигая значений коэффициента обогащения 3-4 во фракции <1 мкм [82].

Несмотря на разный характер распределения изотопов плутония по гранулометрическому составу для различных объектов СИП, можно сделать ряд важных выводов. Во-первых, отсутствуют фракции с аномальным накоплением плутония, коэффициенты обогащения даже для фракций с

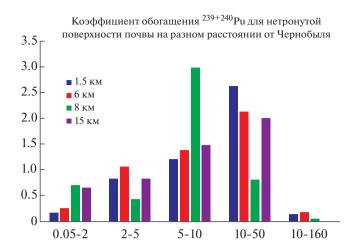


Рис. 2. Коэффициент обогащения ^{239 + 240} Ри для нетронутой поверхности почвы на разном расстоянии от Чернобыля.

Fig. 2. Enrichment factor ^{239 + 240}Pu for an intact soil surface at different distances from Chernobyl.

повышенным содержанием плутония не превышают 5-6.

Основным фактором, определяющим настоящее распределение плутония по гранулометрическим фракциям, является первичное распределение, возникшее в результате проведенного испытания. Однако вторичные процессы выветривания, процессы поглощения (сорбция) и обратного перехода в раствор (десорбции) в почве приводят к перераспределению плутония, при этом концентрация плутония во фракциях возрастает пропорционально их удельным поверхностям. Такая тенденция наиболее характера для "фоновых" территорий.

ИЗОТОПЫ ПЛУТОНИЯ В ВОДЕ

Содержание плутония в водных объектах

Распространение радионуклидов и, в частности, плутония в окружающей среде на большие расстояния происходит главным образом водным путем — со стоками рек, протекающих по загрязненным территориям, с морскими течениями и грунтовым водами, находящимися в контакте с загрязненными почвами.

Основными глобальными источниками радионуклидов в морской среде являются выпадения вследствие ядерных испытаний. Фоновые концентрации плутония в водных объектах находятся на уровне $n \times 10^0 - n \times 10^1$ мБк/м³. Например, для вод мирового океана средняя концентрация плутония оценивается в 8.8 мБк/м³ [110]. Диапазон концентраций $^{239+240}$ Ри в водах Тихого океана составляет 0.6-25 мБк/м³, для вод Атлантического океана -0.016-13 мБк/м³ [110–115], в водах

Индийского океана содержание плутония варырует в пределах от 1 до 3 мБк/м³ [110]. Воды Северного Ледовитого океана включают в себя воды загрязненных плутонием акваторий, что затрудняет оценку фоновых концентраций для этого океана. Диапазон фоновых концентраций плутония в арктических водах оценивается в 0.016—13 мБк/м³ [116]. Среднее содержание ^{239 + 240}Pu в акваториях показано на рис. 3.

В некоторых акваториях концентрация изотопов плутония зависит от сбросов перерабатывающих предприятий, расположенных в непосредственной близости от них. Например, данные по сезонным колебаниям концентраций в р. Саванна (в районе завода Саванна Ривер, округ Барнуэлл, Южная Каролина, США) показывают, что максимальные концентрации (~320 мБк/м³) за период 1983—1984 гг. наблюдались в феврале, а минимальные (~23 мБк/м³) в августе. За период с 1975—1976 гг. максимальные концентрации наблюдались в июле (~280 мБк/м³) и феврале (~260 мБк/м³), а минимальные в августе (~71 мБк/м³) [131].

В водах Ирландского моря, на побережье которого расположен атомный комплекс Селлафилд, диапазон содержания $^{239+240}$ Pu составляет 69—11000 мБк/м³ [110, 132], а в устье р. Эск, расположенного недалеко от завода, 50-24000 мБк/м³ [133, 134].

Формы нахождения плутония в воде

При анализе форм нахождения плутония в воде, как правило, выделяют три основные формы: взвешенные, коллоидно-дисперсные и истинно растворенные.

Растворенный плутоний существует в морской воле в пяти возможных состояниях окисления: Ри (III), Pu (IV), Pu (V), Pu (VI) [135]. Во многих соединения плутония проявляют себя как трехвалентный Pu (III), который относительно стабилен в растворах со средней кислотностью. При рН ~ 7 появляются первые небольшие количества продукта гидролиза $Pu(OH)^{2+}$. Считается, что пятивалентный плутоний Pu (V) в водных растворах существует только в виде оксииона PuO₂⁺. Обычно в растворах умеренной кислотности Pu (V) быстро диспропорционирует, образуя Pu (VI) и Pu (IV). Шестивалентный плутоний Pu (VI) относительно стабилен в водном растворе и существует в виде оксиионного плутонила PuO_2^{2+} [136, 137]. По данным исследований [138-141] в водах, обогащенных кислородом, плутоний в основном встречается в виде Pu (IV) и Pu (V).

Возможность применения плутония в разных валентных состояниях в качестве индикатора в процессах водообмена между фьордами Хеллвик

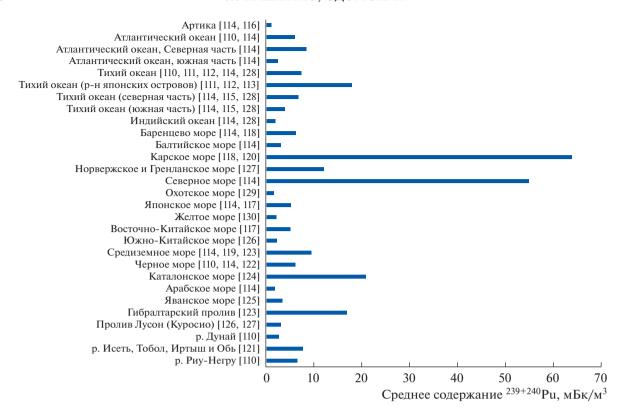


Рис. 3. Среднее содержание $^{239+240}$ Ри в водных акваториях [110–130]. **Fig. 3.** Average content of $^{239+240}$ Ри in water areas [110–130].

и Фрамварен пролива Скагеррак показана в работе [142]. Поступивший в воды Хелвика плутоний, полученный на европейских заводах по переработке ядерного топлива, находится в основном (\sim 73%) в окисленном состоянии (V–VI). В то время как в водах Фрамварена на долю Pu (III–IV) приходится \sim 53%.

Коллоид плутония может образовываться в различных условиях, особенно при высоких концентрациях плутония и концентрациях ионов водорода менее $0.5\,$ моль/л. Частицы коллоидного плутония различаются по весу и размеру, молекулярная масса по разным оценкам оценивается от $n\times 10^3\,$ до $n\times 10^{10}\,$ а. е. м. Такой разброс по величине объясняется крайней неоднородностью и изменчивостью коллоидной системы [143]. Коллоидные системы состоят из твердой дисперсной фазы, размером частиц $0.01-0.1\,$ мкм, распределенной в водной среде [147]. Взвешенная форма представляет собой распределенные в виде суспензии твердые частицы размером свыше $0.45\,$ мкм $144-1461.\,$

В водах Семипалатинского испытательного полигона плутоний присутствует в водах во всех изучаемых формах, как правило, с преобладанием коллоидных и растворенных форм [148, 149]. В зависимости от источника доля взвешенных форм колеблется от 27 до 52.4%, ассоциирован-

ных с коллоидными веществами — от 13% до более >80%, растворенных форм — от 13 до 59%.

Результаты исследования распределения плутония во взвешенных частицах в прибрежных водах Средиземного моря Испании, показывают, что плутоний в виде взвешенных частиц составляет в среднем $2\pm4\%$ от общей концентрации в морской воде [150, 161].

В образцах воды из района Бикини атолла 40% плутония содержится во фракции взвешенных частиц, собранных на фильтрах 0.3 мкм [162]. В воде Ирландского моря на долю фракции взвешенных частиц приходится от 2 до 60% плутония [153—155].

Данные по анализу форм нахождения плутония по глубине показали, что около 70% плутония в поверхностной воде (5 м) находилось в восстановленной форме, в то время как на глубине 50—90 м преобладала окисленная форма, однако ниже 95 м практически весь плутоний переходил в восстановленную форму [156, 157]. При этом плутоний в растворе находился преимущественно как Pu (VI), а на частицах — как Pu (III) и Pu (IV). Авторы считают, что окислительно-восстановительный потенциал среды может изменять соотношение плутония в растворе, что влияет на его миграцию в водных слоях, а именно, определяет его переход во взвешенную форму, которая спо-

собствовала более высокой скорости его переноса в глубинные слои воды и, в конечном итоге, в лонные отложения.

Распределение изотопов плутония по глубине

Характер распределения плутония в глубинных водах связан как с условиями, путями и интенсивностью его поступления, так и с физикохимическими свойствами водной среды.

В Восточном и Японском морях максимум $^{239+240}$ Ри наблюдается на средней глубине [117]. В водах Баренцева и Карского морей наблюдается увеличение концентрации плутония с глубиной от \sim 3.5 мБк/м³ на глубине 0—10 м до 16 мБк/м³ на глубине 323 м. Однако увеличение концентрации носит неравномерный характер [118]. Профиль концентраций $^{239+240}$ Ри (0—1000 м) Каталонского побережья Балеарского моря показывает, что концентрация $^{239+240}$ Ри на глубине ниже 100 м (21—26 мБк/м³) были примерно вдвое выше, чем концентрации в верхнем слое (\sim 14 мБк/м³) [124].

Уровень плутония в верхнем 20 м слое воды фьорда Фрамварен и во всей толще воды фьорда Хеллвик схожи и составляют 5.4—11.7 мБк/м³. Однако концентрация плутония в фьорде Фрамварена увеличивается с глубиной, достигая 410 мБк/м³ на глубине 175 м [144].

Таким образом, в большинстве работ по изучению распределения изотопов плутония по глубине для акваторий прослеживается тенденция увеличения его концентрации с глубиной.

СОДЕРЖАНИЕ ПЛУТОНИЯ В ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЯХ

Как было описано выше, природная вода имеет тенденцию к самоочищению, вследствие предрасположенности изотопов плутония формированию нерастворимых комплексов и последующему их осаждению в донных слоях.

Содержание $^{239+240}$ Pu в донных отложениях представлено на рис. 4.

Переход плутония в системе "почва-растение"

В мировой практике исследований по изучению процессов перехода искусственных радионуклидов в системе "почва—растения" известно достаточно много. Однако, в основном, исследования посвящены переходам таких "традиционных" изотопов, как ¹³⁷Сs и ⁹⁰Sr, и гораздо меньшее количество исследований посвящено переходам изотопов плутония. Все значимые результаты мировых исследований по переходу радионуклидов из почвы в растения были обобщены группой экспертов МАГАТЭ и представлены в специаль-

ной публикации [173]. Приведенные коэффициенты накопления (*K*н) для плутония МАГАТЭ отличаются высокой вариативностью значений (до 4 порядков) и определены для объединенных групп различных видов растений, в различных почвенно-климатических условиях.

Обширные исследования были по исследованию накопления изотопов плутония дикорастущими и сельскохозяйственными растениями проведены на территории СИП [174—176]. Исследования проводились в естественных условиях, на участках с высоких содержанием плутония (до $n \times 10^4~{\rm Kkr}$), что позволяет предположить, что аналитическая ошибка при проведении данных исследований сведена к минимуму. Часть результатов по Kн плутония представлена в табл. 3.

Прежде всего, необходимо отметить очень высокую разницу в накоплении плутония разными органами растений, достигающую двух порядков (например, плоды и листья перца). Сопоставимые результаты по различию накопления плутония различными органами растений получены в [176] для моркови, капусты и ячменя. В целом на СИП получены более высокие *К*н, что, возможно, связано с составом почв СИП и его климатическими условиями.

В работе [177] представлены результаты масштабной работы по исследованию вариативности коэффициентов накопления 239 + 240 Ри и их зависимости от источников его поступления для ковыля (Stipacapillata) на территории СИП. Было установлено что в пределах одного исследуемого участка различие в Кн достигало 3 порядков. Наиболее высокие средние значения, достигающие значений $n \times 10^{0}$, были выявлены на участках испытания боевых радиоактивных веществ, минимальные значения для мест проведения наземных ядерных взрывов ($K_H - n \times 10^{-3}$). Фактически этим исследованием было показано существенное влияние на Кн индивидуальных особенностей растений и форм нахождения изотопов плутония в почвах. Высокая вариативность Kн для риса продемонстрирована в работе [178], которые составили 4.5×10^{-6} — 1.2×10^{-4} при выращивании в разных префектурах Японии.

