

冲绳海槽及东海表层海水中 超铀元素钚的测定*

李培泉 *颜启民 于银亭

(中国科学院海洋研究所)

(*中国科学院原子能研究所)

提要 本文研究了东海及冲绳海槽海水中钚的含量与分布,这对于研究放射性污染问题很有意义。该区表层水中 Pu 的含量为 $1.2-2.6 \times 10^{-3}$ Bq/L, 平均值为 1.9×10^{-3} Bq/L, Pu 的分布随物理化学特性和海洋条件的不同而呈不均匀分布状态。Pu/ ^{137}Cs 为 0.0036。浮游生物、海藻和生物悬浮体对 Pu 的浓缩能力很大。

原子武器试验、核能设施的废物排放以及装有核辅助能源的太空航器的事故(如 1964 年 SNAP 卫星事故)是造成海洋钚污染的主要来源。近十多年来对 Pu (包括 Am) 等超铀元素的研究已成了海洋和环境科学中的重要内容。IAEA 摩洛哥国际放射性实验室和美国等国一些研究组织广泛地开展了这一工作,并发表了不少论文^[4]。目前, Pu 在海洋放射性核素研究中所占的比重愈来愈大。

在我国,海洋中超铀元素的研究工作刚刚开始,所报道的内容多限于分析方法和总 Pu 的含量和分布问题^[1,3],而有关 Pu 的更为复杂的问题,如 α 谱仪测定技术、超铀元素的综合分析方法、Pu 在海洋学研究中的应用、Pu 的形态和运动规律以及生物富集和毒害等都急需作大量的工作。1982 年,我们在研究超铀元素分析方法的基础上初步测定了东海区及冲绳海槽表层水的 Pu 含量,并讨论了它的分布及其有关问题。

一、实验方法

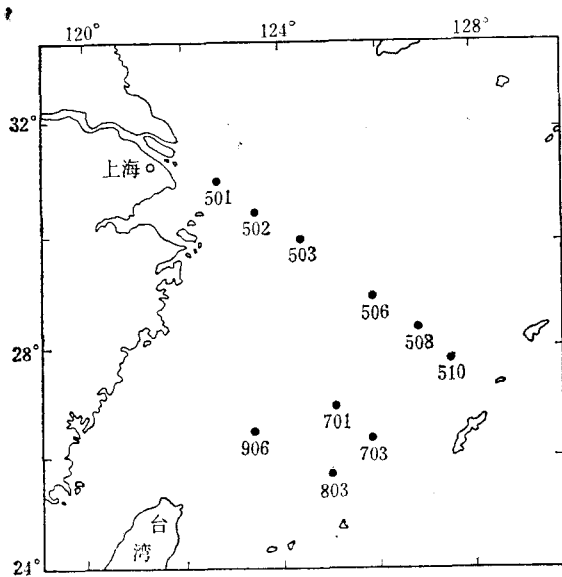
分析方法主要包括海水预浓集、分离纯化和 α 测量等几个主要步骤。将 50L 酸化海水

用定量滤纸过滤(除去大颗粒悬浮体),加 0.01 Mol/L NaOH,搅拌 90min,使其形成氢氧化物沉淀,静置过夜,沉淀离心后用 4Mol/L HNO₃ 溶解。溶液用 1M 氨基磺酸亚铁还原,8M 亚硝酸钠氧化;调 pH 为 2—3,用 10% 的三正辛胺-二甲苯-聚三氟氯乙烯粉反相分配色谱层柱吸附 Pu,用 10 Mol/L HCl 和 3Mol/L HNO₃ 洗涤,用 0.025M H₂C₂O₄ 和 0.15Mol/L HNO₃ 混合液洗脱 Pu,将其收集在已装好阴极的电沉积槽中。用 1:1 NH₄OH 调节上述洗脱液,使 pH 为 1.5—2.0,电流密度为 600mA/cm²,极间距为 4—5mm,电沉积 60min。将不锈钢片取下烘干,灼烧,然后用低本底 α 计数器测量。

二、结果与讨论

1981 年我们乘《科学一号》调查船在 25°46'—30°03' N, 123°30'—127°37' E 海域内进行了表层海水取样,共设 10 个站位,每个站位取两个平行样品,每个 50L。取样站位如图 1 所示。所得总 Pu 量如表 1 所示。

* 本文图件由任广法清绘,特表感谢。



取样站位图

Locations of sampling station

从表 1 看出: 东海及冲绳海槽表层海水的 Pu 浓度波动在 $(1.2-2.6) \times 10^{-5}$ Bq/L 之间, 其量级都在 10^{-5} Bq/L。范围之内, 平均约为 1.9×10^{-5} Bq/L。从两份平行样品所测数据来看, 其吻合程度还是好的。

