

## 我国环境土壤和湖泊沉积物中放射性核素 Pu 空间分布特征研究

董小刚 (西北师范大学地理与环境科学学院, 甘肃省湿地资源保护与产业发展工程研究中心, 甘肃兰州 730070)

**摘要** 人类对环境造成的污染日益严重,而放射性核素对环境的污染却尤为严重。通过对我国已有文献报道的土壤和湖泊沉积物中放射性核素 Pu 的来源、活度和分布特征综合分析,表明我国不同地区表层土壤中放射性核素<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度差异较大,但均在 1 mBq/g 以下。大部分地区土壤中 Pu 的沉积通量均 < 60 Bq/m<sup>2</sup>,可判定这些地区的 Pu 均来源于全球沉降,并没有来自我国大气核试验的区域沉降。新疆核试验区周边以外地区<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu 比值也与全球沉降比值 0.18 相似。我国湖泊沉积物中 Pu 沉积通量差异也较大,但湖泊沉积物中<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu 原子比值均与全球沉降的 Pu 比值接近,没有显著差异。

**关键词** 钚;土壤;湖泊沉积物;空间分布

**中图分类号** S181.3;X837 **文献标识码** A **文章编号** 0517-6611(2015)08-229-03

## The Characteristics of Spatial Distribution of the Radionuclides Pu in Soils and Lake Sediments in China

**DONG Xiao-gang** (Research Center of Wetland Resources Protection and Industrial Development Engineering of Gansu Province, College of Geography and Environmental Science, Northwest Normal University, Lanzhou, Gansu 730070)

**Abstract** Nowadays, environmental pollution is one of the most serious problems and radionuclide pollutions are particularly serious in environment. According to sources, activity and spatial distribution of radionuclides Pu, summary and review were made by previous study in different environment mediums, such as soils and lake sediments. It is vital difference for the changes of the activity of <sup>240+239</sup>Pu in surface soils from different areas of China, but typically less than 1 mBq/g. Pu inventories are less than 60 Bq/m<sup>2</sup> in soils, it was demonstrated that no influence from Chinese Nuclear Test Site has occurred to these areas, but from global fallout. Pu inventories and <sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu atom ratios are both similar with global fallout. There were significant differences of the activity of <sup>240+239</sup>Pu in lake sediments and <sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu atom ratios are also similar with global fallout.

**Key words** Plutonium; Soils; Lake sediments; Spatial distribution

放射性核素钚(Pu)为锕系元素成员,共 20 种同位素(质量数范围 228~247 之间)。自然界中仅有两种 Pu 的同位素存在,一种是在氟碳铈镧矿中存在的微量<sup>244</sup>Pu,另一种是含铀矿中存在的<sup>239</sup>Pu,其余的 Pu 同位素都是通过人工核反应合成<sup>[1]</sup>。环境中的 Pu 主要来源于核试验、核燃料后处理厂、核设施的废物排放、核事故以及携带核物质的卫星的焚毁等人类核活动。Pu 暴露在空气中会产生氧化物和氰化物,且 Pu 具有很强的放射性毒性和生物毒性,在放射性核素毒性分组中,位于最毒组<sup>[2]</sup>,易于骨髓中富集,给人类健康造成严重威胁。

近年来,学术界加强了对环境中放射性核素问题的关注。我国对土壤 Pu 污染研究始于 20 世纪 80 年代,且对环境介质中 Pu 的放射性活度水平、垂直及其分布特征的研究也逐渐增多<sup>[3-8]</sup>。张聚敬等对新疆核试验场周围环境中 Pu 的放射性活度水平进行研究,发现表层土壤 Pu 活度浓度在 0.363~0.679 mBq/g 之间<sup>[3]</sup>;董微等对罗布泊附近上风向地区表层土壤中 Pu 活度浓度进行测定,其活度浓度在 0.010~0.827 mBq/g 之间,平均值为 0.215 mBq/g<sup>[4]</sup>,而在罗布泊核试验场下风向地区,除了米兰地区<sup>[3]</sup>(0.927 mBq/g)有研究外,其他尚未有关土壤 Pu 的报道。由于大气沉降,Pu 进入水体后,会通过水体对流、重力沉降等形式沉积到沉积物中,湖泊沉积物中 Pu 的信息能反映出 Pu 在该地区的沉降历史。笔者根据已有研究,从 Pu 的来源及空间分布特征两个方面