О возможных высоких коэффициентах перехода $^{239+240}$ Ри свидетельствуют и данные, приведенные в [66, 179]. Для коврообразующих лишайников (*sp. Cladonia*) Финляндии *К*н для $^{239+240}$ Ри составил 0.2—0.9, а в коре ели европейской (*Piceaabies* (L.) *Karst.*), собранной на различных участках в Чешской Республике, средняя концентрация $^{239+240}$ Ри составила 0.21 Бк/кг, при этом ожидаемый уровень концентраций $^{239+240}$ Ри в почве на исследуемых участках должен составлять $n \times 10^{-1}$ Бк/кг.

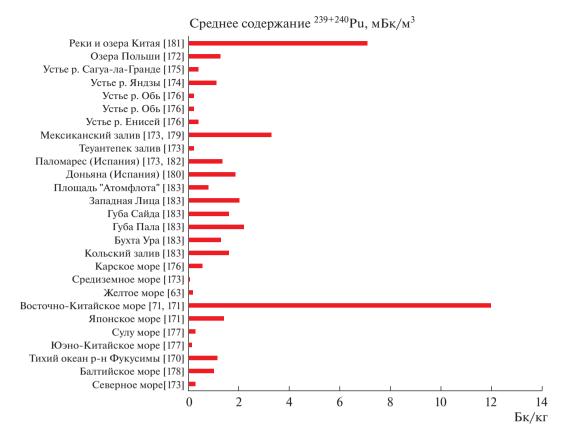


Рис. 4. Среднее содержание $^{239+240}$ Ри в донных отложениях [63, 71, 167–181]. **Fig. 4.** Average content of $^{239+240}$ Ри in sediments [63, 71, 167–181].

В ряде работ рассматриваются вопросы влияния почв на Кн плутония. В обобщающей работе [180] рассмотрены коэффициенты перехода $^{239+240}$ Pu в клубнику и яблоки. *К*н составили: для яблок 1.3×10^{-6} — 9.2×10^{-4} , для клубники — $6.8 \times$ $\times 10^{-5}$ — 1.5×10^{-3} (на сырой вес), при этом выявлено, что Kн для яблок и клубники, выращиваемых на песчаных почвах, обычно выше, чем на суглинках и торфяниках. В работах [176, 181] проведен анализ зависимости Кн от типа почв. В исследованиях рассматривались суглинки, песчаные и торфяные почвы, т.е. наиболее представительные почвы для Великобритании и Западной Европы. Результаты исследования показывают, что коэффициенты накопления $^{239+240}$ Ри для ячменя составили — 2.5 × $\times 10^{-6} - 1.2 \times 10^{-5}$, капусты $-4.3 \times 10^{-6} - 4.6 \times 10^{-5}$, моркови $-1.1 \times 10^{-5} - 1.5 \times 10^{-4}$. Наименьшие *K*н отмечены для почв с максимальным количеством органического вещества, что объясняется высокой степенью связанности ^{239 + 240}Ри с высокомолекулярными органическими соединениями, недоступными для растений. Результаты работы [182] по исследованию влияния минеральных удобрений на Kн показывают, что добавление азотнокалийно-фосфорных (до 600 кг/га), а также $(NH_4)_2$ HPO₄ (до 450 кг/га) увеличивало количество ²³⁹Pu во всех органах пшеницы, однако не более чем в 2.5 раза. В работе [183] не выявлено значимого влияния применения калийных удобрений на *K*H ^{239 + 240}Pu для фасоли, кукурузы и репы.

ИЗОТОПЫ ПЛУТОНИЯ В БИОЛОГИЧЕСКИХ ОБЪЕКТАХ И ЧЕЛОВЕЧЕСКОМ ОРГАНИЗМЕ

Изотопы плутония в биологических объектах дикой природы

Интенсивность поглощения радионуклидов различными видами живых организмов может быть оценена с помощью коэффициента накопления (*К*н). Для объектов дикой природы, когда невозможно оценить поступление радионуклидов с пищей, *К*н рассчитывают, относя концентрацию радионуклида в рассматриваемом организме к концентрации радионуклида в почве зоны обитания изучаемого организма или, для водных организмов (*К*н_{вод}), к концентрации радионуклида в воде [184, 185].

Таблица 3. Коэффициенты накопления Kн* $^{239+240}$ Ри (растение/почва (Бк кг $^{-1}$ /Бк кг $^{-1}$) по опубликованным результатам (МАГАТЭ, СИП)

Table 3. Accumulation coefficients $C_a^{239+240}$ Pu (plant/soil (Bq kg⁻¹/Bq kg⁻¹) according to published results (IAEA, STS)

Вид растения	Орган	Коэффициент накопления $^{239+240}$ Рu*		Вид	Орган	Коэффициент накопления $^{239+240}$ Pu	
		СИП [183, 184]	МАГАТЭ	растения	Орган	СИП [183, 184]	МАГАТЭ
картофель	клубни	4.3E-04	1.5E-04	тыква	плоды	3.1E-05	6.2E-05
	листья	2.2E-02	_		листья	3.4E-03	_
	стебли	8.0E-03	_		стебли	7.4E-04	_
	корни	4.7E-02	_		корни	6.6E-03	_
морковь	листья	6.9E-02	2.2E-03	баклажан	плоды	5.5E-02	6.2E-05
	корнеплод	3.9E-02	3.9E-04		листья	5.1E-02	_
свекла	листья	1.0E-02	2.2E-03		стебли	9.5E-04	_
	корнеплод	1.6E-03	3.9E-04		корни	1.6E-02	_
томат	плоды	<1.0E-03	6.2E-05	лук	листья	2.8E-03	_
	листья	4.8E-03	_		луковицы	1.3E-02	6.2E-05
	стебли	1.7E-03	_	капуста	листья	1.2E-03	8.3E-05
	корни	2.9E-01	_		стебель	7.1E-03	_
перец	плоды	1.1E-04	6.2E-05		корни	2.8E-02	_
	листья	1.1E-02	_	пшеница	зерно	8.1E-04	9.5E-06
	стебли	1.8E-03	_		стебли	2.6E-03	4.4E-05
	корни	9.0E-03	_		корни	8.3E-02	_
огурец	плоды	1.9E-04	6.2E-05				
	листья	5.0E-03	_				
	стебли	3.7E-03	_				

^{*} Kн определялись как отношение концентрации $^{239+240}$ Ри в растении или органе растения (сухой вес) к его концентрации в корнеобитаемом слое почвы (сухой вес).

Изучению коэффициентов накопления изотопов плутония живыми организмами посвящен ряд работ [186—195]. В работе [186] представлены данные коэффициентов накопления для широкого спектра типов организмов дикой природы. Обобщенные данные этой работы представлены в табл. 4.

Из таблицы видно, что плутоний очень интенсивно концентрируется морскими организмами. Приведенные данные хорошо согласуются с рекомендованными значениями Kн_{вод.} МАГАТЭ [187], которые для рыб составляет 1×10^2 , ракообразных -2×10^2 , моллюсков -3×10^3 , зоопланктон -4×10^3 . В среднем, Kн_{вод.} изотопов плутония для планктона составляет $-n \times 10^3$, для моллюсков $-n \times 10^2$, для рыб $-n \times 10^1$ — $n \times 10^4$ [186—192].

Диапазон коэффициента накопления (Kн_{почв}) для птиц (Erithacusrubecula, Ficedulaalbicollis, Ficedulahypoleuca, Fringillacoelebs, Parusmajor, Sylviaat-

ricapilla, Turdusmerul), летучих мышей (Nyctalusleisleri, Pipistrelluspipistrellus, Plecotusauritus), мелких грызунов (Myodesglareolus, Sorexaraneus, Sylvaemusflavicollis), обитающих на земле в пределах Чернобыльской зоны отчуждения, составляют $5.4 \times 10^{-5} - 1.9 \times 10^{-4}$; $5.8 \times 10^{-5} - 1.2 \times 10^{-4}$ и $4.1 \times 10^{-3} - 2.5 \times 10^{-4}$ соответственно [193].

Кн существенно различен для различных органов, при этом наблюдаются разные органы с максимальным и минимальным накоплением для разных видов. Например, для большого баклана (*Greatcormorant*) минимум (4.1% от общего содержания плутония) наблюдался в скелете птиц, в то время как максимум (32.6%) — в печени. Обратные данные были получены для гагарки (*Razorbill*): минимальное значения (4%) наблюдалось в печени, в то время как максимальное (29.3%) в скелете птицы [194].

Таблица 4. Коэффициенты накопления Kн* $^{239+240}$ Ри живыми организмами, концентрация в организме (сухой вес)/концентрация в воде (Бк кг $^{-1}$ /Бк кг $^{-1}$) **Table 4.** Accumulation coefficients $C_r^{239+240}$ Pu by living organisms, concentration in living organisms (dry weigh)/concentration in water (Bq kg $^{-1}$ /Bq kg $^{-1}$)

Вид	<i>K</i> н					
K н $_{ m nov B}$.						
Паукообразные (Arachnid)	$6.6 \times 10^{-3} - 1.3 \times 10^{-2}$					
Двупарноногие многоножки, или диплоподы (Diplopoda)	7.1×10^{-3}					
Прыгающие прямокрылые (Orthoptera)	8.4×10^{-4}					
Жесткокрылые, или жуки (Coleoptera)	$4.7 \times 10^{-4} - 3.6 \times 10^{-3}$					
Пальмовый вор (вид десятиногих раков) (Birguslatro)	$4.6 \times 10^{-4} - 6.5 \times 10^{-3}$					
Белохвостый олень, или виргинский олень (Odocoileusvirginianus)	$7.8 \times 10^{-4} - 1.3 \times 10^{-2}$					
Мелкие грызуны (Dipodomysmerriami, Dipodomysmicrops, Perognathuslongimembris, Peromyscusmaniculatus, Peromyscustrueli, Reithrodontymysmegalotis, Onychomystorridus, Ammospermophilusleucurusetc.)	$2.9 \times 10^{-7} - 4.3 \times 10^{-1}$					
Чернохвостый заяц или калифорнийский заяц (Lepuscalifornicus)	$2.2 \times 10^{-5} - 6.6 \times 10^{-3}$					
Ящерицы (Phrynosoma platyrhino, Uta stansburiana)	$1.9 \times 10^{-3} - 4.0 \times 10^{-3}$					
K н $_{ m BOJ.}$						
Американская лысуха (Fulicaamericana)	$1.4 \times 10^3 - 6.0 \times 10^3$					
Рыба (Micropterus salmoides, Mugilidae, Acanthurustriostegus)	$1.6 \times 10^{1} - 1.4 \times 10^{4}$					
Моллюски (Mytilus edulis, Pernaperna)	$4.7 \times 10^2 - 6.1 \times 10^2$					
Зоопланктон (Zooplankton)	$3.5 \times 10^2 - 4.6 \times 10^3$					

^{*}*K*н определялись как отношение концентрации ^{239 + 240}Pu в организме или организма (сухой вес) к его концентрации в воде.

Изотопы плутония в сельскохозяйственных животных

При исследовании переходов радионуклидов в организм сельскохозяйственных животных *К*н определяют, как правило, как отношение уровня плутония в организме к его концентрации в рационе (корм, вода, непреднамеренно заглатываемая почва).

В исследовании [195] рассмотрены коэффициенты накопления *К*н плутония в органах овец при его поступлении с растительным кормом. В данном исследовании установлено, что коэффициент накопления ^{239 + 240}Ри вариабелен для различных органов овец, при этом наименьший коэффициент накопления для овец наблюдался в мышечной ткани животных (0.0015), в то время как максимальный отмечался для печени (0.063). Следует отметить, что полученные в этой работе значения *К*н существенно выше других опубликованных величин *К*н [196], что, возможно, связано с недостаточной точностью учета поступления плутония.

В исследовании [17] описаны натурные эксперименты с сельскохозяйственными животными по исследованию коэффициентов перехода ^{239 + 240}Pu в сельскохозяйственную продукцию жи-

вотного происхождения при различных источниках поступления. Кратко основные результаты этого исследования представлены в табл. 5. В работе [197] показано, что при длительном поступлении ^{239 + 240}Ри в организм его концентрации в печени и костной ткани увеличивались на всем протяжении эксперимента (до 112 сут). В других органах (мышцах языка, бедренной мышце, легких, почках, курдючном жире) происходит существенное замедление роста активности ^{239 + 240}Ри после 28 сут.

Результаты данного исследования хорошо согласуются с данными Kн по [196], в которых диапазон Kн от растительного корма для коров оценивается в $8.8 \times 10^{-8} - 3.0 \times 10^{-4}$ при среднем значении 1.1×10^{-6} , баранины $-2.0 \times 10^{-5} - 8.5 \times 10^{-5}$ при среднем значении 5.3×10^{-5} .

