

DOI: 10.20098/j.cnki.1001-5132.2024.0107

南海环境中 Pu、Np 的清除机制和空间迁移模拟研究

刘志勇¹, 韦小敏^{1,2}

(1.苏州大学 放射医学与辐射防护国家重点实验室, 江苏 苏州 215123;

2.广西大学 物理科学与工程技术学院, 广西 南宁 530004)

摘要: 海洋环境中 Pu、Np 两种放射性元素源自人类核活动。由于洋流、海陆交汇等多重效应导致 Pu、Np 被富集于边缘海区域, 威胁人类的环境安全。目前国内外对海洋中 Pu、Np 的研究未成体系, 研究方法多局限于含量分析。为研究河流输入量、地形、气候等因素对于海洋中 Pu、Np 清除效率的影响, 本文采用扇形磁场高分辨率质谱(SF-ICP-MS)对南海水体、沉积物中的 Pu、Np 比活度, $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 和 $^{237}\text{Np}/^{239}\text{Pu}$ 原子比进行精确分析。在模拟海洋生态环境和顺序提取实验基础上, 研究 Pu、Np 在海洋中的扩散问题。根据得到的 Pu、Np 比活度和同位素原子比等在水体、颗粒物以及沉积物中的分布数据, 拟合得到 Pu、Np 在南海传输和扩散的特征关键参数, 以解释南海海水中 Pu、Np 的清除机制。最后利用数据构建南海 Pu、Np 空间迁移与清除的稳态模型(S-ADE), 后续将通过模拟及现场取样分析对模型进行相互校验。研究结果可为核事故中 Pu、Np 等放射性污染物的溯源与迁移的快速分析与综合评估, 以及放射性污染防护与治理提供方案。

关键词: 中国南海; Pu、Np; 迁移和扩散; 清除过程; 模型模拟

中图分类号: P736.4

文献标志码: A

文章编号: 1001-5132 (2024) 04-0041-07

Np、Pu 的同位素对环境构成长期及潜在的放射性威胁。自 1954 年以来, 人类核活动造成的 Np、Pu 元素被释放到海洋、陆地和大气环境中, 海洋中不同区域的地球化学属性的差异造成了 Np、Pu 清除效率的区域性差异。了解 Np、Pu 在海洋中的清除机制对于海洋生态环境防护、人类活动对未来环境的影响以及核安全的科学研究等至关重要^[1]。

人工 Pu 同位素主要以 $^{238}\text{Pu}(T_{1/2}=87.7\text{ a})$ 、 $^{239}\text{Pu}(T_{1/2}=2.411\times 10^4\text{ a})$ 、 $^{240}\text{Pu}(T_{1/2}=6.561\times 10^3\text{ a})$ 、 $^{241}\text{Pu}(T_{1/2}=14.35\text{ a})$ 、 $^{242}\text{Pu}(T_{1/2}=3.75\times 10^5\text{ a})$ 为主; 而 $^{237}\text{Np}(T_{1/2}=2.2\times 10^6\text{ a})$ 寿命较长, 有“被忽视的锕系元素”之称。 ^{241}Am 通过 α 衰变生成 ^{237}Np 是环境中 Np 的重要来源之一, 其在环境中累计浓度较低, 但半衰期长、迁移速率高, 在核试验场、核反应堆、核废料中广泛分布, 生物毒性较大, 是一种主要的核污染物。由于大多数核活动发生在北半球, 继之

大气环流的作用, 海洋中的人工放射性元素的绝大部分被储存于北太平洋^[2-3], 这些储存在太平洋的 Pu、Np 元素经洋流运输, 被近岸特有的“海陆交汇”作用, 富集于中国近岸。

核设施的使用不当或自然灾害造成的大型核事故, 如 1986 年苏联切尔诺贝利核事故和 2011 年日本福岛核事故等, 向环境排放了大量核污染物质^[4-5]。2011 年福岛核事故造成的恶劣影响引发人们的广泛关注和思考, 福岛核污染水的排放对海洋环境造成的影响依然不明(图 1)^[4], 有待长期观测和评估。

进入到海洋中的放射性废物向地下水、沉积物以及海洋生物等多方转移, 影响环境安全, 对人类产生潜在威胁。因此, 研究核活动排放的 Pu、Np 等放射性物质在海洋中的物理化学过程十分重要, 对于环境辐射防护和核安全等意义重大。

收稿日期: 2024-01-05.