(一) Pu 的水平分布

从表 1 看出: Pu 的浓度虽然相差不大, 但不能认为它是呈均匀分布状态的。例如, 在冲绳海槽区南部的 803 站, Pu 浓度为 1.2×10^{-5}

Bq/L, 而在长江口外的 501 站则为 2.2×10^{-5} Bq/L, 两者几乎相差一倍。即使在 803 站附近的 701 站, Pu 的浓度也相差很大, 701 站 Pu 浓度比 803 站高一倍。这种现象说明, 海水中的 Pu 不呈均匀分布状态。可以看出: 海区的水文物理状况不同, Pu 浓度不同; 海区的水文物理状况相似, 其 Pu 浓度也不同。在所调查的东海和冲绳海槽区, 其 Pu 浓度波动在 $(1.2, 1.4, 1.8, 2.2, 2.6) \times 10^{-5}$ Bq/L 等几个不同的浓度之间。过去曾认为不同海区中的 Pu 浓度基本一致, 而近年来大量调查资料表明, 它的分布是以不均匀分布为其特征的, 有的差别是明显的。表 2 收集了部分不同时间和不同海区 Pu 的测定资料。

可以看出: 在不同年份和不同海区中, 其海水中 Pu 的浓度是很不相同的。其高值多出现在 1963—1964 年核试验污染严重的时期, 而且多在北半球。随着时间的延续, Pu 浓度呈现下降的趋势。

Pu 的分布不同, 主要是由于 Pu 的物理化学性质和来源不同所决定的。Pu 在海水中主要以颗粒状态存在, 而且容易和无机或有机悬浮体结合, 并随其运动, 而各海区中的上述物质含量是不相同的, 因此决定了 Pu 不会呈均匀状态。实验得知, 海水在通过 0.45μ 滤膜过滤之后, 留在滤膜上的 Pu 可达 80% 左右; 若用

表 1 冲绳海槽及东海表层水 Pu 的浓度

Tab. 1 Concentrations of Pu in seawater in okinawa trough and East China sea

站 位	经纬度	Pu 浓度 ($\times 10^{-5}$ Bq/L)	站 位	经纬度	Pu 浓度 ($\times 10^{-5}$ Bq/L)
803	125°07.4'E 25°46'N	1.2 1.2	503	124°29'E 30°03'N	2.0 1.7
703	125°57.3'E 26°25.1'N	1.4 1.9	506	126°00'E 29°01'N	1.8 1.7
701	125°11.5'E 27°00'N	2.6 2.2	508	126°56.7'E 28°24'N	1.6 2.0
906	123°30.5'E 26°30.8'N	1.4 2.1	510	127°37.6'E 27°51.5'N	2.0 2.0
501		2.4 1.9			
	123°31'E	2.1			
502	30°30.5'N	1.7	平均值		1.9

表 2 不同年代和不同海区海水中 Pu 的
浓度 ($^{239+240}\text{Pu}$)

Tab. 2 Concentration of Pu in different
years and in different ocean region ($^{239+240}\text{Pu}$)

年代	深度 (m)	海区	Pu 浓度 ($\times 10^{-5}\text{Bq/L}$)
1963	0	北大西洋	5.2
1964	0	东北太平洋	7.1—11.1
		斯克里浦斯湾	1.1—1.9
1967	0	西北太平洋	0.4—5
		北卡西马湾	2.2—4.4
		北大西洋	3.3
1969	0	北大西洋	2.2—5.6
		东北太平洋	1.1—5.6
1968	0—100	北大西洋	1.1—6.7
	0—100	南大西洋	1.1—1.9
	0	日本海	0.7—4.7
	0	东海	2.8

滤纸过滤,留在滤纸上的Pu量只有1—15%,这也证明了海水中Pu的颗粒特性。在近海区,由于悬浮体多于外海,因此Pu容易进入沉积物。

另外,Pu的来源不同也是造成不均匀分布的原因之一,因为大部分核试验在北半球进行,因此,北半球海域中的污染高于南半球。例如,1976年Miyake等人所测的北太平洋海水的Pu浓度为 $(0.8—3.5) \times 10^{-5} \text{ Bq/L}$;南太平洋为 $(0.5—1.3) \times 10^{-5} \text{ Bq/L}$,前者比后者高1—3倍^[1]。在核电站和核事故附近,Pu的浓度都普遍高于其它区域。

(二) Pu 与 ^{137}Cs 的比值

海水中 ^{137}Cs 主要以离子态形式存在,其运动规律受海洋水文物理因素所控制;与 ^{137}Cs 相比,Pu的运动除受上述因素影响外,还明显地受自身物理化学性质的影响。在海水中,通常Pu是以颗粒态形式存在的,因此,Pu易受重力影响或与悬浮物质结合进入海洋沉积物中。由于上述性质,在陆地、海水和沉积物中Pu/ ^{137}Cs 比值将会发生变化。一般陆地上Pu/ ^{137}Cs 之比约为0.006;表层海水约为0.0016;我们在东海及邻近大洋(26° — 32°N ; 123° — 129°E)表层

海水中所测Pu/ ^{137}Cs 比值约为0.0036^[2];日本在 $38^{\circ}43'\text{N}$, $136^{\circ}17'\text{E}$ 测得的Pu/ ^{137}Cs 比值为0.0020。沉积物中的Pu/ ^{137}Cs 比值一般都高于海水中的比值,例如,我们在渤海湾测得的Pu/ ^{137}Cs 比值为0.034。上述比值表明:Pu和 ^{137}Cs 进入海水后发生了一定的变化,Pu比 ^{137}Cs 更快地下沉。而在沉积物中Pu进一步得到了明显的富集。可以预料,海水中现存的Pu经过长期作用后将会大部分积聚在沉积物中。

