

• 专论与综述 •

# 放射性核素污染及监测

齐文启, 陈 光, 席俊清, 宗惠娟, 孙宗光, 汪志国, 王 强  
(中国环境监测总站, 北京 100029)

**摘 要:** 由于发达国家的核试验和核电站的建设, 放射性核素对环境的污染已引起世界各国的关注。我国目前实施对放射性强度的监测, 而对核素监测相对比较薄弱。文章介绍了核设施泄露事故对大气、水和水生生物造成的污染及污染的削减过程, 综述了目前发达国家的放射性核素污染水平、监测的核素种类和监测方法。

**关键词:** 放射性核素; 污染; 迁移; 监测对象; 监测方法

中图分类号: X837 文献标识码: A 文章编号: 1006-2009(2003)04-0010-03

## The Pollution and Monitoring of Radioactive Nuclides

QI Wen-qi, CHEN Guang, XI Jun-qing, ZONG Hui-juan, SUN Zong-guang, WANG Zhi-guo, WANG Qiang  
(China National Environmental Monitoring Center, Beijing 100029, China)

**Abstract:** As a result of nucleus test and nucleus electricity station building in developed countries, the pollution of radioactive nuclides to environment has been concerned in the world. In our country, the monitoring to radioactive intensity is implementing, but to nuclides, it is weak relatively. In this paper, the pollution to air, water, and aquatic organism of nucleus establishment divulge and the course of cutting the pollution is introduced, the pollution level of radioactive nuclides and monitoring sort, methods in developed countries at present is reviewed.

**Key words:** Radioactive nuclides; Pollute; Transference; Monitoring object; Monitoring methods

自 1945 年美国 Trinity Site 进行核爆炸试验, 并在日本长崎和广岛投放原子弹以来, 美国、前苏联、英国和法国等国家在大气圈中进行核爆炸试验研究估计已达 520 余次, 核爆炸量可达 545 Mt (1 Mt 相当于 100 万 t TNT 换算出的爆炸量)<sup>[1]</sup>。核试验导致  $^{90}\text{Sr}$  (半衰期 28.8 a) 和  $^{137}\text{Cs}$  (半衰期 30.1 a) 大量释放到环境中。在核爆炸中核分裂收率和单位生成量  $^{90}\text{Sr}$  为 3.5% 和  $3.9 \times 10^{15} \text{ Bq} \cdot \text{Mt}^{-1}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  为 5.57% 和  $5.9 \times 10^{15} \text{ Bq} \cdot \text{Mt}^{-1}$ <sup>[1]</sup>。释放到大气中的放射性核素在平流层和对流层扩散, 到达平流层的放射性核素经过几个月至数年后, 随降雨到达地面, 在对流层的停留时间较短, 然后沉降到地球表面。早在 20 世纪 60 年代, 一些发达国家就开始进行放射性核素污染调查<sup>[2]</sup>。自 1986 年前苏联发生切尔诺贝利原子能发电站泄漏事故以来, 放射性核素监测及污染控制得到了众多国家的高度重视<sup>[3]</sup>。海湾战争和伊拉克战争使用了贫铀弹, 放射性核素监测也是建立战争与恐怖防御体系的重要内容之一。

经受过原子弹爆炸伤害的日本对核素放射污染倍加重视。三浦<sup>[4]</sup>介绍了日本放射性核素的监测体制、调查得出的基础数据, 以及 1963 年—1999 年期间  $^{90}\text{Sr}$  和  $^{137}\text{Cs}$  在水中的浓度变化情况。

### 1 切尔诺贝利核电站污染事故

切尔诺贝利核电站污染事故是从核反应堆中心释放出核燃料、反应堆的结构材料及冷却材料石墨等放射性物质。自 1986 年 4 月 26 日发生泄漏以来, 一直持续 10 a 才得到控制。释放到环境中的污染物以 Kr、Xe 等稀有气体为主, 这些都是半衰期很短的核素, 也有部分  $^{131}\text{I}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  和  $^{134}\text{Cs}$  以气态释放。Cs 的沸点较低, 气态 Cs 的同位素随大气流动输送到远方, 在核电站周边沉降较少。调查发现, 在核电站周围几十千米范围内有放射性核素沉降。