Из табл. 5 видно, что коэффициенты перехода существенно зависят от источника поступления плутония в окружающую среду, максимальные Kн наблюдаются при поступлении с водой, минимальные — при поступлении с почвой. При поступлении плутония путем непреднамеренного заглатывания почвы Kн зависит и от форм нахождения $^{239+240}$ Ри в почвах.

Таблица 5. Коэффициент перехода $^{239+240}$ Pu $\times~10^{-5}$ в продукцию животноводства

Table 5. The transfer coefficient $^{239+240}$ Pu \times 10^{-5} into livestock products, concentration in living organisms (dry weigh)/concentration in the diet (feed, water, inadvertently ingested soil) (Bq kg⁻¹/Bq kg⁻¹)

Баранина						
Степная растительность с эпицентров	8.6 ± 3.9					
наземных испытаний						
Луговая растительность с зон радиоак-						
тивных водотоков						
Почва с эпицентров наземных испытаний	0.06 ± 0.03					
Почва с зон радиоактивных водотоков	1.5 ± 0.6					
Говядина						
Степная растительность с эпицентров	<1.5					
Степная растительность с эпицентров наземных испытаний	<1.5					
	<1.5					
наземных испытаний	110					
наземных испытаний Почва с эпицентров наземных испытаний	110					
наземных испытаний Почва с эпицентров наземных испытаний <i>Конина</i>	0.0025					

^{*} Кн определялись как отношение концентрации ^{239 + 240} Ри в организме или организма (сухой вес) к его концентрации в рационе (корм, вода, непреднамеренно заглатываемая почва)ю

Таблица 6. Концентрация ^{239 + 240}Pu в тканях человека, взятых у взрослых в возрасте 20 лет и старше, умерших в различных частях мира в период 1970—1981 гг., мБк/(кг свежей ткани)

Table 6. Concentration of $^{239+240}$ Pu in human tissues taken from adults aged 20 years and older who died in different parts of the world in the period 1970–1981, mBq/(kg fresh tissue)

Страна	Печень	Кости	Кости Легкие	
США	0-120	<4-93	<1-78	<52-110
Германия	9-44	2-9	0.5-4	_
Великобритания	5-59	2-54	<0.4-16	_
Финляндия	10-14	1-2	0.8-1.2	11-17
Япония	5-54	15-71	4-26	_
Непал		0-24		
Австралия		1-7		
Среднее	26	9	7	66
значение для 1970—1977 гг.				

Изотопы плутония в человеческом организме

Плутоний в микроколичествах содержится и в человеческом теле. Повышенные концентрации плутония могут наблюдаться у людей, проживающих в областях с повышенными концентрациями плутония в окружающей среде. Исследования содержания плутония в организме жителей г. Озерска, прибывших в город в 1949—1950 гг. и прожив-

ших здесь 60 лет, показывают, что общее содержание плутония в организме составило около 4.5 Бк на тело или ориентировочно 65 мБк/кг [198]. Очевидно, что это значение, учитывая радиационную историю г. Озерска, должно рассматриваться как повышенное.

Средние значения ^{239 + 240}Ри в основных органах отложения изотопов плутония, таких как печень, кости, легкие и трахеобронхиальные лимфатические узлы (ТЛУ), для людей, не имевших возможного повышенного поступления плутония в результате профессиональной деятельности, представлены в табл. 6 [199].

Основными депонирующими изотопы плутония органами человеческого организма являются печень, кости, и, возможно, ТЛУ. Легкие могут содержать повышенные концентрации плутония при преимущественно ингаляционном поступлении плутония. Распределение плутония в организме человека при ингаляционном его поступлении зависит от физико-химических свойств соединений изотопа. При поступлении растворимых соединений он преимущественно откладывается в скелете (меньше в печени и легких); нерастворимых соединений — в легких [200, 201].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Анализ представленной в данной статье информации позволяет сделать вывод о степени изученности загрязненных плутонием объектов и территорий. К сожалению, приходится констатировать, что исчерпывающей информации в виде, например, детальных карт загрязнения с изолиниями концентраций, по большинству объектов нет. В основном, загрязненные объекты характеризуются отдельными точками с максимальными/минимальными уровнями концентрации плутония, позволяющими приблизительно оценивать масштабы, конфигурацию и уровень загрязнения. Учитывая, что практически на всех предприятиях мира, связанных с переработкой плутония, случались аварии, имелись выбросы и сбросы, следует признать, что требуются дополнительные исследования территорий, прилегающих к предприятиям ядерного топливного энергетического цикла, связанных с получением и переработкой плутония, с целью более точной оценки их реального радиоэкологического состо-

Вместе с тем следует отметить, что особенности физико-химических свойств плутония (высокая температура плавления его соединений, высокая способность адсорбироваться почвой и донными отложениями и т.д.) приводят к тому, что участки загрязнения со значимо повышенным содержанием плутония локализованы и стабильны во времени. Как правило, они не превы-

шают по площади десятых долей или единиц квадратных километров и, соответственно, не представляют реальной радиационной опасности для населения (за исключением загрязнения в результате очень крупных радиационных аварий типа Чернобыльской катастрофы или Кыштымской). Можно с уверенностью утверждать, что в силу низких миграционных способностей плутония в системах "почва-растительность/растениеводческая продукция - животные/животноводческая продукция" даже в случае производства сельскохозяйственной продукции на территории с повышенными концентрациями плутония она будет соответствовать санитарногигиеническим нормативам. Исключение, возможно, будет составлять продукция рыболовства. особенно, в зонах сбросов предприятий ядерного топливно-энергетического цикла.

БЛАГОЛАРНОСТИ

Данная статья подготовлена в рамках выполнения договора № 19-18-50291/19 по гранту Российского фонда фундаментальных исследований (Конкурс "Экспансия" на соискание финансовой поддержки для подготовки и опубликования научных обзорных статей).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Большая советская энциклопедия. Доступно по: http://endic.ru/enc_sovet/Plutoni-48802.html.
 Ссылка активна на: 10.08.2020. [Great Soviet Encyclopedia. Available at: http://endic.ru/enc_sovet/Plutoni-48802.html. Accessed: 10.08.2020 (In Russian)].
- 2. *Василенко И.Я., Василенко О.И.* Плутоний // Энергия: экономика, техника, экология. 2004. № 1. С. 60–63. [*Vasilenko I.Ya., Vasilenko O.I.* Plutonium // Energy: Economics, Technology, Ecology. 2004. № 1. Р. 60–63. (InRussian)]
- 3. Environmental Chemistry of Plutonium // The Plutonium Handbook / Eds D.L. Clark, D.A. Geeson, R.J. Hanrahan, Jr. 2nd ed. V. 4. Publisher: American Nuclear Society, 2019. 3314 p.
- Бекман И.Н. Плутоний: Учебное пособие. Доступно по: http://profbeckman.narod.ru/PlutonSS.htm. Ссылка активна на: 15.08.2020. [Beckman I.N. Plutonium. Tutorial. Available at: http://profbeckman.narod.ru/PlutonSS.htm. Accessed: 08/15/2020 (In Russian)].
- 5. Уоттерс Р.Л., Эдгинтон Д.Н., Хаконсон Т.Э. и др. Трансурановые элементы в окружающей среде / Под ред. У.С. Хэнсона; пер. с англ. Г.Н. Романова / Под ред. Р.М. Алексахина. М.: Энергоатомиздат, 1985. 344 с. [Watters R.L., Edginton D.N., Hackonson T.E. et al. Transuranic elements in the environment / Ed. U.S. Hanson; translation from English. G.N. Romanov / Ed. R.M. Aleksakhin. Moscow: Energoatomizdat, 1985. 344 p. (In Russian)]
- 6. Жерин И.И. Химия тория, урана, плутония: учебное пособие. Томск: ТПУ, 2010. 147 с. [Zherin I.I.

- Chemistry of thorium, uranium, plutonium: a tutorial. Tomsk: TPU, 2010. 147 p. (In Russian)]
- 7. Plutonium in the Environment. Proceedings of the Second International Symposium / Ed. A. Kudo. V. 1. Elsevier Science, 2001. 464 p.
- 8. *Асеев А.Г., Субботин С.А.* Оценка и сравнение потенциальной опасности плутония // Изв. Вузов. Ядерная энергетика. 1999. № 2. С. 39—47. [*Aseev A.G., Subbotin S.A.* Assessment and comparison of the potential hazard of plutonium // Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika. 1999. № 2. Р. 39—47 (In Russian)]
- 9. *Francis A.J., Dodge C.J.* Microbial mobilization of plutonium and other actinides from contaminated soil // J. Environ. Radioact. 2015. V. 50. P. 277–285. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.08.019
- 10. Simon S.L., Graham J.C., Borchert, A.W. Concentrations and spatial distribution of plutonium in the terrestrial environment of the Marshall Islands // Sci. Total Environ. 1999. V. 229. № 1–2. P. 21–39. https://doi.org/10.1016/s0048-9697(99)00066-2
- 11. Johansen M.P., Child D.P., Davis E. et al. Plutonium in wildlife and soils at the Maralinga legacy site: persistence over decadal time scales // J. Environ. Radioact. 2014. V. 131. P. 72–80. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2013.10.014
- 12. *Tims S.G.*, *Fifield L.K.*, *Hancock G.J. et al.* Plutonium isotope measurements from across continental Australia // Nucl. Instr. Meth, Phys. Res. Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 2013. V. 294. P. 636–641. https://doi.org/10.1016/j.nimb.2012.07.010
- 13. *Baggoura B., Noureddine A., Benkrid M.* Level of natural and artificial radioactivity in Algeria // Appl. Radiat. Isotop. 1998. V. 49. № 7. P. 867–873. https://doi.org/10.1016/s0969-8043(97)10005-7
- 14. *Hu Q.-H., Weng J.-Q., Wang J.-S.* Sources of anthropogenic radionuclides in the environment: a review // J. Environ. Radioact. 2010. V. 101. № 6. P. 426–437. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2008.08.004
- 15. *Hrneceka E., Steier P., Wallner A.* Determination of plutonium in environmental samples by AMS and alpha spectrometry // Appl. Radiat. Isotop. 2005. V. 63. P. 633–638.
- 16. *Матишов Г.Г., Касаткина Н.Е., Леппанен А.П. и др.* Новые данные о содержании изотопов плутония в грунтах Баренцева моря // Докл. академии наук. 2011. Т. 440. № 5. С. 696—700. [*Matishov G.G., Kasatkina N.E., Leppanen A.P. et al.* New data on the content of plutonium isotopes in the soils of the Barents Sea // Rep. Acad. Sci. 2011. V. 440. № 5. P. 696—700 (In Russian)]
- 17. Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана. Вып. 5. Оптимизация исследований территории Семипалатинского испытательного полигона с целью их передачи в хозяйственный оборот / Подрук. Лукашенко С.Н. Павлодар: Домпечати, 2015. 356 с. [Topical issues of radioecology in Kazakhstan. Issue 5. Optimization of research on the territory of the Semipalatinsk test site for the purpose of transferring them into economic circulation / Ed. S.N. Lukashenko. Pavlodar: Dom pechati, 2015. 356 p. (In Russian)]