宁波大学学报(理工版)网址: <http://journal.gd.cn>

基金项目: 国家自然科学基金(42373006)。

第一作者: 刘志勇, 博士/教授, 主要研究方向: 同位素地球化学及环境放射化学. E-mail: liuzy@suda.edu.cn

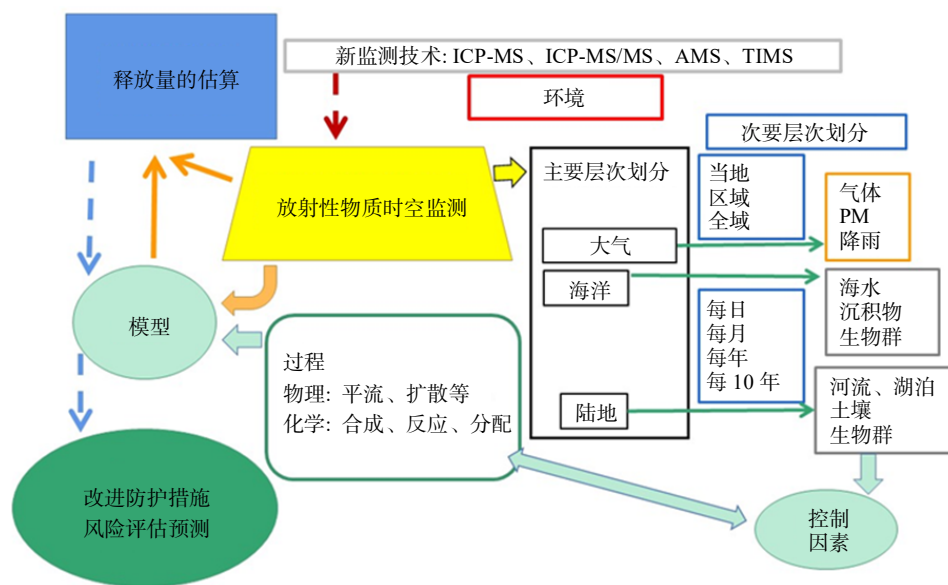


图1 福岛核事故的影响和模型预测系统^[4]

从热力学理论看,无论海洋环境如何变化,放射性元素在沉积物和海水都存在清除和溶解的化学反应平衡^[6-7],这种清除和溶解运输过程可以经过数学和物理方式予以预测和描述.清除作用的效率在近海和深海不同^[8],通常在太平洋中伴随着洋流的传输到达亚洲大陆的边缘海区域最为强烈.

Pu、Np在海洋环境中的运输和清除存在差异,不同来源的放射性污染物质混合使得海洋中不同区域的海水或沉积物中埋藏的Pu、Np同位素信息存在差异.因此,通过沉积物和海水中的同位素信息可以追踪Pu、Np在环境中的迁移动态,并可对环境变化进行一定程度的预测和示踪^[9].

1 环境中Pu、Np元素同位素比率的示踪意义及主要研究动向

Pu是94号元素,在物质传输过程中很难发生同位素分馏效应,将 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比用于放射性污染和洋流传输的示踪剂已有很长历史.同时,不同来源的Pu(来自近距离核武器试验沉降、大气平流层沉降和太平洋核试验场(PPG)沉降等)在大陆和海洋之间进行物质交换中发生混合,使得Pu同位素可以反映近70年来地球化学过程的变化.如全球沉降 $^{237}\text{Np}/^{239}\text{Pu}$ 的原子比为0.48, $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 的原子比为0.18^[3];切尔诺贝利核事故 $^{237}\text{Np}/^{239}\text{Pu}$ 和 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 的原子比分别为0.40~

0.44和0.027^[3,5,10];福岛核事故 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 的原子比为0.32~0.33^[11].Pu、Np化学性质的差异导致二者对环境变化的反映程度不一致,因而在同一区域Pu、Np的清除效率和对环境变化过程的反映不同,这主要体现在Pu、Np同位素比值、比活度、通量等空间分布的差异上. ^{237}Np 比活度、 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比、 $^{237}\text{Np}/^{239}\text{Pu}$ 原子比等数据是重要的同位素指纹记忆.因此,研究Np、Pu清除机制对于建立Np、Pu同位素指纹信息库(用于识别放射性污染事件)以及海洋洋流污染传输评估等非常重要.