收稿日期: 2003-04-25

作者简介: 齐文启 (1946—), 男, 河北保定人, 研究员, 博士, 主要从事环境监测研究工作。

将核电站周围 20 km~ 40 km 列为重点控制区域 (the Exclusion Zone), 1998 年该区域<sup>137</sup>Cs 对地表面污染密度为 370 kBq·m<sup>-2</sup>~ 390 kBq·m<sup>-2</sup>, 而在日本受到原子弹爆炸影响的区域,<sup>137</sup>Cs 对地表面污染密度约为 3 kBq·m<sup>-2</sup>。

## 2 切尔诺贝利核电站污染事故对水系的污染<sup>[5,6]</sup>

### 2.1 对 Pripyat 河的污染

切尔诺贝利核电站泄漏事故发生数周后, 水系中的主要污染核素是水溶性的<sup>131</sup>I (放射性强度为 1.8 × 10<sup>18</sup> Bq), 以及稀有气体等半衰期短的核素分裂产生的<sup>103</sup>Ru、<sup>106</sup>Ru、<sup>95</sup>Zr 等。表 1 列出了 1986 年 5 月 1 日核电站旁 Pripyat 河水的监测结果, 以及 1996 年英国饮用水浓度限值 (Generalized Derived Limits, GDLs) 和日本饮食摄取限值。GDL 是 1 a 摄取的饮用水给出 1 mSv 暴露量的浓度, 1 mSv 是人的食物、饮水中所含的放射性核素在 1 a 间体内暴露量的 2~ 3 倍。日本制定限值标准时除饮用水外, 还考虑了食品等摄入的情况<sup>[7]</sup>。

表 1 Pripyat 河水的监测结果及限值标准<sup>[6,7]</sup> Bq·L<sup>-1</sup>

放射性核素	监测结果	英国饮用水浓度限值	日本饮食摄取限值
<sup>137</sup> Cs	250	100	200
<sup>134</sup> Cs	130	90	—
<sup>131</sup> I	2 100	20	300
<sup>90</sup> Sr	30	50	—
<sup>140</sup> Ba	1 400	—	—
<sup>99</sup> Mo	670	—	—
<sup>103</sup> Ru	550	880	—
<sup>106</sup> Ru	177	80	—
<sup>144</sup> Ce	380	—	—
<sup>141</sup> Ce	400	—	—
<sup>95</sup> Zr	400	—	—
<sup>95</sup> Nb	420	—	—
<sup>241</sup> Pu	33	400	—
<sup>239</sup> Pu, <sup>240</sup> Pu	0.4	7	1

由表 1 可知, 事故发生后, Pripyat 河水中<sup>131</sup>I 达 2 100 Bq·L<sup>-1</sup>, 远远超出英国和日本的标准限值; 短半衰期核素分裂产物<sup>140</sup>Ba 为 1 400 Bq·L<sup>-1</sup>, <sup>103</sup>Ru、<sup>106</sup>Ru、<sup>141</sup>Ce、<sup>144</sup>Ce 也达到了相当高的浓度水平。这些核素的质量浓度数周后很快下降, 主要原因是稀释、扩散作用与集水区土壤和底质的吸附。半衰期约为 8 d 的<sup>131</sup>I 质量浓度降低主要是因为自然衰减。

### 2.2 <sup>137</sup>Cs 和<sup>90</sup>Sr 对水系的污染

事故发生数月后, 对水系造成污染的主要是半衰期较长的放射性核素<sup>137</sup>Cs 和<sup>90</sup>Sr。在核电站周围 20 km~ 40 km 范围内,<sup>137</sup>Cs 的放射性强度减少达 6 × 10<sup>15</sup> Bq。1986 年 5 月 1 日, Pripyat 河水中<sup>137</sup>Cs 的质量浓度为 250 Bq·L<sup>-1</sup>, 1987 年为 2 Bq·L<sup>-1</sup><sup>[6]</sup>, 目前距核电站约 10 km 的下游河段中<sup>137</sup>Cs 的质量浓度仅为 0.1 Bq·L<sup>-1</sup>。日本的<sup>137</sup>Cs 质量浓度水平约为 1 mBq·L<sup>-1</sup>~ 0.1 Bq·L<sup>-1</sup>, 大部分是由核设施排放的污染核素。