- 18. Умаров М.А., Лукашенко С.Н., Мошков А.С. и др. Исследование площадного радиоактивного загрязнения испытательной площадки "Опытное поле" (2012—2014 гг.) // Вестн. НЯЦ РК. 2016. № 1. С. 142—149. [Umarov M.A., Lukashenko S.N., Moshkov A.S. et al. Study of the areal radioactive contamination of the test site "Experimental field" (2012—2014) // NNC RK Bull. 2016. № 1. Р. 142—149 (In Russian)]
- Лукашенко С.Н., Стрильчук Ю.Г., Ляхова О.Н. Актуальные радиоэкологические проблемы мест проведения мирных ядерных взрывов в России // XLVII Радиоэкологические чтения. Обнинск, 2019. С. 62—78. [Lukashenko S.N., Strilchuk Yu.G., Lyakhova O.N. Actual radioecological problemsof the places of peaceful nuclear explosions in Russia // XLVII Radioecological readings. Obninsk, 2019. P. 62—78 (In Russian)]
- Gedeonov A.D., Petrov E.R., Alexeev V.G. et al. Residual radioactive contamination at the peaceful underground nuclear explosion sites "Craton-3" and "Crystal" in the Republic of Sakha (Yakutia) // J. Environ. Radioact. 2002. V. 60. P. 221–234.
- 21. Saito-Kokubu Y., Esaka F., Yasuda K. et al. Plutonium isotopes derived from Nagasaki atomic bomb in the sediment of Nishiyama reservoir at Nagasaki, Japan // Appl. Radiat. Isotop. 2007. V. 65. № 4. P. 465–468. https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2006.10.010
- 22. Saito-Kokubu Y., Yasuda K., Magara M. et al. Depositional records of plutonium and ¹³⁷Cs released from Nagasaki atomic bomb in sediment of Nishiyama reservoir at Nagasaki // J. Environ. Radioact. 2008. V. 99. № 1. P. 211–217. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2007.11.010
- 23. *Yoshida S., Muramatsu Y., Yamazaki S., & Ban-nai T.*Distribution of nuclear bomb Pu in Nishiyama area, Nagasaki, estimated by accurate and precise determination of ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu ratio in soils // J. Environ. Radioact. 2007. V. 96. № 1–3. P. 85–93. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2007.01.019
- 24. Доступно по: https://zen.yandex.ru/media/warpig/marshbrosok-pod-atomnyi-vzryv-ucheniia-v-ssha. Ссылка активна на: 18.08.2020. [Available at: https://zen.yandex.ru/media/warpig/marshbrosok-pod-atomnyi-vzryv-ucheniia-v-ssha. Accessed: 18.08.2020]
- 25. Ядерные испытания СССР. В 6 т. Т. 1. Цели. Общие характеристики. Организация ядерных испытаний СССР. Первые ядерные испытания / Ред. группа под рук. проф. В.Н. Михайлова. Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ, 1997. 288. [Nuclear tests of the USSR. In 6 v. Т. 1. Objectives. General characteristics. Organization of nuclear tests in the USSR. First nuclear tests / Ed. group led prof. V.N. Mikhailova. Sarov: RFNC-VNIIEF, 1997. 288 p.]
- Livens F.R., M. S. Baxter. Chemical Associations of Artificial Radionuclides in Cumbrian Soils // J. Environ. Radioact. 1988. V. 7. P. 75–86.
- 27. Атлас современных и прогнозных аспектов последствий аварии на Чернобыльской АЭС на пострадавших территориях России и Беларуси (АСПА Россия—Беларусь) / Под ред. Ю.А. Израэля, И.М. Богдевича. М.: Фонд "Иносфера", НИАПрирода; Минск: Белкартография, 2009. 140 с. [Atlas of modern and predictive aspects of the consequen-

- ces of the accident at the Chernobyl nuclear power plant in the affected territories of Russia and Belarus (ASPA Russia—Belarus) / Ed. Yu.A. Izrael, I.M. Bogdevich. Moscow: Inosphere Foundation, NIA-Priroda; Minsk: Belkartografiya, 2009. 140 p. (In Russian)]
- 28. *Израэль Ю.А.* Радиоактивные выпадения после ядерных взрывов и аварий. СПб.: Прогресс-Погода, 1996. 355 с. [*Israel Yu.A.* Radioactive fallout after nuclear explosions and accidents. St. Petersburg: Progress-Pogoda, 1996. 355 p. (In Russian)]
- 29. Ващенко В.Н., Кордуба И.Б., Кризская Ю.М. Сравнительный анализ и радиационно-экологические последствия тяжелых аварий на ЧАЭС и Фукусима-1 // Вісн. Кременчуцького нац. ун-ту ім. Михайла Остроградського. 2017. Вып 3. № 1. С. 114—123. [Vaschenko V.N., Korduba I.B., Krizkaya Yu.M. Comparative analysis and radiation and environmental consequences of severe accidents at the Chernobyl NPP and Fukushima-1 // Bulletin of Kremenchuk National University named after Mykhailo Ostrogradsky. 2017. № 3. № 1. Р. 114—123. (In Russian)]
- 30. Bossew P. Plutonium Emission from the Fukushima Accident // IX Latin American IRPA Regional Congress on Radiation Protection and Safety – IRPA 2013 Rio de Janeiro, RJ, Brazil, April 15–19. 2013 (IRPA 2013, Rio de Janeiro, RJ, Brazil).
- 31. *Kimura H., Uesugi M., Muneda A. et al.* The situation of Ag and Pu radioisotopes in soil released from Fukushima Daiichi nuclear power plants // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2015. V. 303. P. 1469–1471.
- Livens F.R., Baxter M.S. Chemical Associations of Artificial Radionuclides in Cumbrian Soils // J. Environ. Radioact. 1988. V. 7. P. 75–86.
- 33. Eakins J.D., Morgan A., Baston G.M.N. et al. Measurements of c~-Emitting Plutonium and Americium in the Intertidal Sands of West Cumbria, UK // J. Environ. Radioact. 1990. V. 11. P. 37–54.
- 34. *Horrill A.D.* The Influence of Grassland Management on the Radionuclide Inventory of Soils in West Cumbria, UK // J. Environ. Radioact. 1990. V. 12. P. 143–165.
- 35. *McCarthy W., Nicholls T. M.* Mass-Spectrometric Analysis of Plutonium in Soils Near Sellafield // J. Environ. Radioact. 1990. V. 12. P. 1–12.
- 36. Eyrolle F., Charmasson S., Louvat D. Plutonium isotopes in the lower reaches of the River Rhône over the period 1945–2000: fluxes towards the Mediterranean Sea and sedimentary inventories // J. Environ. Radioact. 2004. V. 74. № 1–3. P. 127–138. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2004.01.017
- 37. *Litaor M.I.*, *Barth G.*, *Zika E. et al.* The behavior of radionuclides in the soils of Rocky Flats, Colorado // J. Environ. Radioact. 1998. V. 38. № 1. P. 17–46. https://doi.org/10.1016/s0265-931x(97)00019-2
- 38. Gallaher B.M., Benjamin T.M., Rokop D.J. and Stoker A.K. Survey of plutonium and uranium atom ratios and activity levels in Mortandad canyon // The Report LA-UR-97-3863.
- 39. Alberts J.J., Halverson J.E., Orlandini K.A. The distribution of plutonium, Americium and curium isotopes in pond and stream sediments of the Savannah river plant, South Carolina, USA // J. Environ. Radioact.

2021

- 1986. V. 3. № 4. P. 249—271. https://doi.org/10.1016/0265-931x(86)90002-0
- 40. Markham O.D., Puphal K.W., & Filer T.D. Plutonium and Americium Contamination near a Transuranic Storage Area in Southeastern Idaho // J. Environ. Quality. 1978. V. 7. № 3. P. 422. https://doi.org/10.2134/jeq1978.004724250007000300 26x
- 41. Атлас Восточно-Уральского и Карачаевского радиоактивных следов, включая прогноз до 2047 года / Под ред. Ю.А. Израэля. М.: ИГКЭ Росгидромета и РАН, Фонд "Инфосфера", НИА-Природа, 2013. 140 с. [Atlas of the East Ural and Karachaevsky radioactive traces, including the forecast until 2047 / Ed. Yu.A. Izrael. Moscow: Infosphere Foundation, NIA-Nature, 2013. 140 p. (In Russian)]
- 42. Окружающая среда и устойчивое развитие регионов: новые методы и технологии исследований. Т. IV: Экологическая безопасность, инновации и устойчивое развитие. Образование для устойчивого развития / Под ред. проф. В.З. Латыповой и доц. О.Г. Яковлевой. Казань: Изд-во "Отечество". 2009. 404 с. [Environment and sustainable development of regions: new research methods and technologies. V. IV: Environmental Safety, Innovation and Sustainable Development. Education for sustainable development / Ed. V.Z. Latypova and O.G. Yakovleva. Kazan: Publ. house "Otechestvo", 2009. 404 p. (In Russian)]
- 43. Gauthier Lafaye F., Pourcelot L., Eikenberg J. et al. Radioisotope contaminations from releases of the Tomsk-Seversk nuclear facility (Siberia, Russia) // J. Environ. Radioact. 2008 V. 99. P. 680–693.
- 44. *Jiménez-Ramos M.C.*, *García-Tenorio R.*, *Vioque I. et al.* Presence of plutonium contamination in soils from Palomares (Spain) // Environ. Pollut. 2006. V. 142. № 3. P. 487–492. https://doi.org/10.1016/j.envpol.2005.10.030
- 45. *McMahon C., León Vintró L., Mitchell P., Dahlgaard H.*Oxidation-state distribution of plutonium in surface and subsurface waters at Thule, northwest Greenland // Appl. Radiat. Isotop. 2000. V. 52. № 3. P. 697–703. https://doi.org/10.1016/s0969-8043(99)00232-8
- 46. Доступно по: https://lenta.ru/news/2019/07/09/dsa/. Ссылка активна на: 11.08.2020. [Available at: https://lenta.ru/news/2019/07/09/dsa/ Accessed: 11.08.2020 (In Russian)].
- 47. *Hardy E.P., Krey P.W., Volchok H.L.* Global inventory and distribution of fallout plutonium // Nature. 1973. V. 241. P. 444–445.
- 48. *Hoo W.T., Fifield L.K., Tims S.G. et al.* Using fallout plutonium as a probe for erosion assessment // J. Environ. Radioact. 2011. V. 102. № 10. P. 937–942. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2010.06.010
- 49. Bunzl K., Förster H., Kracke W., Schimmack W. Residence times of fallout ^{239 + 240}Pu, ²³⁸Pu, ²⁴¹Am and ¹³⁷Cs in the upper horizons of an undisturbed grassland soil // J. Environ. Radioact. 1994. V. 22. № 1. P. 11–27.
 - https://doi.org/10.1016/0265-931x(94)90032-9
- 50. *Lehto J., Vaaramaa K., Leskinen A.* ¹³⁷Cs, ^{239,240}Pu and ²⁴¹Am in boreal forest soil and their transfer into wild mushrooms and berries // J. Environ. Radioact. 2013.

- V. 116. P. 124–132. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2012.08.012
- 51. *Qiao J., Hou X., Roos P., Miró M.* Rapid and simultaneous determination of neptunium and plutonium isotopes in environmental samples by extraction chromatography using sequential injection analysis and ICP-MS // J. Analyt. Atom. Spectrometry. 2010. V. 25. № 11. P. 1769. https://doi.org/10.1039/c003222k
- 52. *Hodge V., Smith C., Whiting J.* Radiocesium and plutonium: still together in "background" soils after more than thirty years // Chemosphere. 1996. V. 32. № 10. P. 2067–2075. https://doi.org/10.1016/0045-6535(96)00108-7
- 53. *Syarbaini S.Y.* Global fall out of ^{239,240}Pu and ²⁴¹Am in the environment of serpong atomic energy research establishment // Kembalike J. 2000, V. 26, P. 61–71.
- 54. *Beasley T.M., Kelley J.M., Maiti T.C., Bond L.A.* Atom ratios in integrated global fallout: a reassessment of the production of ²³⁷Np // J. Environ. Radioact. 1998. V. 38. № 2. P. 133–146. https://doi.org/10.1016/s0265-931x(97)00033-7
- 55. Cigna A.A., Rossi L.C., Sgorbini S., Zurlini G. Environmental study of fallout plutonium in soils from the piemonte region (North-West Italy) // J. Environ. Radioact. 1987. V. 5. № 1. P. 71–81. https://doi.org/10.1016/0265-931x(87)90045-2
- 56. *Amr M.A.*, *Helal A.-F.I.*, *Al-Kinani A.T.*, *Balakrishnan P*. Ultra-trace determination of ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs, ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, and ²⁴⁰Pu by triple quadruple collision/reaction cell-ICP-MS/MS: Establishing a baseline for global fallout in Qatar soil and sediments // J. Environ. Radioact. 2016. V. 153. P. 73–87. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.12.008
- 57. Zheng J., Yamada M., Wu F., & Liao H. Characterization of Pu concentration and its isotopic composition in soils of Gansu in northwestern China // J. Environ. Radioact. 2009. V. 100. № 1. P. 71–75. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2008.10.017
- Cao L., Zhou Z., Wang N. & Wang Z. Vertical distribution and migration of plutonium in the Loess Plateau, North Shaanxi, China // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2019. https://doi.org/10.1007/s10967-019-06744-x
- 59. *Kim C., Lee M., Kim C., Kim K.* ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs, ^{239 + 240}Pu and ²³⁸Pu concentrations in surface soils of Korea // J. Environ. Radioact. 1998. V. 40. № 1. P. 75–88. https://doi.org/10.1016/s0265-931x(97)00062-3
- 60. Lee M.H., Lee C.W., Boo B.H. Distribution and characteristics of ^{239,240}Pu and ¹³⁷Cs in the soil of Korea // J. Environ. Radioact. 1997. V. 37. № 1. P. 1–16. https://doi.org/10.1016/s0265-931x(96)00080-x
- 61. *Bossew P., Hubme A., Strebl F.* Anthropogenic and natural radionuclides in soil of a tropical rainforest of Southern Costa Rica // Landesmussen Neue Aerie. 2008. V. 80. P. 47–58.
- 62. *Rääf C., Holm E., Rabesiranana N. et al.* On the presence of plutonium in Madagascar following the SNAP-9A satellite failure // J. Environ. Radioact. 2017. V. 177. P. 91–99. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.06.011