自人类进行大规模核试验以来,出现了一系列放射性事故,放射性安全和放射性监测技术一直是研究热点之一,其中Pu、Np、Am的传输特征已被广泛研究.2004年,塞维利亚学者Toscano-Jimenez等^[5]把切尔诺贝利事件对波罗的海的影响进行了三维模拟,取得了 ^{137}Cs 扩散结果.2022年,日本放射线医学综合研究所Yamada等^[6]对西北太平洋海水中Pu的浓度和 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比的空间分布进行了调查,发现海水中Pu的扩散方式由海水表面向下扩散,而后在海水深处又溶解上升.2016年,西班牙Periáñez等^[7]通过数值模拟评估了 ^{137}Cs 在北大西洋的行为,与核燃料后处理工厂的释放、受污染沉积物的再溶解和倾倒核废料的泄漏等有关.这些研究对于海洋放射性元素的污染监测以及环境变化意义重大.

2014—2018年,厦门大学戴民汉对中国南海北部地区沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 沿大陆架向珠江河口的分布进行了调查,揭示了 $^{239+240}\text{Pu}$ 在中国南海北部的传输特征^[8]。2019—2021年,本研究团队对南海北部 ^{237}Np 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Am 进行了调查,并分析了该地区 ^{237}Np 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 的来源和迁移特征^[9]。2022年,兰州大学侯小琳对南海北部海南岛附近和珠江口西南部沉积物中Pu浓度的空间分布进行了调查,应用 ^{129}I 对南海的西边界流对河流传输物质的影响进行了研究^[10]。华东师范大学杜金洲对长江口Pu和 ^{137}Cs 的传输与埋藏通量进行了估算^[11]。另外,也有一些研究团队利用模型对海洋中其他污染物的扩散进行了模拟。虽然国内对海洋或者陆地的放射性元素也进行了较多研究,且陆地环境中的放射性研究已经体系化、全面化,但是对于海水和深海沉积物放射性研究仍不充分。Pu、Np在海洋的清除过程可以通过搭建一个预测海水中Pu、Np的垂直分布模拟模型得以实现,优势是可以运用少量的实验分析对突发事件进行更迅速、全面、准确的预测和评估。

2 研究区域特征与研究方法

2.1 研究区(南海)的环境特征

南海是中国最大的边缘海,东部通过吕宋海峡与太平洋进行物质交换,西南部与马六甲海峡和孟加拉湾连接,南部与苏禄海和东印度洋、南太平洋连接。陆地河流向海洋输送大量的沉积物,在河口区域有较强的海陆物质交换作用,这使得南海的沉积物具有丰富的物源信息(图2)。

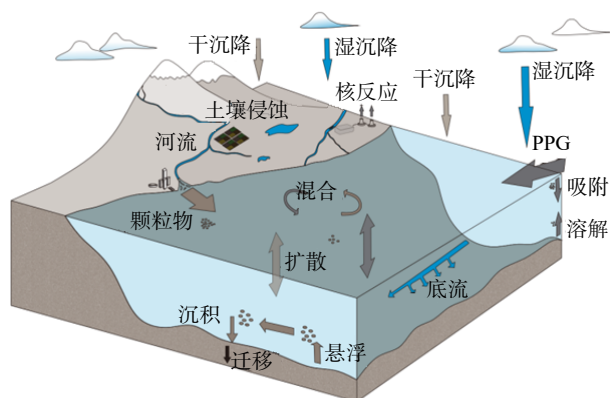


图2 南海Pu、Np传输及清除模式

南海海底是典型的盆地地形,使得南海具有

丰富的水体与沉积物发生物质交换的典型区域环境,如浅水河口型、远岸区以及深海区等。南海海洋流按照空间和时间呈现不同的特征^[12],这可以为研究海水中Pu、Np的清除过程提供丰富的环境类型^[13-14]。