综述和讨论了我国环境介质(土壤、湖泊沉积物)中 Pu 同位素的空间分布特征。该研究有助于为我国核试验对局部地区环境影响提供科学依据,对于我国治理环境放射性污染具有重要的指导意义。

## 1 环境中 Pu 同位素的来源

目前已发现 Pu 同位素有 20 种,主要的 Pu 同位素有 4 种:<sup>238</sup>Pu、<sup>239</sup>Pu、<sup>240</sup>Pu 和<sup>241</sup>Pu,其中以<sup>239</sup>Pu(半衰期为 24 110 a)、<sup>240</sup>Pu(半衰期为 6 573 a)最为重要<sup>[9]</sup>。环境中<sup>239</sup>Pu 与<sup>240</sup>Pu 的来源主要是 1945~1980 年间的大气层核试验<sup>[10-11]</sup>。50 年代后期和 60 年代初期的核试验在环境中产生了大量的 Pu<sup>[1,10-11]</sup>,这与全球大气核试验的历史阶段相一致。依 UN-SCEAR(2000)报告,前苏联、美国、法国、英国和中国在 1945~1980 年间共进行了 543 次大气层核试验,共约 1.1 × 10<sup>16</sup> Bq 的<sup>239+240</sup>Pu 释放到环境中,使污染几乎遍布全球<sup>[11]</sup>。除了大气层核试验外,核试验、核燃料后处理厂、核设施的废物排放、核事故(如 1986 年切尔诺贝利核事故和 2011 年日本福岛核事故等<sup>[12-13]</sup>)以及携带核物质的卫星的焚毁(如 1964 年美国的 SNAP-9A 人造卫星的核动力装置在地球上空烧毁<sup>[9]</sup>)等核事故的发生也会将 Pu 释放到环境中。另外,由于核试验内部材料的差异,可根据 Pu 同位素<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu 比值来检验 Pu 来源(表 1)。

表 1 不同来源的<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu 比值

来源	<sup>240</sup> Pu/ <sup>239</sup> Pu 比值	参考文献
大气核试验	0.180	[14]
核反应堆	0.230~0.670	[15]
核武器	0.007~0.010	[16]
切尔诺贝利核事故	0.420	[17]

**基金项目** 甘肃省省青年科技基金计划项目(145RJYA254);西北师范大学青年教师科研能力提升计划项目(NWNU-LKQN-13-21)。

**作者简介** 董小刚(1982-),男,甘肃庆阳人,助理实验师,硕士,从事土壤生态学研究。

**收稿日期** 2015-02-02

## 2 我国环境中 Pu 同位素的空间分布特征

全球主要核试验场在北半球,使得 Pu 的全球分布也存在着明显的纬度分布特征<sup>[18-19]</sup>,<sup>239+240</sup>Pu 的全球沉降整体上呈现为在北半球较高而在南半球相对较低的分布特征<sup>[19-20]</sup>。在 50°N 的范围内,<sup>239+240</sup>Pu 的沉降呈现出随纬度增大而增加的趋势,北半球温带地区<sup>239+240</sup>Pu 的沉积量最大,赤道最小。Pu 的全球沉降还受降雨量的影响,在全球范围内随降雨量的增加而增加的特点<sup>[14]</sup>。在纬度差异不大、气候条件均一的地区,Pu 沉降的空间分布是相似的。

自 1964 年首次进行原子弹爆炸试验以来,到 90 年代在我国新疆罗布泊地区共进行了 23 次大气核试验<sup>[4,20]</sup>。Zhu 等利用我国表层土壤中实测的<sup>137</sup>Cs 数值和推荐的全球沉降<sup>239+240</sup>Pu/<sup>137</sup>Cs 活度比值(0.02)推算出我国北方地区(>45°N)表层土壤中<sup>239+240</sup>Pu 的活度约为 0.5 mBq/g,中部地区(25~45°N)约为 0.2 mBq/g,南部地区(<25°N)约为 0.1 mBq/g<sup>[21]</sup>。但这一估算值没有将我国核试验可能造成的区域 Pu 沉降考虑在内。