- 63. *Salmani-Ghabeshi S., Chamizo E., Christl M. et al.* Presence of ²³⁶U and ^{239,240}Pu in soils from Southern Hemisphere // J. Environ. Radioac. 2018. V. 192. P. 478–484.
 - https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.08.003
- 64. Wendel C.C., Skipperud L., Lind O.C. et al. Source attribution of Pu deposited on natural surface soils // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2015. V. 304. № 3. P. 1243—1252. https://doi.org/10.1007/s10967-015-3963-2
- 65. Reponen A., Jantunen M., Paatero J., Jaakkola T. Plutonium fallout in Southern Finland after the Chernobyl accident // J. Environ. Radioact. 1993. V. 21. № 2. P. 119–130. https://doi.org/10.1016/0265-931x(93)90049-d
- 66. Paatero J., Jaakkola T., Kulmala S. Lichen (sp. Cladonia) as a deposition indicator for transuranium elements investigated with the Chernobyl fallout // J. Environ. Radioact. 1998. V. 38. № 2. P. 223–247. https://doi.org/10.1016/s0265-931x(97)00024-6
- 67. Le Roux G., Duffa C., Vray F., Renaud P. Deposition of artificial radionuclides from atmospheric Nuclear Weapon Tests estimated by soil inventories in French areas low-impacted by Chernobyl // J. Environ. Radioact. 2010. V. 101. № 3. P. 211–218. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2009.10.010
- 68. Leclercq A., Michel H., Philippini V. et al. Behaviors and transfers of anthropogenic radionuclides (137Cs, 239 + 240Pu and 241Am) in a protected alpine wetland (France) // J. Radioanalyt. Nucl. Chem. 2014. V. 303. № 1. P. 719—732. https://doi.org/10.1007/s10967-014-3424-3
- 69. Antovic N.M., Vukotic P., Svrkota N., Andrukhovich S.K. Pu-239 + 240 and Cs-137 in Montenegro soil: their correlation and origin // J. Environ. Radioact. 2012. V. 110. P. 90–97. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2012.02.001
- 70. Cook G.T., Baxter M.S., Duncan H.J., Malcolmson R. Geochemical associations of plutonium and γ-emitting radionuclides in caithness soils and marine particulates // J. Environ. Radioact. 1984. V. 1. № 2. P. 119–131.
 - https://doi.org/10.1016/0265-931x(84)90003-1
- 71. *Yang G., Zheng J., Tagami K., Uchida S.* Plutonium concentration and isotopic ratio in soil samples from central-eastern Japan collected around the 1970s // Sci. Rep. 2015. V. 5. № 1. https://doi.org/10.1038/srep09636
- 72. *Аринушкина Е.В.* Руководство по химическому анализу почв / Ред. Е.В. Аринушкина. М.: Изд-во МГУ, 1970. 488 с. [*Arinushkina E.V.* Manual for the chemical analysis of soils / Ed. E.V. Arinushkina. М.: Moscow State University Publishing House, 1970. 488 р. (In Russian)]
- 73. *Минкина Т.М., Мотузова Г.Б.* Комбинированный прием фракционирования соединений металлов в почвах // Почвоведение. 2008. № 11. С. 1324—1333. [*Minkina T.M., Motuzova G.B.* Combined method of fractionation of metal compounds in soils // Pochvovedenie. 2008. № 11. Р. 1324—1333 (In Russian)]
- 74. *Кузнецов В.А., Шимко Г.А.* Метод постадийных вытяжек при геохимических исследованиях. Минск: Наука и техника, 1990. 65 с. [*Kuznetsov V.A., Shim*-

- *ko G.A.* The method of stepwise extracts in geochemical studies. Minsk: Science and Technology, 1990. 65 p. (In Russian)]
- 75. *Jixin Qiao, Xiaolin Hou*. Fractionation of plutonium in environmental and bio-shielding concrete samples using dynamic sequential extraction // J. Environ. Radioact. 2010. V. 101. № 3. P. 244–249. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2009.11.007
- 76. Goryachenkova T.A., Pavlotskaya F.I., Myasoedov B.F. Forms of occurrence of plutonium in soils // J. Radioanalyt. Nucl. Chem. Art. 1991. V. 147. № 1. P. 153–157. https://doi.org/10.1007/bf02039576
- 77. Соколик Г.А., Овсянникова С.В., Войникова Е.В., Попеня М.В. Современное состояние и подвижность плутония и америция чернобыльского выброса в почвенно-растительном покрове // Мед.биол. пробл. жизнедеят. 2011. № 1 (5) С. 197—184. [Sokolik G.A., Ovsyannikova S.V., Voinikova E.V., Stump M.V. Current state and mobility of plutonium and americium from the Chernobyl release in the soil and vegetation cover // Medico-biological problems of life. 2011. V. 1. № 5. P. 197—184 (In Russian)]
- 78. *Ильяшук А.Ю., Миронов В.П.* Плутоний и америций на территории Беларуси: уровни загрязнения и физико-химические формы // Междунар. науч.практ. Конф. "Радиоэкология XXI века": Сб. материалов. Доступно по: http://conf.sfu-kras.ru/conf/radioecology-XXI/report?memb_id=1741. Ссылка активна на: 10.08.2020. [*Ilyashuk A.Yu., Mironov V.P.* Plutonium and americium on the territory of Belarus: pollution levels and physical and chemical forms // Int. scientific and practical conference "Radioecology of the XXI century": Collection of materials. Available at: http://conf.sfu-kras.ru/conf/radioecology-XXI/report? memb_id = 1741. Accessed: 10.08.2020 (In Russian]
- 79. Шуктомова И.И., Рачкова Н.Г. Особенности распределения ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr и изотопов плутония в грунтах на территории проведения Мирного ядерного взрыва // Геохимия. 2015. № 8. С. 761–768. [Shuktomova I.I., Rachkova N.G. Distribution features of ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr and plutonium isotopes in soils on the territory of the Peaceful nuclear explosion // Geochemistry. 2015. № 8. P. 761–768. (In Russian)]
- 80. *Кундузбаева А.Е., Кабдыракова А.М., Ларионова Н.В., Лукашенко С.Н.* Формы нахождения искусственных радионуклидов в почвах объекта "Атомное озеро" Семипалатинского испытательного полигона // Радиац. биология. Радиоэкология. 2017. Т. 57. № 4. С. 399—413. [*Kunduzbaeva A.E., Kabdyrakova A.M., Larionova N.V., Lukashenko S.N.* Artificial radionuclides species in the soils of the Atomic Lake object of the Semipalatinsk test site // Radiation biology. Radioecology. 2017. V. 57. № 4. P. 399—413. doi:10.7868/S0869803117040063 (In Russian)] https://doi.org/10.7868/S0869803117040063
- 81. Лукашенко С.Н. Формы нахождения искусственных радионуклидов в почвах условно "фоновых" территорий Семипалатинского испытательного полигона // Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана. Вып. 5. Оптимизация исследований территории Семипалатинского испытательного

2021

- полигона с целью их передачи в хозяйственный оборот / Под рук. С.Н. Лукашенко. Павлодар: Дом печати, 2015. С. 149–167. [Lukashenko S.N. Forms of finding artificial radionuclides in the soils of the conditionally "background" territories of the Semipalatinsk test site // Topical issues of radioecology in Kazakhstan. Issue 5. Optimization of research on the territory of the Semipalatinsk test site for the purpose of transferring them into economic circulation / Ed. S.N. Lukashenko. Pavlodar: Dom pechati, 2015. P. 149–167 (In Russ.)]
- 82. Кундузбаева А.Е., Кабдыракова А.М., Лукашенко С.Н. Исследование форм нахождения радионуклидов в почвах различных объектов СИП // Взгляд молодых ученых на современные проблемы развития радиобиологии, радиоэкологии и радиационных технологий: Сб. докл. молодежной конф. с междунар. участием, посвященной 45-летию образования ФГБНУ ВНИИРАЭ. Обнинск. 7-8 сентября 2016 г. Обнинск: ФГБНУ ВНИИРАЭ, 2016. С. 156-163. [Kunduzbaeva A.E., Kabdyrakova A.M., Lukashenko S.N. Study of the forms of finding radionuclides in the soil various SIP objects // View of young scientists on modern problem sof the development of radiobiology, radioecology and radiation technologies: Collection of reports of the youth conference with international participation dedicated to the 45th anniversary of RIRAE, Obninsk, September 7–8, 2016. Obninsk: RIRAE, 2016. P. 156–163. (In Russian)]
- 83. Бахур А.Е., Дубинчук В.Т., Березина Л.А. и др. Радиоактивные частицы в почвах Семипалатинского полигона // Радиация и риск. 1997. № 9. С. 71—84. [Bakhur A.E., Dubinchuk V.T., Berezina L.A. et al. Radioactive particles in the soils of the Semipalatinsk test site // Radiation and risk. 1997. № 9. Р. 71—84. (In Russian)]
- 84. Cook G.T., Baxter M.S., Duncanand H.J., Malcolmson R. Geochemical Associations of Plutonium and γ-Emitting Radionuclides in Caithness Softs and Marine Particulates // J. Environ. Radioact. 1984. V. 1. P. 119–131
- 85. *Ibrahim S.A.*, *Morris R.C.* Distribution of plutonium among soil phases near a Subsurface Disposal Area in Southeastern Idaho, USA // J. Radioanalyt. Nucl. Chem. 1997. V. 226. № 1–2. P. 217–220.
- 86. *Kimber R.L., Corkhill C.L., Amos S. et al.* Geochemical association of Pu and Am in selected host-phases of contaminated soils from the UK and their susceptibility to chemical and microbiological leaching // J. Environ. Radioact. 2015. V. 142. P. 96–102. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.01.008
- 87. Горяченкова Т.А., Павлоцкая Ф.И., Мясоедов Б.Ф., Емельянов В.В. Содержание и распределение плутония в почвах ближней зоны воздействия Белоярской АЭС // Атом. энергия. 1992. Т. 73. № 3. С. 229—233. [Goryachenkova Т.А., Pavlotskaya F.I., Myasoedov В.F., Emelyanov V.V. Content and distribution of plutonium in the soils of the near zone of influence of the Beloyarsk NPP // Atom. Energy. 1992. V. 73. № 3. Р. 229—233. (In Russian)]
- 88. *Livens F.R.*, *Baxter M.S.* Chemical Associations of Artificial Radionuclides in Cumbrian Soils // J. Environ. Radioact. 1988. № 7. P. 75–86.