2.2 研究方法设计

根据拉格朗日方程及元素在海洋运动的守恒性,运用合适的方法(顺序提取法和实验模拟,分析不同沉积物成分中放射性元素的含量),对影响Pu和Np迁移、扩散以及沉积因子、海岸距离、海底深度、海水温度及盐度等方便观测的物理量建立函数关系^[15-19]。海水中Pu、Np性质不同,Pu以四价为主,其他价态为三价、五价、六价;Np的价态为三价、四价、五价、六价,但是Np的四价和五价的还原电位在弱酸性条件下为 0.6V ^[12,20],这在一般环境中就足以达成,环境稍有变化,Np就会发生四价到五价的转换,进而容易溶解到流动相中。深海环境具有强还原性^[21],Np在沉积物中的固定机制与Pu有所区别。

将海水中Pu、Np的扩散和清除机制与改进的数据模型(S-CDE)相结合,能够使南海Pu、Np的空间分布评估变得相对全面、精准和快捷。浅海沉积物沉积模式和深海沉积物沉积模式略有不同,可根据颗粒物的清除模式并结合以往研究^[9,12],构建一次性沉积模型和循环悬浮再沉积模型来研究浅海沉积物。此外,在南海应用基础上,通过改进的数据模型或研究方法,可以将该模型广泛应用到其他海域,为将来可能发生的核事故及事件的调查、海洋核污染防治以及放射性同位素用于洋流示踪等多学科研究提供新途径。

3 Pu、Np清除机制和空间迁移模拟初步研究

3.1 研究框架与目标

本研究的框架与目标如图3所示,可将研究目标分为3个模块:(1)根据南海的海深以及与海岸线的距离确立采样点,用实验得出相应Pu、Np在海水和沉积物中的空间分布,并初步分析南海深海和浅海海水中的清除机制;根据沉积物中Pu、Np的垂直分布提出可能的沉积物沉积机制。(2)运用顺序提取方法,并结合吸附等其他放射化学分析进行相应的模拟实验,测量不同氧化还原条件下

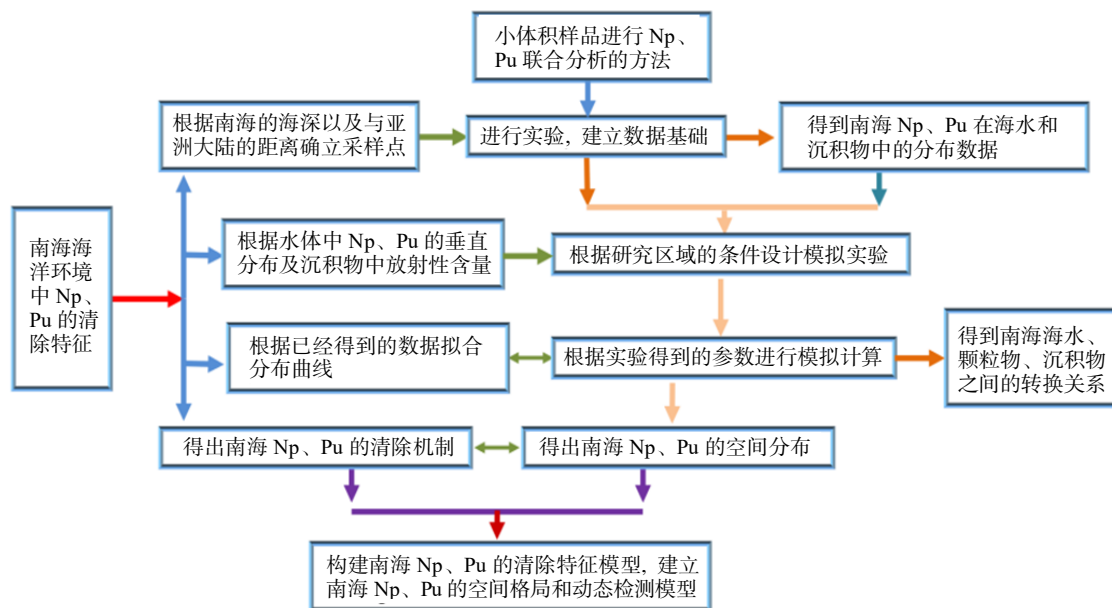


图3 南海 Np、Pu 清除机制的研究框架

Pu、Np 的清除效率及其影响因素;而后根据研究区域的水文条件和颗粒物表面电势测量修正得到模型所需的清除因子函数。(3)根据上述过程所测得数据以及修正因子,验证并矫正所提出海水中 Pu、Np 的扩散方程,从而搭建动态的放射性元素迁移模式等分析评估模型。