**2.1 我国环境土壤中 Pu 的空间分布特征** 我国部分地区对 Pu 在土壤中污染的相关研究及空间分布如表 2 所示。可见,我国表层土壤中<sup>239+240</sup>Pu 放射性比活度差异较大,其比活度在 0.013~0.477 mBq/g 之间;西北地区表层土壤(0~1 cm)的 Pu 活度浓度仅为 0.023 mBq/g;东北地区大连土壤中<sup>239+240</sup>Pu 的活度较高,超过 0.400 mBq/g;华中地区荆门和襄樊土壤中<sup>239+240</sup>Pu 的活度接近 0.400 mBq/g;华北地区不同样点之间差异较大,但总体 Pu 活度<0.400 mBq/g。以上结果表明,在有文献报道的地区,表层土壤 Pu 的活度浓度在 1 mBq/g 以下,这与 Zhu 等<sup>[21]</sup>的推算值没有显著的区域差异。我国大部分地区表层土壤 Pu 的活度与沙特阿拉伯表层土壤 Pu 活度浓度(0.020~0.500 mBq/g)大致相近<sup>[22]</sup>,但与韩国土壤 Pu 活度浓度(0.180~0.185 mBq/g)差别较大<sup>[23]</sup>。

表 2 我国部分地区环境介质土壤中钚的浓度及分布特征

采样地点	样点数	表层 <sup>239+240</sup> Pu 活度//mBq/g	<sup>239+240</sup> Pu 沉积通量//Bq/m <sup>2</sup>	<sup>240</sup> Pu/ <sup>239</sup> Pu 原子比值	参考文献
北京	11	0.363±0.152 a	-	-	[6]
	2	0.149±0.015	35.7	-	[7]
		0.066±0.008	10.1	-	
集宁	1	0.237±0.014	-	0.185±0.025	[5]
青州	1	0.013±0.001	-	0.206±0.020	[5]
济南	2	0.174±0.015	33.9	-	[7]
		0.119±0.021	36.4	-	
太原	1	0.040±0.007	10.5	-	[7]
石家庄	1	0.075±0.008	14.8	-	[7]
兰州	1	0.023±0.003	32.4	0.182±0.008	[24]
	2	0.040±0.006	-	0.223±0.019	[5]
成都		<0.010	-	0.184±0.021	
荆门	1	0.358±0.021	44.9	0.186±0.008	[25]
襄樊	1	0.380±0.016	54.6	0.198±0.006	[25]
濮阳	1	0.110±0.008	-	0.188±0.016	[8]
商丘	1	0.122±0.002	-	0.188±0.016	[8]
长治	1	0.078±0.006	-	0.188±0.016	[8]
大连	2	0.466±0.054	86.9	0.187±0.012	[26]
		0.477±0.021	44.1	0.180±0.021	[26]

注:a 表示北京 11 个点的平均值;- 表示没有相关数据。

土壤表层 Pu 的活度仅能代表采样年代表层土壤中 Pu 的含量水平,无法代表土壤中 Pu 含量的总体水平;而土壤剖面中 Pu 的沉积通量则能反映采样点土壤中有 Pu 开始沉降到采样时段 Pu 的沉积总量。从表 2 可知,我国已有文献报道的地区,土壤 Pu 的沉积通量(除大连外)均<60 Bq/m<sup>2</sup>,可以判定这些地区 Pu 的来源为全球沉降(58.1±18.5 Bq/m<sup>2</sup>),没有受到我国核试验区域 Pu 沉降的影响。大连 2 个采样点间距<20 km,Pu 的沉降方式应该是相似的,沉积通量差异的原因主要是土壤中 Pu 的存留和迁移行为不同,以及采样点表层土壤的扰动程度不同造成的<sup>[26]</sup>。