- 89. Основные итоги выполнения научного раздела Государственной программы Республики Беларусь по минимизации и преодолению последствий катастрофы на Чернобыльской АЭС на 1996-2000 гг. за 1996 год / Под ред. акад. Е.Ф. Конопли, проф. И.В. Ролевича. Минск: Министерство по чрезвычайным ситуациям Республики Беларусь, Институт радиобиологии Национальной академии наук Беларуси, OOO "Белсэнс", 1997. 202 c. [The main results of the implementation of the scientific section of the State program of the Republic of Belarus on minimization and overcoming the consequences of the disaster at the Chernobyl nuclear power plant for 1996— 2000. for 1996 / Ed. acad. E.F. Hemp, prof. I.V. Rolevich. Minsk: Ministry of Emergency Situations of the Republic of Belarus, Institute of Radiobiology of the National Academy of Sciences of Belarus, LLC "Belsens", 1997. 202 p. (In Russian)]
- 90. Научно-технический отчет о выполнении 4 этапа Государственного контракта № 14.740.11.1047 от 23 мая 2011 г. Дополнению от 19 марта 2012 г. № 1 Доступно по: http://www.geokhi.ru/PublishingImages. [Scientific and technical report on the implementation of the 4th stage of the State Contract № 14.740.11.1047 of May 23, 2011 Addition of March 19, 2012 № 1. Available at: http://www.geokhi.ru/PublishingImages/ (In Russian)]
- 91. *Горяченкова Т.А.*, *Казинская И.Е.*, *Лавринович Е.А.*, *Новиков А.П.* Формы нахождения искусственных радионуклидов в почвах // Радиоактивность и радиоактивные элементы в среде обитания человека: Мат. IV Междунар. конф., г. Томск, 4—8 июня 2013 г. С. 151—154. [*Goryachenkova T.A.*, *Kazinskaya I.E.*, *Lavrinovich E.A.*, *Novikov A.P.* Forms of finding artificial radionuclides in soils / Radioactivity and radioactive elements in the human environment. Materials of the IV International Conference. Tomsk. June 4—8, 2013. P. 151—154. (In Russian)]
- 92. Болсуновский А.Я., Горяченкова Т.А., Черкезян В.О. и др. Горячие частицы в Красноярском крае // Радиохимия. 1998. № 40 (3). С. 271—274. [Bolsunovsky A.Ya., Goryachenkova T.A., Cherkezyan V.O. et al. Hot particles in the Krasnoyarsk Territory // Radiochemistry. 1998. № 40 (3). Р. 271—274. (In Russian)]
- 93. *Гримченко 3.Г., Кузнецов Ю.В., Легин В.К. и др.* "Горячие" частицы 2-го рода в пойменных почвах реки Енисей // Радиохимия. 2001. № 43 (6). С. 639—642. [*Gritchenko Z.G., Kuznetsov Yu.V., Legin V.K. et al.* "Hot" particles of the second kind in the floodplain soils of the Yenisei River // Radiochemistry. 2001. № 43 (6). Р. 639—642. (In Russian)]
- 94. Горлачев И.Д., Квочкина Т.Н., Князев Б.Б., Лукашенко С.Н. Исследование и систематизация "горячих" частиц в почвах Семипалатинского испытательного полигона // Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана: Сборник трудов Национального ядерного центра Республики Казахстан за 2010 г.] / Под рук. С.Н. Лукашенко. Вып. 3. Т. 2. Павлодар: Домпечати, 2011. С. 11—59. [Gorlachev I.D., Kvochkina T.N., Knyazev B.B., Lukashenko S.N. Research and systematization of "hot" particles in the soils of the Semipalatinsk test site // Topical issues of radioecology in Kazakhstan: Proc. of

- the National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan for 2010. / Ed. S. N. Lukashenko. Issue 3. V. 2. Pavlodar: Dom pechati, 2011. P. 11–59 (In Russian)]
- 95. Lukashenko S., Kabdyrakova A., Lind O.C. et al. Radioactive particles released from different sources in the Semipalatinsk Test Site // J. Environ. Radioact. 2020. V. 216. P. 106160. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106160
- 96. Материалы исследований, связанных с ликвидацией последствий аварии на Чернобыльской АЭС (1986—1992 гг.) / Госкорпорация "Росатом", ФГУП "НПО "Радиевый институт им. В.Г. Хлопина"". СПб., 2009. 248 с. (Труды радиевого института им. В.Г. Хлопина. Т. XIV. 2009). [Research materials related to the elimination of the consequences of the accident at the Chernobyl nuclear power plant (1986—1992) / State Corporation "Rosatom", NPO "Radium Institute named after. V.G. Khlopin". SPb., 2009. 248 p. (In Russian)]
- 97. Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана. Вып. 1. Радиоэкологическое состояние "северной" части территории Семипалатинского испытательного полигона / Под. Рук. Лукашенко С.Н. Павлодар: Дом печати, 2010. 234 с. [Topical issues of radioecology in Kazakhstan. Issue 1. Radioecological state of the "northern" part of the territory of the Semipalatinsk test site / Ed. S.N. Lukashenko. Pavlodar: Dom pechati, 2010. 234 p. (In Russian)]
- 98. *Hoo W.T., Fifield L.K., Tims S.G. et al.* Using fallout plutonium as a probe for erosion assessment // J. Environ. Radioact. 2011. V. 102. P. 937–942.
- 99. Jian Zheng, Masatoshi Yamada, Fengchang Wu, Haiqing Liao. Characterization of Pu concentration and its isotopic composition in soils of Gansu in northwestern China // J. Environ. Radioact. 2009. V. 100. P. 71–75.
- 100. *Luksiene B., Maceika E., Tarasiuk N., et al.*On peculiarities of vertical distribution of ^{239,240}Pu, ²³⁸Pu and ¹³⁷Cs activity concentrations and their ratios in lake sediments and soils // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2014. V. 300. P. 277–286. https://doi.org/10.1007/s10967-014-3026-0
- 101. *Abraham J., Meusburger K., Kobler Waldis J. et al.* Fate of ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr and ²³⁹⁺²⁴⁰Pu in soil profiles at a water recharge site in Basel, Switzerland // J. Environ. Radioact. 2018. V. 182. P. 85–94. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.11.019
- 102. Атлас Восточно-Уральского и Карачаевского радиоактивных следов, включая прогноз до 2047 года / Под ред. Ю.А. Израэля. М.: ИГКЭ Росгидромета и РАН, Фонд "Инфосфера" НИА-Природа, 2013. 140 с. [Atlas of the East Ural and Karachay radioactive trace including forecast up to 2047 / Ed. Yu.A. Izrael. M.: IGCE Roshydromet and RAS, "Infosphere" Foundation, 2013. 140 p. (In Russian)]
- 103. Чеботина М.Я., Пономарева Р.П., Трапезников А.В. Дисперсность частиц плутония в производственных процессах и в окружающей среде. Екатеринбург: АкадемНаука, 2017. 112 с. [Chebotina M.Ya., Ponomareva R.P., Trapeznikov A.V. Dispersion of plutonium particles in industrial processes and in the environment. Yekaterinburg: Publishing house "AcademNauka", 2017. 112 p. (In Russian)]

- 104. Израэль Ю.А. Радиоактивное загрязнение природных сред при подземных ядерных взрывах и методы их прогнозирования / Ред. Ю.А. Израэль, В.Н. Петров, А.Я. Прессман и др. Л.: Гидрометеоиздат, 1970. 68 с. [Izrael Yu.A. Radioactive contamination of natural environments during underground nuclear explosions and methods for their prediction / Ed. Yu. A. Izrael, V. N. Petrov, A. Ya. Pressman, et al. L.: Gidrometeoizdat, 1970. 68 p. (In Russian)]
- 105. Lee M.H., Lee C.W. Boo B.H. Distribution and characteristics of 239,240Pu and 137Cs in the soil of Korea // J. Environ. Radioact. 1997. V. 37. № 1. P. 1–16. https://doi.org/10.1016/s0265-931x(96)00080-x
- 106. Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана. Вып. 6. Сборник трудов Национального ядерного центра Республики Казахстана 2014—2016 г. / Под рук. С.Н. Лукашенко. Павлодар: Дом печати, 2017. 436 с. [Topical issues of radioecology in Kazakhstan. Issue 6. Proceedings of the National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan for 2014—2016 / Ed. S.N. Lukashenko. Pavlodar: Dom pechati, 2017. 436 p. (In Russian)]
- 107. *Кривохатский А.С., Смирнова Е.А., Савоненков В.Г. и др.* Выщелачивание радионуклидов из частиц ядерного топлива и реакторного графита, выделенных из проб 30-километровой зоны Чернобыльской АЭС. Результаты по выщелачиванию радионуклидов на 1989—1991гг. // Радиохимия. 1992. № 34 (5). С. 92—101. [Krivokhatskiy A.S., Smirnova E.A., Savonenkov V.G. et al. Leaching of radionuclides from particles of nuclear fuel and reactor graphite, isolated from samples of the 30-km zone of the Chernobyl nuclear power plant. Results on leaching of radionuclides for 1989—1991 // Radiochemistry. 1992. № 34 (5). Р. 92—101. (In Russian)]
- 108. *Little C.A.* Plutonium Distribution in RockyFlats Soil // Health Phys. 1978. V. 34. № 5. P. 451–457.
- 109. Kabdyrakova A.M., Lukashenko S.N., Mendubaev A.T. et al. Distribution of artificial radionuclides in particle-size fractions of soil on fallout plumes of nuclear explosions // J. Environ. Radioact. 2018. V. 186. P. 45–53.
- 110. Eigl R., Srncik M., Steier P., Wallner G. ²³⁶U/²³⁸U and ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu isotopic ratios in small (2 L) sea and river water samples // J. Environ. Radioact. 2013. V. 116. P. 54–58. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2012.09.013
- 111. *Yamada M., Zheng J., & Wang Z.-L.*²⁴⁰Pu/²³⁹Pu atom ratios in seawater from Sagami Bay, western Northwest Pacific Ocean: sources and scavenging // J. Environ. Radioact. 2007. V. 98. № 3. P. 274—284. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2007.05.005
- 112. *Oikawa S., Watabe T., Inatomi N. et al.* Plutonium isotopes concentration in seawater and bottom sediment off the Pacific coast of Aomori sea area during 1991—2005 // J. Environ. Radioact. 2011. V. 102. № 3. P. 302—310. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2010.12.007
- 113. Анисович К.В., Бондаренко Л.Г., Важенина Е.В. и др. Радиоактивность морской воды в переходной зоне течений Куросио и Курильского через три года после аварии на АЭС Фукусима-1: Препринт РИ-269 / Радиевый институт им. В.Г. Хлопина.

- СПб., 2015. 32 с. [Anisovich K.V., Bondarenko L.G., Vazhenina E. V. et al. Radioactivity of sea water in the transition zone of the Kuroshio and Kuril currents three years after the accident at the Fukushima-1 NPP: Preprint RI-269 / Radium Institute them. V.G. Khlopin. SPb., 2015. 32 p. (In Russian)]
- 114. Worldwide marine radioactivity studies (WOMARS). Radionuclide levels in oceans and seas. Final report of a coordinated research project, IAEA –TECDOC-1429. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2005.
- 115. Isotopes in Hydrology, Marine Ecosystems and Climate Change Studies / Proceedings of an International Symposium, Monaco, 27 March –1 April 2011. V. 1. P. 1. IAEA–2013.
- 116. Hallstadius L., Aarkrog A., Dahlgaard H. et al. Plutonium and americium in arctic waters, the North Sea and Scottish and Irish coastal zones // J. Environ. Radioact. 1986. V. 4. № 1. P. 11–30. https://doi.org/10.1016/0265-931x(86)90018-4
- 117. *Hirose K., Amano H., Baxter M.S. et al.* Anthropogenic radionuclides in seawater in the East Sea/Japan Sea: Results of the first-stage Japanese–Korean–Russian expedition // J. Environ. Radioact. 1999. V. 43. № 1. P. 1–13. https://doi.org/10.1016/s0265-931x(98)00012-5
- 118. Strand P., Nikitin A., Rudjord A.L. et al. Survey of artificial radionuclides in the Barents Sea and the Kara Sea // J. Environ. Radioact. 1994;25. № 1–2. P. 99–112.
 - https://doi.org/10.1016/0265-931x(94)90010-8
- 119. *Molero J., Sanchez-Cabeza J.A., Merino J. et al.* Particulate distribution of plutonium and americium in surface waters from the Spanish Mediterranean coast // J. Environ. Radioact. 1995. V. 28. № 3. P. 271—283. https://doi.org/10.1016/0265-931x(95)97299-r
- 120. Travkina A.V., Goryachenkova T.A., Borisov A.P. et al. Monitoring the environmental contamination of Kara Sea and shallow bays of Novaya Zemlya // J. Radio-analyt. Nucl. Chem. 2017. V. 311. № 3. P. 1673—1680. https://doi.org/10.1007/s10967-016-5163-0
- 121. *Nikitin A.I., Chumichev V.B., Valetova N.K. et al.* The current content of artificial radionuclides in the water of the Tobol–Irtysh river system (from the mouth of the Iset River to the confluence with the Ob River) // J. Environ. Radioact. 2007. V. 96. № 1–3. P. 138–143. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2007.01.023
- 122. *Tereshchenko N.N., Gulin S.B., Proskurnin V.Y.* Distribution and migration of ^{239 + 240}Pu in abiotic components of the Black Sea ecosystems during the post-Chernobyl period // J. Environ. Radioact. 2018. V. 188. P. 67–78. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.10.002
- 123. Vintró L.L., Mitchell P.I., Condren O.M. et al. Vertical and horizontal fluxes of plutonium and americium in the western Mediterranean and the Strait of Gibraltar // Sci. Total Environ. 1999. V. 237/238. P. 77–91. https://doi.org/10.1016/s0048-9697(99)00126-6
- 124. *Molero J., Sanchez-Cabeza J.A., Merino J. et al.* Vertical distribution of radiocaesium, plutonium and americium in the Catalan Sea (northwestern Mediterra-