3.2 模型建立与模拟

Pu、Np 沉积到海水中,伴随着洋流运动发生传输和扩散。由于海水环境特殊,随着时间的变化以及物理化学过程, Pu、Np 被富集在海水的次表层(图 4)。海水中 Pu 随着洋流运输,被洋流激起的洋流底部沉积物部分清除,并受陆源沉积物影响。清除效率可以通过一个函数得到,该函数包含了海水水文条件、海岸距离等信息。通过该函数并结合沉积物和海水界面的交换平衡可以得出沉积物上界面和海水底层 Pu、Np 之间的含量关系。海水中不同区域沉积物与海水之间 Pu、Np 交换依赖清除效率,再根据海水中 Pu、Np 扩散常数等参数,建立海水与沉积物间的稳态模型(S-ADE)。根据海水与沉积物间的任意放射性数据和水文等参数,可得海水中放射性元素的空间分布,具体公式为:

$$C(x,t) = I_1 \frac{1}{2\sqrt{\pi D_1 t}} (e^{-(z+v_1 t)^2/(4D_1 t)} + e^{-(z-v_1 t)^2/(4D_1 t)}) + (I_0 - I_1) \frac{1}{2\sqrt{\pi D_2 t}} \cdot$$

$$(e^{-(L-z+v_2 t)^2/(4D_2 t)} + e^{-(L-z-v_2 t)^2/(4D_2 t)}),$$

式中: D_1 为表面海水中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的扩散常数, $\text{m}\cdot\text{a}^{-2}$; D_2 为底部海水 $^{239+240}\text{Pu}$ 的扩散常数, $\text{m}\cdot\text{a}^{-2}$; v_1 为 Pu 从上层海水向底层海水的垂直运移速度, $\text{m}\cdot\text{a}^{-1}$; v_2 为 Pu 从底层海水向上层海水的垂直运移速度, $\text{m}\cdot\text{a}^{-1}$; L 为表层沉积物水深, m ; I_0 为海水柱中总 Pu 存量; I_1 和 $I_0 - I_1$ 分别为表层海水和底层海水扩散的 Pu 存量; 初始条件 $t=0, C=0$ 。

3.3 模型模拟的初步结果

根据 Pu 在海水垂直剖面中分布的实测数据得出 Pu 在海水中的扩散系数、迁移速度和总库存,再基于如下两个假设: (1)不同海域海水盐度不会给扩散常数 D 带来显著差异; (2)经过长期平衡后水平方向 Pu 浓度梯度不足以引起 Pu 扩散。研究区域海底沉积物中 Pu 浓度分布,即可用模型模拟得出研究区域不同海水深度中 Pu 浓度分布(图 5)^[22]。利用 S-ADE 估算出南海海水中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的空间分布。南海表层海水中 $^{239+240}\text{Pu}$ 浓度为 $0.217\sim 12.538 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$, 平均为 $(2.465\pm 1.360) \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$, 这与文献[23]结果相似。模拟得到南海表层海水中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 的原子比为 $0.201\sim 0.300$, 平均为 0.227 , 这也与文献[23]报道在卡里马塔海峡和吕宋海峡附近海水中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 的原子比分别为 $0.257\sim 0.269$ 和 $0.241\sim 0.248$ 结果吻合。表明 S-ADE 模型可以很好地描述 Pu 在海水中的分布。