由于不同来源 Pu 的<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu 原子比不同,因此<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu 原子比可作为一个重要指标对 Pu 的来源进行判断。从已有文献来看,关于我国核试验产生的 Pu 的原子比信息较少。Koide 等对极地冰芯的调查结果推断我国核试验场产生 Pu 的<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu 比值在 0.25 左右<sup>[27]</sup>。金玉仁等对西安和甘肃两地土壤样品的<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu 原子比研究发现,西安样品的原子比是 0.18,甘肃为 0.16<sup>[28]</sup>。董微等<sup>[4]</sup>对新疆、湖北等地以及 Zheng 等<sup>[24]</sup>对兰州土壤样品中 Pu 同位素比值进行研究,结果均与全球沉降比值 0.18 接近。由于已报道的土壤 Pu 的研究相对较少,还不能得出我国核试验产生 Pu 的原子比值特征。

**2.2 我国湖泊沉积物中 Pu 的空间分布特征** 从已有文献报道来看,我国湖泊沉积物中 Pu 沉积通量差异较大(表 3)。在西北地区,新疆博斯腾湖 Pu 的沉积通量值 46.6~56.4 Bq/m<sup>2</sup>,在同纬度全球沉降值(58.1±18.5 Bq/m<sup>2</sup>)的范围之内<sup>[29]</sup>;而在青海苏干湖和甘肃双塔湖中却检测到 20.2 Bq/m<sup>2</sup>的低值和 240.6 Bq/m<sup>2</sup>的高值<sup>[30]</sup>,这和同纬度全球沉降值均有差异,低值的出现可能源于西北地区相对干旱的气候,而高值可能是地表侵蚀的影响。在西南地区,云南程海湖与贵州红枫湖沉积通量分别为 35.4 和 60.7 Bq/m<sup>2</sup><sup>[32-33]</sup>,这与同纬度全球沉降值相似。在东北地区,四海龙湾湖 Pu 的沉积通量值 67.2 Bq/m<sup>2</sup>,也与同纬度全球沉降值相似。

表 3 我国部分湖泊沉积物中钚的浓度及分布特征

采样地点	样点数	<sup>239+240</sup> Pu 沉积通量//Bq/m <sup>2</sup>	<sup>240</sup> Pu/ <sup>239</sup> Pu 原子比值	参考文献
博斯腾湖	3	46.6±2.1	0.179±0.015	[29]
		56.4±2.0	0.179±0.008	[29]
双塔湖	1	240.6±5.3	0.178±0.007	[30]
	2	20.2±0.8	0.174±0.054	[30]
苏干湖		24.2±0.7	0.164±0.026	
	3	68.4±2.7	0.181	[31]
青海湖		31.9±0.9	0.175	[31]
		42.8±0.9	0.170	[31]
程海湖	1	35.4	0.195	[32]
红枫湖	1	50.7	0.185±0.009	[33]
四海龙湾	1	62.7±3.2	0.182±0.012	[30]

由于<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu 原子比值可对 Pu 的来源进行判定。在已有研究中,Zheng 等在程海湖中检测到了相对全球沉降稍高的<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu 原子比,推测该地区可能有我国核试验的来

源贡献<sup>[32]</sup>。其他研究表明,我国湖泊沉积物中<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu 原子比值均与全球沉降的 Pu 的原子比值 0.18 接近,没有显著差异。

### 3 结论与展望

通过对我国环境介质中放射性核素 Pu 的活度和分布特征的相关研究分析,初步可以得出以下结论:

(1)我国不同地区表层土壤中放射性核素 Pu 的活度浓度差异较大,但均在 1 mBq/g 以下。已有文献报道的地区土壤 Pu 的沉积通量(除大连外)均 < 60 Bq/m<sup>2</sup>,可以判定这些地区 Pu 的来源均为全球沉降,未受到我国核试验区区域沉降的影响,而大连地区沉积通量差异的原因是土壤中 Pu 的存留和迁移行为不同,以及采样点表层土壤的扰动程度不同造成的。