- nean) // J. Environ. Radioact. 1995. V. 26. № 3. P. 205–216. https://doi.org/10.1016/0265-931x(94)00033-s
- 125. *Suseno H., Wisnubroto D.S.* Radioecologycal study of ^{239/240}Pu in Bangka Island and Muria Peninsula: Determination of ^{239/240}Pu in marine sediment and seawater as part of baseline data collecting for sitting of candidates of first Indonesia NPP. 2014. https://doi.org/10.1063/1.4868814
- 126. Wu J., Dai M., Xu Y., Zheng J. Sources and accumulation of plutonium in a large Western Pacific marginal sea: The South China Sea // Sci. Total Environ. 2018. V. 610/611. P. 200–211. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.07.226
- 127. Herrmann J., Nies H., Goroncy I. Plutonium in the Deep Layers of the Norwegian and Greenland Seas // Radiat. Prot. Dosim. 1998. V. 75. № 1–4. P. 237–245.
- 128. Povinec P.P., Aarkrog A., Buesseler K.O. et al. ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs and ^{239,240}Pu concentration surface water time series in the Pacific and Indian Oceans WOMARS results // J. Environ. Radioact. 2005. V. 81. № 1. P. 63—87. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2004.12.003
- 129. Livingston H.D., Povinec P.P., Ito T., Togawa O. The behaviour of plutonium in the Pacific Ocean // Radioact. Environ. 2001. https://doi.org/10.1016/s1569-4860(01)80019-x
- 130. *Nagaya Y.*, & *Nakamura K*. ^{239,240}Pu and ¹³⁷Cs in the East China and the Yellow Seas // J. Oceanography. 1992. V. 48. № . P. 23–35. https://doi.org/10.1007/bf02234030
- 131. *Alberts J.J., Pinder J.E., Bowling J.W. et al.* ^{239,240}Pu, ²⁴¹Am and ²³²Th in lakes: The effects of seasonal anoxia // J. Environ. Radioact. 1986. V. 4. № 3. P. 167–176. https://doi.org/10.1016/0265-931x(86)90009-3
- 132. *Mitchell P.I.*, *Condren O.M.*, *Vintró L.L.*, *McMaho C.A.*Trends in plutonium, americium and radiocaesium accumulation and long-term bioavailability in the western Irish Sea mud basin // J. Environ. Radioact. 1999. V. 44. № 2–3. P. 223–251. https://doi.org/10.1016/s0265-931x(98)00135-0
- 133. Assinder D.J., Kelly M., Aston S.R. Tidal variations in dissolved and particulate phase radionuclide activities in the Esk estuary, England, and their distribution coefficients and particulate activity fractions // J. Environ. Radioact. 1985. V. 2. № 1. P. 1–22. https://doi.org/10.1016/0265-931x(85)90022-0
- 134. *Hamilton-Taylor J., Kelly M., Mudge S., Bradshaw K.*Rapid remobilisation of plutonium from estuarine sediments // J. Environ. Radioact. 1987. V. 5. № 6. P. 409–423. https://doi.org/10.1016/0265-931x(87)90017-8
- 135. *Silver G.L.* Plutonium oxidation states in seawater // Appl. Radiat. Isotop. 2001. V. 55. № 4. P. 589–594. https://doi.org/10.1016/s0969-8043(01)00097-5
- 136. *Walther C., Gupta D. K.* (Eds.). Radionuclides in the Environment. 2015. https://doi.org/10.1007/978-3-319-22171-7

- 137. *Nelson D.M., Orlandini K.A., Penrose W.R.* Oxidation States of Plutonium in Carbonate-Rich Natural Waters // J. Environ. Radioact. 1989. V. 9. P. 189–198.
- 138. *Morse J.W., Choppm G.R.* Laboratory studies of plutonium in marine systems // Marine Chem. 1986. V. 20. P. 73–89. https://doi.org/10.1016/0304-4203(86)90067-8
- 139. *Silva R.J.*, *Nitsche H.* Actinide Environmental Chemistry // Radiochim. Acta. 1995. V. 70/71. P. 377–396. https://doi.org/10.1524/ract.1995.7071.s1.377
- 140. Choppin G.R., Kobashi A. Distribution of Pu(V) and Pu(VI) in seawater // Marine Chem. 1990. V. 30. P. 241–247.
- 141. *Choppin G., Bond A., Hromadka P.* Redox Speciation of Plutonium // J. Radioanal. Nucl. Chem. 1997. V. 219. № 2. P. 203–210.
- 142. Sanchez A.L., Gastaud J., Holm E., Roos P. Distribution of Plutonium and its oxidation states in Framvaren and Hellvik fjords, Norway // J. Environ. Radioact. 1994. V. 22. № 3. P. 205–217. https://doi.org/10.1016/0265-931x(94)90082-5
- 143. *Andelman J.B., Rozzell T.C.* Plutonium in the Water Environment I. Characteristics of Aqueous Plutonium // Radionucl. Environ. 1970. P. 118–137. https://doi.org/10.1021/ba-1970-0093.ch008
- 144. *Будников Г.К.* Тяжелые металлы в экологическом мониторинге водных систем // Сорос. образов. журн. 1998. № 5. С. 23–29. [*Budnikov G.K.* Heavy metals in environmental monitoring of water systems // Soros Educat. J. 1998. № 5. Р. 23–29. (In Russian)]
- 145. Папина Т.С. Транспорт и особенности распределения тяжелых металлов в ряду: вода взвешенное вещество донные отложения речных экосистем: Аналитический обзор (Монография). Новосибирск: ИВЭП СО РАН, 2001. 58 с. [Papina T.S. Transport and distribution characteristics of heavy metals in the series: water suspended matter bottom sediments of river ecosystems: Analytical review (Monograph). Novosibirsk: IWEP SB RAS, 2001. 58 p. (In Russian)]
- 146. *Lydersen E*. Trace element speciation in natural waters using hollow-fiber ultrafiltration / Ed. E. Lydersen, H.E. Bjornstad, B. Salbu, A.C. Pappas // Speciation Springer of Metals in Water, Sediment and Soil Systems. Berlin; Heidelberg: Springer, 1987. P. 85–97.
- 147. *Петрянов-Соколов И.В.* Коллоидная химия и научно-технический прогресс. М., 1988. 178 с. [*Pet-ryanov-Sokolov I.V.* Colloidal chemistry and scientific and technological progress. M., 1988. 178 p. (In Russian)
- 148. *Торопов А.С.* Содержание плутония и формы его нахождения в штольневых водотоках площадки "Дегелен" Семипалатинского испытательного полигона / Ред. А.С. Торопов; науч. рук. Л.П. Рихванов // Творчество юных шаг в успешное будущее: Мат. VIII Всерос. науч. студ. конф. с элементами научной школы им. проф. М.К. Коровина, г. Томск, 23—27 ноября 2015 г. Томск: Изд-во ТПУ, 2015. С. 274—276. [*Toropov A.S.* Plutonium content and forms of its occurrence in adit watercour-

- ses of the "Degelen" site of the Semipalatinsk test site / Ed. A.S. Toropov; scientific. hands. L.P. Rikhvanov // Creativity of young people a step into a successful future: materials of the VIII All-Russian scientific student conference with elements of the scientific school named after prof. M.K. Korovin, Tomsk, November 23–27, 2015. Tomsk: Publishing house TPU, 2015. P. 274–276. (In Russian)]
- 149. Торопов А.С. Формы нахождения техногенных радионуклидов в природных водах Семипалатинского испытательного полигона: автореферат диссертации на соискание ученой степени кандидата геолого-минералогических наук: спец. 25.00.09 / Науч. рук. Л.П. Рихванов. Томск: Нац. Исслед. Томский политех. ун-т (ТПУ), 2018. 21 с. [Тогоро А.S. Forms of finding technogenic radionuclides in natural waters of the Semipalatinsk test site: dissertation abstract for the degree of candidate of geological and mineralogical sciences: spec. 25.00.09 / Scientific. hands. L.P. Rikhvanov. Tomsk: National Research Tomsk Polytechnic University (TPU), 2018. 21 p. (In Russian)]
- 150. *Molero J., Sanchez-Cabeza J.A.,Merino J. et al.* Particulate distribution of plutonium and americium in surface waters from the Spanish Mediterranean coast // J. Environ. Radioact. 1995. V. 28. № 3. P. 271–283.
- 151. *Holm E., Ballestra S., Fukai R. Beasley T.M.* Particulate Plutonium and Americium in Mediterranean Surface Waters // Oceanol. Acta. 1980. V. 2. P. 157–160.
- 152. *Nevissi A.*, *Schell W. R.* Distribution of Plutonium and Americium in Bikini Atoll Lagoon // Health Phys.1975. V. 28. P. 539–547.
- 153. *Mitchell P.I., Batlle J.V., Ryan T.P. et al.* Studies on the Speciation of Plutonium and Americium in the Western Irish Sea // Radionuclides in the Study of Marine Processes. 1991. P. 37—51. https://doi.org/10.1007/978-94-011-3686-0 5
- 154. *Mitchell P.I., Batlle J.V., Ryan T.P. et al.* Plutonium, americium and radiocaesium in sea water, sediments and coastal soils in Carlingford Lough // Radionuclides in the Study of Marine Processes. 1991. P. 265–275. https://doi.org/10.1007/978-94-011-3686-0_28
- 155. *Hetherington J.A.* The Uptake of Plutonium Nuclides by Marine Sediments // Marine Sci. Communicat. 1978. V. 4. № 3. P. 239–274.
- 156. Sanchez A., Sanchez A.Z., Gastaud J. et al. Plutonium oxidation states in the southwestern Black Sea: evidence regarding the origin of the cold intermediate layer // Deep Sea Res. 1991. V. 38. № 2. P. 845–853.
- 157. Терещенко Н.Н., Поликарпов Г.Г., Лазоренко Г.Е. Радиоэкологическая ситуация в Черном море в отношении плутония: уровни загрязнения компонентов экосистемы и дозовые нагрузки на биоту // Морський екол. журн. 2007. Т. VI. № 2. С. 25—38. [Tereshchenko N.N., Polikarpov G.G., Lazorenko G.E. Radioecological Situation in the Black Sea with regard to Plutonium: Levels of Contamination of Ecosystem Components and Dose Loads on Biota // Marine Ecol. J. 2007. V. VI. № 2. Р. 25—38 (In Russian)]

- 158. Nagaoka M., Yokoyama H., Fujita H. et al. Spatial distribution of radionuclides in seabed sediments off Ibaraki coast after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident // J. Radioanalyt. Nucl. Chem. 2014. V. 303. № 2. P. 1305–1308. https://doi.org/10.1007/s10967-014-3633-9
- 159. *Bu W., Zheng J., Guo Q. et al.* Temporal distribution of plutonium isotopes in marine sediments off Fukushima after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident // J. Radioanalyt. Nuclear Chem. 2014. V. 303. № 2. P. 1151–1154. https://doi.org/10.1007/s10967-014-3437-y
- 160. *Lee M.H.*, *Lee C.W.*, *Moon D.S. et al.* Distribution and inventory of fallout Pu and Cs in the sediment of the East Sea of Korea // J. Environ. Radioact. 1998. V. 41. № 2. P. 99–110. https://doi.org/10.1016/s0265-931x(98)00011-3
- 161. *Mietelski J.W., Wojtycza J., Zalewski M. et al.* Plutonium and thorium isotopes in the bottom sediments of some Mazurian Lakes (Poland) // J. Radioanalyt. Nucl. Chem. 2018. https://doi.org/10.1007/s10967-018-6300-8
- 162. Ordóñez-Regil E., Almazán-Torres M.G., Sanchez-Cabeza J.A., Ruiz-Fernández A.C. Presence of uranium and plutonium in marine sediments from gulf of tehuantepec, Mexico // J. Radioanalyt. Nucl. Chem. 2013. V. 298. № 2. P. 981–986. https://doi.org/10.1007/s10967-013-2496-9
- 163. *Pan S.M.*, *Tims S.G.*, *Liu X.Y.*, *Fifield L.K.* ¹³⁷Cs, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu concentrations and the ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu atom ratio in a sediment core from the sub-aqueous delta of Yangtze River estuary // J. Environ. Radioact. 2011. V. 102. № 10. P. 930–936. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2010.05.012
- 164. *Alonso-Hernández C.M.*, *Martin-Perez J.*, *Gasco C. et al.* Vertical distribution and inventories of ^{239 + 240}Pu and mercury in Sagua la Grande estuary, Cuba // J. Environ. Radioact. 2012. V. 112. P. 23–28. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2012.03.004
- 165. *Skipperud L., Brown J., Fifield L.K. et al.* Association of plutonium with sediments from the Ob and Yenisey Rivers and Estuaries // J. Environ. Radioact. 2009. V. 100. № 4. P. 290–300. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2008.12.016
- 166. *Dong W., Zheng J., Guo Q. et al.* Characterization of plutonium in deep-sea sediments of the Sulu and South China Seas // J. Environ. Radioact. 2010. V. 101. № 8. P. 622–629. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2010.03.011
- 167. Lujanienė G., Remeikaitė-Nikienė N., Garnaga G. et al. Transport of 137Cs, 241Am and Pu isotopes in the Curonian Lagoon and the Baltic Sea // J. Environ. Radioact. 2014. V. 127. P. 40–49. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2013.09.013
- 168. *Yeager K.M., Santschi P.H., Rowe G.T.* Sediment accumulation and radionuclide inventories (^{239,240}Pu, ²¹⁰Pb and ²³⁴Th) in the northern Gulf of Mexico, as influenced by organic matter and macrofaunal density // Marine Chem. 2004. V. 91. № 1–4. P. 1–14. https://doi.org/10.1016/j.marchem.2004.03.016