<sup>90</sup>Sr 与<sup>137</sup>Cs 的污染特征不同,<sup>90</sup>Sr 的挥发特性较小, 很少以气态形式逸散于距事故发生地较远的环境中, 即使约 1/2 的反应堆燃料泄漏 (放射性强度约为 4 × 10<sup>15</sup> Bq), 也只使事故发生地 20 km~ 40 km 范围受到扩散污染。因此, 事故发生后 Pripyat 河水中<sup>90</sup>Sr 的质量浓度仅为 30 Bq·L<sup>-1</sup>, 目前大约为 1 Bq·L<sup>-1</sup>, 而且近 10 a 一直恒定在此浓度水平。

<sup>90</sup>Sr 和<sup>137</sup>Cs 由于其盐类等化合物易溶于水, 所以是切尔诺贝利核电站附近的河流、湖泊中最主要的污染核素。

### 2.3 距核电站较远水系的污染程度

受到核泄漏事故严重污染的 Pripyat 河下游的 Teremtsy 水系也受到了上游来水的污染。监测调查发现, 1986 年 5 月 1 日, 在距核电站大约 30 km~ 80 km 的下游人工湖中,<sup>131</sup>I 达到 500 Bq·L<sup>-1</sup>, 其中一部分是上游流水带来的污染, 另一部分是大气沉降物造成的污染; 在事故发生后的第 37 天,<sup>131</sup>I 的质量浓度为 20 Bq·L<sup>-1</sup>, 可见其在人工湖区域降低很快。

对于人工湖下游的 Teremtsy 水系中<sup>137</sup>Cs 和<sup>90</sup>Sr 的污染状况, Voitsekhovitch 等<sup>[5]</sup>的调查监测发现, 在从高浓度区域向下游扩散的过程中, 2 种核素的迁移行为不同。易被悬浮物和底泥吸附的<sup>137</sup>Cs 在 Teremtsy 水系中流入量的 98% 被入黑海前的 7 个人工湖捕集沉降, 距事故发生地最远的凯浦人工湖明显富集了<sup>137</sup>Cs; 而<sup>90</sup>Sr 在顺流而下的过程中很少被捕集沉降, 大约有 40%~ 50% 流入黑海。

距核电站较远的水系除了受到放射性核素随水的迁移污染外, 还有气态核素随空气流动过程中受大气颗粒物捕集沉降和降水沉降带来的污染。俄罗斯西部的 Gomel 地区受放射性核素的影响较严重, 尽管该地区距事故发生地 100 km~ 150 km, 但地表面<sup>137</sup>Cs 的污染密度与事发地大致相同<sup>[5]</sup>。

图 1 和图 2 为 Pripyat 河和 Teremtsy 河中<sup>137</sup>Cs 质量浓度的历年变化, 与事故发生时的污染状况相比, 目前已有明显改善。

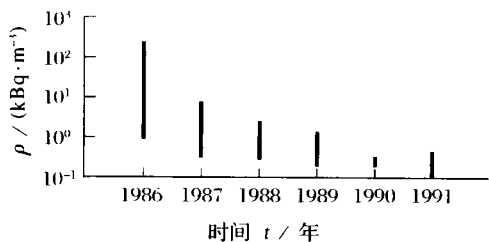


图 1 Pripyat 河中<sup>137</sup>Cs 质量浓度的历年变化

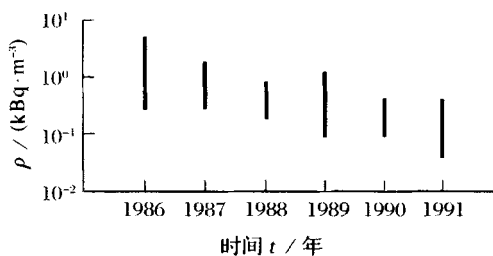


图 2 Teremtsy 河中<sup>137</sup>Cs 质量浓度的历年变化

其他北欧地区、英格兰西部、意大利和阿尔卑斯地区的河流、湖泊也受到了<sup>137</sup>Cs 的污染。事故中排放的放射性核素甚至迁移到了日本, 事故发生后日本监测出河水中<sup>137</sup>Cs 的质量浓度明显增加。Hirose 等<sup>[8]</sup>监测表明, 利根川水中<sup>137</sup>Cs 的质量浓度在事故发生前的 1985 年 11 月为 0.085 mBq·L<sup>-1</sup>, 1986 年 2 月为 0.39 mBq·L<sup>-1</sup>, 而在事故发生后的 1986 年 6 月高达 1.39 mBq·L<sup>-1</sup>。