(2)我国湖泊沉积物中 Pu 沉积通量差异也较大,尤其是西北地区的苏干湖(20.2 Bq/m<sup>2</sup>)和双塔湖(240.6 Bq/m<sup>2</sup>),低值可能是西北地区气候干旱造成的,高值可能是地表侵蚀的影响。

目前,随着质谱技术的快速发展,放射性核素 Pu 的测量技术越来越灵敏、高效,这有助于为我国对环境放射性核素 Pu 的研究数据相对匮乏提供可靠的信息,对我国开展环境放射性污染治理具有重要的指导意义。今后针对环境中放射性核素 Pu 的研究应注重以下几个方面:

(1)可对环境中放射性核素 Pu 进行形态分级,从而可以更好地探讨 Pu 在环境中的存在形态和转化机理以及 Pu 在环境中的地球化学行为。

(2)对环境中放射性核素 Pu 的研究与遥感和 GIS 技术相结合,可增强大尺度区域 Pu 沉降空间格局的精度。借助不断完善的测量方法,可对我国大气核试验产生的<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu 原子比值进行研究以及大气核试验区对周边地区的区域性影响。

(3)放射性核素 Pu 在其他方面的应用,如 Pu 沉积物测年、土壤示踪和土壤侵蚀速率数值模拟等方面,将拓展我国在放射性核素研究新领域,为我国核工业的安全发展提供合理的科学依据。

### 参考文献

[1] 刘志勇. 长江口及苏北潮滩沉积物中放射性核素钚的分布特征与环境意义[D]. 南京:南京大学,2011.

[2] 李玮博,叶长青,李钧,等. 放射性核素的毒性重新分组[J]. 辐射防护,1999,19(2):114-126.

[3] 张聚敬,韦继管,邹文良,等. 新疆核试验场周围土壤中的钚污染[J]. 中华放射医学与防护杂志,1988,8(1):50-52.

[4] 董薇,杨益龙,郭秋菊. 用 AMS 法测量新疆和湖北两地土壤样品中的钚[J]. 辐射防护,2010,30(3):175-178.

[5] 董薇. 放射性同位素钚在环境中的分布与行为研究[D]. 北京:北京大学,2010.

[6] 颜启民,刘寿荪,陈爱民. 北京地区土壤和水中钚的浓度研究[J]. 环境科学,1984,5(5):10-13.

[7] SHA LM, YAMAMOTO M, KOMURA K, et al. <sup>239+240</sup>Pu, <sup>241</sup>Am and <sup>137</sup>Cs in soils from several areas of China[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry,1991,155(1):45-53.

[8] 王煜,王卫宪,申茂泉,等. 山西、河南三地土壤样品中<sup>239+240</sup>Pu、<sup>137</sup>Cs 分析[J]. 辐射防护,2013,33(2):124-128.

[9] 杨旭,潘少明,徐仪红,等. Pu 同位素比值在沉积物测年中的应用[J]. 海洋通报,2013,32(2):227-234.

[10] 徐仪红,潘少明. Pu 同位素在土壤侵蚀示踪中的应用[J]. 土壤学报,

2012,49(5):1021-1029.

[11] UNSCEAR. Sources and Effects of Ionizing Radiation; United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation Exposures to the Public from Man-made Sources of Radiation [R]. United Nations; Yew York,2000.

[12] MURANMATSU Y, HAMUILTON T, UCHIDA S. Measurement of <sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu isotopic ratios in soil from the Marshall islands using ICP-MS[J]. Science of the Total Environment,2001,278(1/3):151-159.

[13] ZHENG J, TAGAMI K, WATANABE Y, et al. Isotopic evidence of plutonium release into the environment from the Fukushima DNPP accident [J]. Scientific Reports,2012,2:304.

[14] KELLEY J M, BOND L A, BEASLEY T M. Global distribution of Pu isotopes and <sup>237</sup>Np[J]. Science of the Total Environment,1999,237:483-500.

[15] WARNEKE T, CROUDACE I W, WARWICK P E, et al. A new ground level fallout record of uranium and plutonium isotopes for northern temperate latitudes[J]. Earth and Planetary Science Letters,2002,203:1047-1057.