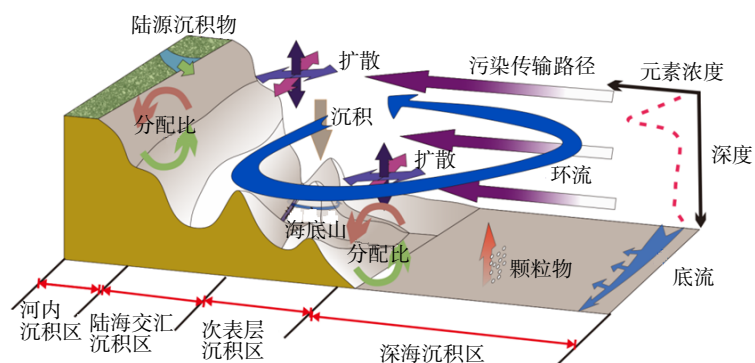
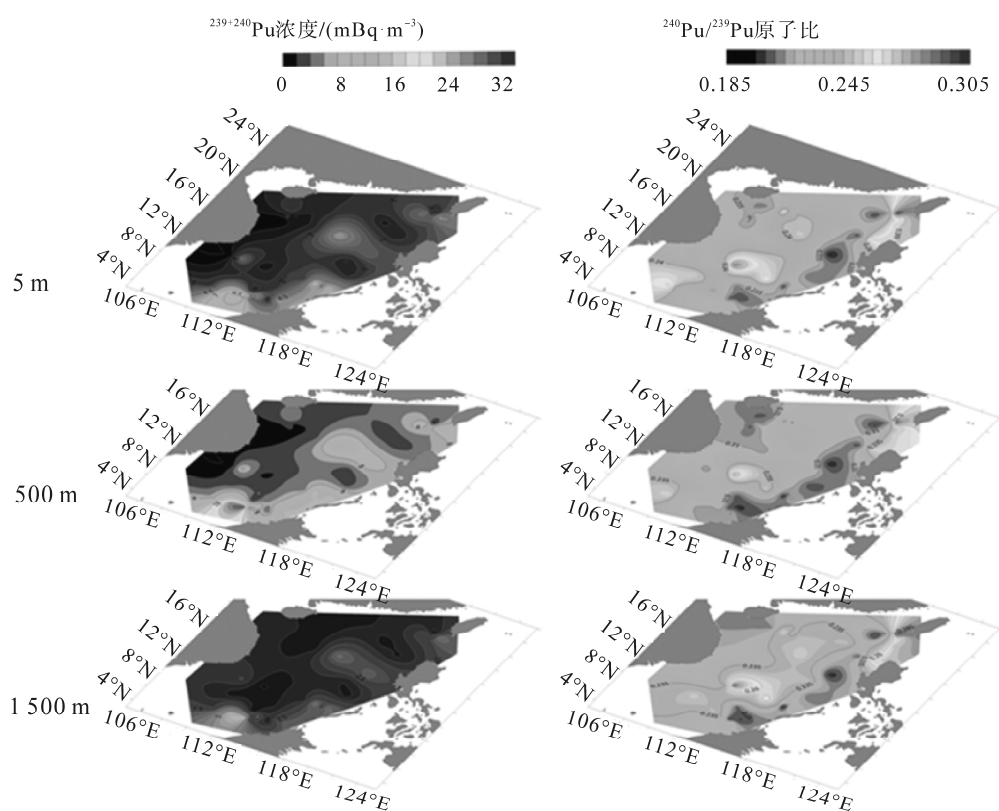


图4 海水和沉积物中Pu、Np的交换平衡模型

图5 南海不同海水深度中Pu分布的模拟结果^[22]

虽然该模型做了许多假设来简化计算,但拟合参数 ν 和 D 仍能在一定程度上反映放射性核素传输的物理化学性质。然而,由于较多的假设和较少的实测数据,目前模拟只能得到粗略结果。例如,实际扩散系数和迁移速度随时间变化,但模拟过程将其视为常数,只能得到整个传输过程的平均值。另外,扩散系数和迁移速度受环境影响,但由于在海水垂直剖面中放射性核素分布数据较少,只能采用部分海域的平均值代替,无法考虑不同海水区域中温度、含氧量等不同氧化还原条件的差异,导致模拟结果出现较大偏差。因此,未来还需

引入更多的参数信息来改进模型。

由于Np、Pu的理化性质不同,所以Np、Pu的清除效率及其在环境中的氧化还原条件不同。Np在海水中的扩散和迁移系数与Pu相异,模拟Np在海水中的分布仍然需要以Np在海水中的实际分析数据作为基础和验证。目前海水中Np的数据稀缺,在数据足够时有望开展此项工作。