#### 2.4 核燃料粒子和放射性污染

在切尔诺贝利核电站事故中, 除了 Pripyat 河受到水和放射性沉降物的污染外, 土壤受淋溶释放的放射性核素的污染也不容忽视。土壤中放射性核素的释放情况与核素种类、土壤特性有关。

核燃料中的 UO<sub>2</sub> 一般以微细的粒子形态存在。UO<sub>2</sub> 在地表环境中化学稳定性较差, 事故发生后, 以微小粒子态释放到环境中的 UO<sub>2</sub>, 遇到降水和土壤有机质时很容易溶解, 产生质变过程。<sup>137</sup>Cs 具有易被土壤粘粒吸附的性质, 尤其是层状结晶结构的粘土矿的层间距离与 Cs 的离子半径大致相

等, 使 Cs 离子进入结晶层中间发生质变。<sup>90</sup>Sr 的迁移转化形式与 Ca 相似, 一般不被粘土矿物吸附, 难以形成无机或有机络合物, 容易在淋溶后从受污染的土壤向水系迁移。自 1990 年以来, 河水中<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr 的质量浓度和迁移量发生了变化, 其中<sup>90</sup>Sr 的质量浓度和迁移量随着水流量的增加而增加, 这是由于冰雪融化和降水使河水量增加, 将周围受污染土壤中的<sup>90</sup>Sr 淋溶并带入水环境。

#### 2.5 放射性核素和水中溶解性有机物

核泄漏事故区域内的 Pripyat 河及支流 Sahan 河、Uzh 河的水质情况如下: pH 6.8~9.2, 电导率 170 mS·m<sup>-1</sup>~380 mS·m<sup>-1</sup>, 重碳酸盐 80 mg·L<sup>-1</sup>~230 mg·L<sup>-1</sup>, 溶解性有机碳 9 mg·L<sup>-1</sup>~25 mg·L<sup>-1</sup>。河水由于存在以高分子电解质溶解的有机物腐殖质富敏酸、胡里素等而呈茶褐色<sup>[9]</sup>。这些腐殖质类物质极易与微量元素和放射性核素形成络合物<sup>[10]</sup>。用排阻高效液相色谱法和三维荧光分光光度法测定, 发现切尔诺贝利核电站附近的河水中腐殖质类含量很高, 约占溶解性有机物含量的 80%<sup>[11]</sup>, 其中乳酸类比胡敏酸的含量高, 约占 92%~97%, 其他河水也存在这种情况<sup>[12]</sup>。

河水中的溶解性有机物主要来源于流域土壤, 对土壤中污染物的迁移起着重要作用。研究发现, 在核泄漏事故发生后, 放射性核素在有机质较高的土壤表层含量异常高。用水提取受污染的土壤, 大约有 1%~4% 的<sup>90</sup>Sr、<sup>137</sup>Cs、Pu 和 Am 被浸出<sup>[13]</sup>。由此可见, 放射性核素主要以有机络合物的形态存在于土壤环境中。

河水中溶解性有机物的存在会影响放射性核素的迁移和转化。研究 Sahan 河水中溶解性有机碳(DOC)的质量浓度与溶解态和悬浮态放射性核素分配系数的关系, 发现随着 DOC 质量浓度的增加, Pu、Am 和 Cm 的表观分配系数减小; 没有发现这些放射性核素与碳酸盐等其他配位基团的相关关系; 由于这几种放射性核素与溶解性有机物形成络合离子, 所以被悬浮颗粒物吸附的可能性变小;<sup>90</sup>Sr 和<sup>137</sup>Cs 的分配系数与 DOC 的质量浓度之间未发现相关性<sup>[9]</sup>。

(未完待续)