[16] COOPER L W, KELLEY J M, BOND L A, et al. Sources of transuranic elements plutonium and neptunium in arctic marine sediments[J]. Marine Chemistry,2000,69:253-276.

[17] BOULYGA S F, ZORIY M, KETTERER M E, et al. Depth profiling of Pu, <sup>241</sup>Am and <sup>137</sup>Cs in soils from southern Belarus measured by ICP-MS and  $\alpha$  and spectrometry[J]. Journal of Environmental Monitoring,2003,5:661-666.

[18] BUESSELER O K. The isotopic signature of fallout plutonium in the North Pacific[J]. Journal of Environmental Radioactivity,1997,36(1):69-83.

[19] KREY P W. Remote plutonium contamination and total inventories from Rocky Flats[J]. Health Physics,1976,30(2):209-214.

[20] 卜文庭,郭秋菊. 我国环境土壤和地表水沉积物中 Pu 的分布特征研究[J]. 辐射防护,2013,33(3):144-150.

[21] ZHU Y G, YANG J G, ZHU Y I. Radiological research in China: current status and perspectives [C]//BORREITZEN P, JOLLE T, STRAND P, et al. Proceeding from the international conference on radioactivity in the environment. Monaco,2002:595-599.

[22] SHABANA E I, AL-SHAMMARI H L. Assessment of the global fallout of plutonium isotopes and americium -241 in the soil of the central region of Saudi Arabia[J]. Journal of Environmental Radioactivity,2001,57:67-74.

[23] KIM C S, LEE M H, KIM C K, et al. <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs, <sup>239+240</sup>Pu and <sup>238</sup>Pu concentrations in surface soils of Korea[J]. Journal of Environmental Radioactivity,1988,40:75-88.

[24] ZHENG J, YAMADA M, WU F C, et al. Characterization of Pu concentration and its isotopic composition in soils of Gansu in northwestern China [J]. Journal of Environmental Radioactivity,2009,100:71-75.

[25] DONG W, TIMS S G, FIFIELD L K, et al. Concentration and characterization of plutonium in soils of Hubei in central China[J]. Journal of Environmental Radioactivity,2010,101:29-32.

[26] XU Y H, QIAO J X, HOU X L, et al. Plutonium in Soils from Northeast China and Its Potential Application for Evaluation of Soil Erosion[J]. Scientific Reports,2013,3:3506.

[27] KOIDE M, BERTINE K K, CHOW T J, et al. The <sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu ratio, a potential geochronometer[J]. Earth and Planetary Science Letters,1985,72(1):1-8.

[28] 金玉仁,张利兴,周国庆,等. 两地土壤中的钚含量及同位素组成分布[J]. 分析化学研究简报,2004,32(10):1321-1324.

[29] LIAO H Q, BU W T, ZHENG J, et al. Vertical Distributions of Radionuclides (<sup>239+240</sup>Pu, <sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu and <sup>137</sup>Cs) in Sediment Cores of Lake Bosten in Northwestern China[J]. Environmental Science and Technology,2014,48:3840-3846.

[30] WU F C, ZHENG J, LIAO H Q, et al. Vertical distributions of plutonium and <sup>137</sup>Cs in lacustrine sediments in northwestern China: quantifying sediment accumulation rates and source identifications [J]. Environmental Science and Technology,2010,44:2911-2917.

[31] WU F C, ZHENG J, LIAO H Q, et al. Anomalous Plutonium Isotopic Ratios in Sediments of Lake Qinghai from the Qinghai-Tibetan Plateau, China [J]. Environmental Science and Technology,2011,45:9188-9194.

[32] ZHENG J, LIAO H Q, WU F C, et al. Vertical distributions of <sup>239+240</sup>Pu activity and <sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu atom ratio in sediment core of Lake Chenghai, SW China [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry,2008,275(1):37-42.

[33] ZHENG J, WU F C, YAMADA M, et al. Global fallout Pu recorded in lacustrine sediments in Lake Hongfeng, SW China [J]. Environmental Pollution,2008,152:314-321.