- 169. *Gascó C., Antón M.P., Pozuelo M. et al.* Distribution and inventories of fallout radionuclides (^{239 + 240}Pu, ¹³⁷Cs) and ²¹⁰Pb to study the filling velocity of salt marshes in Doñana National Park (Spain) // J. Environ. Radioact. 2006. V. 89. № 2. P. 159–171. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2006.05.004
- 170. Wang R., Fu Y., Lei L., Li G., Liu Z. Distribution and Source Identification of Pu in River Basins in Southern China // ACS Omega. 2019. https://doi.org/10.1021/acsomega.9b03650
- Gascó C., Romero L., Mingarro E., Lobo A.M. Geochemical aspects and distribution of long-lived radionuclides in marine sediments from Palomares // J. Radioanalyt. Nucl. Chem. 1992. V. 161. P. 389–400.
- 172. *Matishov G.G., Matishov D.G., Namjatov A.A. et al.* Anthropogenic radionuclides in Kola and Motovsky Bays of the Barents Sea, Russia // J. Environ. Radioact. 1999. V. 43. № 1. P. 77–88. https://doi.org/10.1016/s0265-931x(98)00096-4
- 173. Quantification of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments for radiological assessments. IAEA -TECDOC-1616. Vienna: IAEA, 2009. C. 155–178.
- 174. Кожаханов Т.Е., Лукашенко С.Н., Ларионова Н.В. и др. Особенности накопления техногенных радионуклидов сельскохозяйственными культурами в районе проведения наземных ядерных испытаний // Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана: Сборник трудов Национального ядерного центра Республики Казахстан за 2010 г. / Под рук. С.Н. Лукашенко. Вып. 3. Т. 2. Павлодар: Домпечати, 2011. C. 59-84. [Features of the accumulation of technogenic radionuclides by agricultural crops in the area of ground nuclear tests // Topical issues of radioecology of Kazakhstan: Proceedings of the National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan for 2010 / Ed. S.N. Lukashenko. Issue 3. T. 2. Pavlodar: Dompechati, 2011. P. 59-84. (In Russian)]
- 175. *Kozhahanov T.E., Lukashenko S.N., Larionova N.V.*Accumulation of artificial radionuclides in agricultural plants in the area used for surface nuclear tests // J. Environ. Radioact. 2014. V. 137. P. 217–226.
- 176. *Nisbet A.F., Shaw S.* Summary of a Five-Year Lysimeter Study on the Time Dependent Transfer of ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ^{239,240}Pu and ²⁴¹Am to Crops from Three Contrasting Soil Types. 2 Distribution Between Different Plant Parts // J. Environ. Radioact. 1994. V. 23. P. 171–187.
- 177. Larionova N.V., Lukashenko S.N., Kabdyrakova A.M. et al. Transfer of radionuclides to plants of natural ecosystems at the Semipalatinsk Test Site // J. Environ. Radioact. 2018. V. 186. P. 63–70.
- 178. Youyi Ni, Zhongtang Wang, Jian Zheng et al. The transfer of fallout plutonium from paddy soil to rice: A field study in Japan // J. Environ. Radioact. 2019. V. 196. P. 22–28.
- 179. *Hogye Z., Schlesingerova E., Suchara I.* Retrospective determination of ²³⁸Pu, ^{239,240}Pu and ⁹⁰Sr activities in the outer bark of Norway spruce (Piceaabies (L.) Karst.)

- collected at various sites in the Czech Republic // J. Radioanalit. Nucl. Chem. 2013. V. 297. P. 19–25.
- 180. *Carini F.* Radionuclides in plants bearing fruit: an overview // J. Environ. Radioact. 1999. V. 46. P. 77–97.
- 181. *Nisbet A.F., Shaw S.* Summary of a 5-Year Lysimeter Study on the Time Dependent Transfer of ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ^{239,240}Pu and ²⁴¹Am to Crops From Three Contrasting Soil Types: 1. Transfer to the Edible Portion // J. Environ. Radioact. 1994. V. 23. P. 1–17.
- 182. *Guillen J., Munoz G., Baeza A. et al.* Attempt to reduce ²³⁹Pu and ²⁴¹Am uptake by wheat plantlets by application of inorganic fertilizers // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2017. V. 311. P. 991–997.
- 183. Whicker F.W., Hinton T.G., Orlandini K.A., Clark S.B. Uptake of natural and anthropogenic actinides in vegetable crops grown on a contaminated lake bed // J. Environ. Radioact. 1999. V. 45. P. 1–12.
- 184. International Atomic Energy Agency (IAEA), 2014. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer to Wildlife. Technical Reports Series № 479. Vienna: IAEA, 2014. http://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/Trs479 web.pdf
- 185. Леонова Г.А., Торопов А.В., Бобров В.А., Маликов Ю.И. Техногенные радионуклиды в экосистеме Нижней Томи // Электронный научный журнал "Исследовано в России". Доступно по: http2106://zhurnal.ape.relarn.ru/articles/2005/206.pdf. Ссылка активна на: 18.08.2020. [Leonova G.A., Toropov A.V., Bobrov V.A., Malikov Yu.I. Technogenic radionuclides in the ecosystem of the Lower Tom // Electronic scientific journal "Investigated in Russia". Available at: http2106://zhurnal.ape.relarn.ru/articles/2005/206.pdf. Accessed: 18.08.2020 (In Russian)]
- 186. *Johansen M.P., Kamboj S., Kuhne W.W.* Whole-organism concentration ratios for plutonium in wildlife from past US nuclear research data // J. Environ. Radioact. 2013. V. 126. P. 412–419. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2012.07.015
- 187. Sediment Kds and concentration Factors for Radionuclides in the Marine Environment. Technical Report Series № 247. Vienna: IAEA, 1985.
- 188. *Swift D.* A laboratory study of ^{239,240}Pu, ²⁴¹Am and ^{243,244}Cm depuration by edible winkles (Littorina littorea L.) from the Cumbrian Coast (NE Irish Sea) radiolabelled by the Sellafield discharges // J. Environ. Radioakt. 1995. V. 27. P. 13–33. https://doi.org/10.1016/0265-931X(94)00015-O
- 189. Swift D.J., Pentreath R.J. The Accumulation of Plutonium by the Edible Winkle (Littorina littorea L.) // J. Environ. Radioact. 1988. V. 7. P. 29–48.
- 190. McDonald P., Baxter M.S., Fowler S.W. Distribution of Radionuclides in Mussels, Winkles and Prawns. Part 1. Study of Organisms under Environmental Conditions using Conventional Radio-analytical Techniques // J. Environ. Radioact. 1993. V. 18. P. 181–202.
- 191. *McDonald P., Baxter M.S., Fowler S.W.* Distribution of Radionuelides in Mussels, Winkles and Prawns. Part 2. Study of Organisms under Laboratory Conditions us-

- ing Alpha-autoradiography // J. Environ. Radioact. 1993. V. 18. P. 203–228.
- 192. Ryan T.P., Dowdall A.M., Long S. et al. Plutonium and americium in fish, shellfish and seaweed in the Irish environment and their contribution to dose // J. Environ. Radioact. 1999. V. 44. P. 349–369.
- 193. *Beresford N.A., Gaschak S., Maksimenko A., Wood M.D.*The transfer of ¹³⁷Cs, Pu isotopes and ⁹⁰Sr to bird, bat and ground-dwelling small mammal species within the Chernobyl exclusion zone // J. Environ. Radioact. 2016. V. 153. P. 231–236. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.12.027
- 194. Strumińska-Parulska D.I., Skwarzec B., Fabisiak J. Plutonium bioaccumulation in seabirds // J. Environ. Radioact. 2011. V. 102. № 12. P. 1105—1111. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2011.07.002
- 195. *Howard B.J., Lindley D.K.* Aspects of the uptake of radionuclides by sheep grazing on an estuarine saltmarsh. 2. Radionuclides in sheep tissues // J. Environ. Radioact. 1985. V. 2. № 3. P. 199–213. https://doi.org/10.1016/0265-931x(85)90009-8
- 196. Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical reports series, ISSN 0074−1914; № 472. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2010.
- 197. *Байгазинов Ж.А.* Исследование параметров перехода ^{239 + 240}Pu, ²⁴¹Am, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr и ³H в организм некоторых видов сельскохозяйственных животных и птиц в условиях Семипалатинского испытательного полигона: Автореф. дис. ... канд. биол. наук: 03.01.01. Обнинск, 2016. 24 с. [*Baygazinov Zh.A.* Investigation of the parameters of the transition of ^{239 + 240}Pu, ²⁴¹Am, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr and ³H into the organism of some species of farm animals and birds in the conditions of the Semipalatinsk test site: Author. discand. biol. Sci.: 03.01.01. Obninsk, 2016. 24 p. (In Russian)]
- 198. *Romanov S.A., Efimov A.V., Aladova E.E. et al.* Plutonium production and particles incorporation into the human body // J. Environ. Radioact. 2020. V. 211. P. 106073. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2019.106073
- 199. *Taylor D.M.* Environmental plutonium in humans // Appl. Radiat. Isotop. 1995. V. 46. № 11. P. 1245–1252. https://doi.org/10.1016/0969-8043(95)00167-c
- 200. *Плотникова Л.А.* Распределение ²³⁹Pu в организме человека // Радиация и риск. 1995. № 5 С. 61–67. [*Plotnikova A.A.* Biodistribution of ²³⁹Pu // Radiation and risk. 1995. № 5. Р. 61–67 (In Russian)]
- 201. *Байсоголов Г.Д.* Некоторые вопросы патогенеза клинического синдрома, развивающегося у лиц, контактирующих с соединениями ²³⁹Pu // Радиация и риск. 1995. № 5. С. 117—122. [*Baisogolov G.D.* Some questions of pathogenesis of clinical syndrome progressing by the persons contacting with compounds of ²³⁹Pu // Radiation and risk. 1995. V. 5. P. 117—122. (In Russian)]

Plutonium in the Environment: Sources, Dissemination Mechanisms, Concentrations

S. N. Lukashenko^a and M. A. Edomskaya^{a, #}

^a Russian Institute of Radiology and Agroecology, Obninsk, Russia [#]E-mail: maisher@mail.ru

The article summarizes information about the sources and mechanisms of plutonium releases into the environment. An overview of the values and distribution of global plutonium fallout, as well as data on industrial sources of plutonium isotopes releases to the environment is given. For this purpose, the plutonium emission as a result of nuclear explosions at test sites such as Nevada, STS, Novaya Zemlya, etc., as well as the extent of pollution of environmental objects as a result of the tests are considered. Data on the plutonium discharge due to nuclear and radiation accidents at the Chernobyl nuclear power plant, Fukushima, etc. is presented, and also the available information on the plutonium isotopes emissions due to accidents at the nuclear complex (Kyshtym accident, etc. is analyzed). Plutonium releasing as emissions and discharges of nuclear complex enterprises (Sellafield, GCK (Krasnoyarsk), etc.) is considered as well. The article summarizes and presents information about the levels and content of plutonium isotopes in various environments and environmental objects, as well as information about the parameters that characterize the migration of plutonium in various media of the environments and the transition between them. The plutonium species in soils (distribution by granulometric fractions, chemical forms, "hot" particles, etc.) are considered, and information about the characteristic levels of plutonium concentrations in soils for various objects is generalized. Data on plutonium concentrations in the air are presented. Information is provided on the plutonium species in the aquatic environment, as well as on the characteristic levels of plutonium concentrations in various water bodies, including the world's oceans. Information about the transition coefficients of plutonium isotopes in the "soil—plants" system is summarized. Special attention is paid to plutonium isotopes in biological objects and the human body. In general, the article will be useful for domestic and foreign specialists in the field of environmental protection and radioecology.

Keywords: Pu, plutonium isotopes, nuclear tests, nuclear accidents, migration, forms of occurrence, soil, aquatic environment, biological objects, human body, transfer coefficient, accumulations