4 结论与展望

为了研究 $^{239+240}\text{Pu}$ 在海洋中的迁移,开发了一种快速监测放射性污染的新方法。中国南海沉积

物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 放射性活度的空间分布受海流、海水中 Pu 的垂直分布和颗粒物质迁移的影响。根据放射性核素在海水中的物理过程,建立了海水平流-扩散方程,并得到了较好的拟合结果。根据该模型,估算南海区域储存的 $^{239+240}\text{Pu}$ 约为全球海洋的 1.0%, 这项研究为未来指导和设计 Pu 和其他同位素污染监测提供了模型。

由于海洋环境中涉及的模拟参数与边界条件较多,本项模拟只是尝试,今后需结合更多的实际数据对模型进行校验和改进,才能使模型更准确地模拟迁移分布。本项工作的模拟可作为一种指纹识别特征来研究陆海交互作用的过程信息,实现对海岸带海陆交互过程中沉积物运动特征的识别、突发外源输入时指纹特征的变化过程与通量的变化特征的评估与分析,提升我国核应急能力和实现事故状态下污染控制以及核物质在环境中的长期迁移评估能力。

参考文献:

- [1] MALARA G, ZEMA D A, ARENA F, et al. Coupling watershed-coast systems to study evolutionary trends: a review[J]. *Earth-Science Reviews*, 2020, 201:103040.
- [2] TAN Karsoon, CAI X H, TAN Kianann, et al. A review of natural and anthropogenic radionuclide pollution in marine bivalves[J]. *The Science of the Total Environment*, 2023, 896:165030.
- [3] United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation. Sources, effects and risks of ionizing radiation[EB/OL]. [2023-12-10]. https://www.unscear.org/unscear/en/publications/2020_2021_1.html.
- [4] HIROSE K, POVINEC P P. Ten years of investigations of Fukushima radionuclides in the environment: a review on process studies in environmental compartments[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2022, 251/252: 106929.
- [5] TOSCANO-JIMENEZ M, GARIC R, TENORIO A. Modelling the dispersion of ^{137}Cs in marine ecosystems with Monte Carlo methods[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 2004, 213:779-783.
- [6] YAMADA M, ZHENG J. Enhanced boundary scavenging of ^{241}Am on the continental margin of the East China Sea[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2022, 255:107044.
- [7] PERIÁÑEZ R, SUH K S, MIN B I. The behaviour of ^{137}Cs in the North Atlantic Ocean assessed from numerical modelling: releases from nuclear fuel reprocessing factories, redissolution from contaminated sediments and leakage from dumped nuclear wastes[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2016, 113:343-361.
- [8] WU J W, DAI M H, XU Y, et al. Sources and accumulation of plutonium in a large Western Pacific marginal sea: the South China Sea[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 610/611:200-211.
- [9] HAN X X, ZHU J J, ZHU Y W, et al. ^{237}Np and ^{241}Am as fingerprints in the major river basins of Southern China and North South China Sea: a land-sea perspective[J]. *ACS Omega*, 2021, 6:26897-26909.
- [10] ZHANG M T, HOU X L, ZHANG L Y, et al. Distribution of anthropogenic ^{129}I in the western South China Sea and its application for tracing the sources and movement of pollution[J]. *Environmental Science & Technology*, 2022, 56(17):12298-12306.
- [11] ZHANG F L, WANG J L, LIU D T, et al. Distribution of ^{137}Cs in the Bohai Sea, Yellow Sea and East China Sea: sources, budgets and environmental implications[J]. *The Science of the Total Environment*, 2019, 672:1004-1016.
- [12] LIU Z F, ZHAO Y L, COLIN C C, et al. Source- to-sink transport processes of fluvial sediments in the South China Sea[J]. *Earth-Science Reviews*, 2016, 153:238-273.
- [13] BENEDIK L, TRDIN M. Determination of low level Np-237 by various techniques[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2017, 126:208-213.
- [14] SNOW M S, MORRISON S S, CLARK S B, et al. ^{237}Np analytical method using ^{239}Np tracers and application to a contaminated nuclear disposal facility[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2017, 172:89-95.
- [15] HUANG Z, HOU X L, ZHAO X. Rapid and simultaneous determination of ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , and ^{241}Pu in samples with high-level uranium using ICP-MS/MS and extraction chromatography[J]. *Analytical Chemistry*, 2023, 95(34):12931-12939.
- [16] MACSIK Z, LAMONT S P, MAASSEN J R, et al. Radioanalytical method for the separation of trace plutonium and neptunium from uranium[EB/OL]. [2023-12-10]. <https://link.springer.com/article/10.1007/s10967-024-09360-6>.
- [17] HUANG Z, HOU X L, QIAO J X, et al. Simultaneous determination of femtogram levels of ^{237}Np , ^{239}Pu , and ^{240}Pu in environmental solid samples using extraction