同样得知:沉积物中Pu/ ^{137}Cs 之比远远高于海水中的Pu/ ^{137}Cs 之比。如1981年渤海湾沉积物Pu/ ^{137}Cs 之比总平均为0.034,这也说明Pu进入海水之后是逐步下沉,并最后进入沉积物中去的。

(三) Pu 的生物浓缩

从生物危害的角度出发,需要对生物的生物浓缩能力进行讨论和实地观察。研究这类问题,最为有利的区域应该是核能应用区,而在广阔的其它水域,仅靠测定极微小的大气沉积Pu是困难的。M. A. Thompson曾详细地对美国的Rocky Flats核能研究工厂周围的生物浓缩能力进行了实地测定^[6],表3是不同生物的生物浓缩因子。

表 3 不同生物种的浓缩因子(C. F. 包括悬浮体)

Tab. 3 Concentration factors of various species
and suspension

物 种	浓缩因子
床杜文小鱼	0.87—7.5
悬浮体 ¹⁾	$10^4—10^5$
维管束植物	$10^{-1}—10^{-2}$
浮游动物	10^3
龙虾	10^3
藻	10^4

1) 主要是浮游植物、碎屑和小的浮游动物。

从表3看出:悬浮体(主要由浮游动植物的碎屑所组成)和藻类对Pu有很高的C. F.值,其值为 $10^4—10^5$,浮游动物和龙虾的C. F.值也在 10^3 范围之内。实验发现,这个核电站在20多年所释放的 $1.72 \times 10^8 \text{ Bq}$ 的Pu中,只有少于

1% 的 Pu 存在于生物体和人体中,但没有发现对生物和人的健康发生危害。另外,他们发现,在排放口、河道及废水接收水库中的沉积物中也有一定的 Pu 存在。这说明 Pu 的扩散能力并不大,且主要集中在沉积物中。

三、结 语

1. 海洋中超铀元素 Pu 的研究是海洋环境学中的主要研究内容,随着核能事业的发展, Pu 作为环境污染因子和潜在的危害性元素之一是不可轻视的,同时作为示踪剂研究海洋中的某些过程也是很有意义的。

2. 东海及冲绳海槽海水中的 Pu 含量平均为 1.9×10^{-5} Bq/L, 波动范围为 $(1.2-2.6) \times 10^{-5}$ Bq/L。总的来看,在这一海区的海水中有 Pu 存在,但其量甚微,它的分布因其物理化学性质和海洋学条件不同而呈不均匀状态。

3. 在冲绳海槽和东海区,海水中 $\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 为 0.0036,浮游生物、藻类和生物悬浮体对 Pu

的浓缩能力是很大的,其值约为 10^3-10^5 ,因此,对生物的危害不可忽视。

参 考 文 献

- [1] 李培泉等,1983。海洋放射性及其污染。科学出版社,1—400 页。
- [2] 李培泉、王品爱、卢光山,1984。东海及邻近大洋海水中 ^{137}Cs 含量的测定。海洋科学集刊 21: 265—268。
- [3] 李培泉、于银亭、颜启民,1984。渤海湾沉积物中铀的测定。海洋科学 8(6): 19—22。
- [4] Holm, E. and R. B. R. Pensson. Review of Alphaspectrometric Measurements of Actinides. Actinides in Man and Animals (M. E. Wrenn, Ed.)-RD press. 29—42.
- [5] EDGINGTON, D. N. and J. A. ROFFINS, 1975. The Behaviour of Plutonium and other long-lived Radionuclides in lake MICHIGAN IAEA-SM-198/40. Impacts of Nuclear Releases into the aquatic Environment. IAEA Vienna. pp. 245—259.
- [6] Thompson, M. A., 1975. Plutonium in the Aquatic Environment Around the Rocky Flats Facility. IAEA SM-198/38. Impacts of Nuclear Release into the aquatic environment IAEA Vienna. pp. 213—226.

THE DETERMINATION OF PLUTONIUM IN SURFACE SEAWATER OF OKINAWA TROUGH AND EAST CHINA SEA

Li Peiquan, Yan Qimin*, Yu Yinting

(Institute of Oceanography, Academia Sinica)

(* Academy of Sciences of Atomic Energy)

Abstract

Study on the content and distribution of plutonium in Ocean is of importance for prevention of nuclear pollution.

The concentration of Pu in surface seawater varies from 1.2 to 2.6 (10^{-5} Bq/L) in Okinawa Trough and East China Sea, the mean value is about 1.9×10^{-5} Bq/L. Generally, the pollution of Pu in the above area is not serious. It is not well distributed because of different physical-chemical properties and oceanographic conditions. The ration of $\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ is 0.0036. The concentration factor of Pu is very high in plankton, seaweed and biotic suspension substance. It's C. F value varies from 10^3 to 10^5 . So the pollution of Pu in biotics cannot be neglected.