- chromatography and ICP-MS/MS[J]. *Talanta*, 2023, 265: 124798.
- [18] MONTGOMERY D A, MARTINEZ N E. Dosimetric modeling of Tc-99, Cs-137, Np-237, and U-238 in the grass species *Andropogon virginicus*: development and comparison of stylized, voxel, and hybrid phantom geometry[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2020, 211:106075.
- [19] CAI Z Y, CHEN D K, GAN J P. Formation of the layered circulation in South China Sea with the mixing stimulated exchanging current through Luzon strait[J]. *JGR Oceans*, 2023, 128(3):e2023JC019730.
- [20] SANTACHI P H, XU C, ZHANG S, et al. Iodine and plutonium association with natural organic matter: a review of recent advances[J]. *Applied Geochemistry*, 2017, 85:121-127.
- [21] GRASER C H, BANIK N L, BENDER K A, et al. Sensitive redox speciation of iron, neptunium, and plutonium by capillary electrophoresis hyphenated to inductively coupled plasma sector field mass spectrometry [J]. *Analytical Chemistry*, 2015, 87(19):9786-9794.
- [22] WEI X M, ZHANG R H, ZHU J J, et al. Spatial distribution and modelling of $^{239+240}\text{Pu}$ in the sediments and seawater columns of the South China Sea and Indian Ocean[J]. *Environmental Pollution*, 2024, 343:123244.
- [23] XIE T X, DAI M H, HAMZAH F, et al. Sources and transport of plutonium in the Indo-Pacific intersection: implications for South China Sea freshwater transport into Indonesian Seas[J]. *Chemical Geology*, 2021, 580: 120367.

Discussion of scavenging mechanism and spatial migration simulation for Pu and Np in South China Sea

LIU Zhiyong¹, WEI Xiaomin^{1,2}

(1.State Key Laboratory of Radiation Medicine and Protection, Soochow University, Suzhou 215123, China;

2.School of Physical Science and Technology, Guangxi University, Nanning 530004, China)

Abstract: Pu and Np are radioactive elements in marine environments, derived from human nuclear activities. They are enriched in marginal sea areas due to the multi-effect caused by ocean currents, and land-sea interaction, which threatens people's nuclear environment safety. However, there is no systematic research on Pu and Np in the ocean in China and abroad, and the research method is limited to concentration analyses. In order to study the influence of runoff input, terrain, climate, and other factors on the scavenging efficiency of Pu and Np, this paper uses sector field inductively coupled plasma mass spectrometry (SF-ICP-MS) to accurately analyze the activities of Pu and Np, as well as the atomic ratios of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ and $^{237}\text{Np}/^{239}\text{Pu}$ in seawaters and sediments of the South China Sea. The diffusion of Pu and Np in the ocean was studied on the basis of a simulated marine environment experiment and a sequential extraction experiment. The key parameters describing the transmission characteristics and migration/diffusion of Pu and Np in the seawater of the South China Sea were obtained by fitting the content and isotope atomic ratios distribution data of Pu and Np in water, particulate matter, and sediment to explain the scavenging mechanism of the Pu and Np in the seawater of South China Sea. Finally, according to the obtained data, a dynamic simulation model (S-ADE) of the spatial distribution and scavenging mechanisms of Pu, Np in the South China Sea was established, and the cross-validation of the model was carried out by experimental and field sample analyzing data. The study can provide solutions for the rapid analysis and comprehensive assessment of the origin and migration of Pu, Np and other radioactive pollutants in nuclear accidents, as well as for the protection and management of radioactive contamination.

Key words: South China Sea; Pu and Np; migration and diffusion; scavenging process; model simulation

(责任编辑 史小丽)