

我国环境土壤和地表水沉积物中 Pu 的分布特征研究

卜文庭, 郭秋菊

(北京大学物理学院核物理与核技术国家重点实验室, 北京 100871)

摘 要: 我国不同地区表层土壤 Pu 放射性活度水平有较大差异, 总体来讲²³⁹⁺²⁴⁰Pu 活度浓度均在 1 mBq/g 以下。新疆核试验场上风向地区已有研究结果表明 Pu 来源于全球大气沉降, 没有受到我国核试验的影响; 而下风向地区, 有采样点表明²³⁹⁺²⁴⁰Pu 沉积通量达到了同纬度全球沉降值的 5 倍以上 (> 300 Bq/m²), 而湖泊沉积物中有低于全球沉降²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子比值的报道。但由于报道数据有限, 尚不能全面评价我国核试验对下风向地区的影响大小和影响范围。我国核试验场周边以外地区 Pu 沉积通量均在全球沉降范围以内 (10 ~ 60 Bq/m²), ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 比值也与全球沉降比值 (0.18) 没有显著差异。Pu 在不同类型的土壤中呈现出不同的分布形式, 其迁移行为受到土壤类型、气候条件等多种因素的影响。

关键词: 钚; 土壤; 地表水沉积物; 中国

中图分类号: X837

文献标识码: A

钚 (Pu) 是一种与国防和能源领域密切相关的人工放射性核素。20 世纪 80 年代全球大气层核试验停止后, 美、俄等有核国家相继开展了核试验场周边环境中的钚的相关调查研究, 借以评价其环境放射性影响^[1-4]。近年来随着人们对环境放射性问题关注的提高, 我国有关环境中钚的放射性活度水平与分布特征的研究也逐渐增多。开展此领域的调查和研究, 既可为评价我国核试验对局部地区环境的影响提供科学依据, 也可为当今我国核能事业的发展提供重要的背景数据。

本文综述了我国环境介质 (主要是土壤和地表水沉积物) 中钚分布水平的研究成果, 并

对我国环境中钚的分布特征进行了讨论。

1 钚的辐射特性及其来源

1.1 钚的同位素及其辐射特性

Pu 有 20 种同位素 (原子量 228 ~ 247), 这些同位素中除了²⁴⁴Pu 存在微量的天然成分以外, 其余全部来源于人类核活动, 而²³⁸Pu (87.7 a)、²³⁹Pu (24 110 a)、²⁴⁰Pu (6 561 a)、²⁴¹Pu (14.35 a) 最引人关注。Pu 的摄入会对人体健康造成危害, 在放射性核素毒性分组中, 其位于极毒组^[5]。表 1 列出了几种常见 Pu 同位素的基本辐射特性。

表 1 Pu 主要同位素的辐射特性^[6]

Tab. 1 Nuclear properties of important Pu isotopes

	半衰期 (a)	放射性比活度 (Bq/g)	主要衰变类型	产生实例
²³⁸ Pu	87.7	6.338×10^{11}	α	²⁴² Cm 衰变子体
²³⁹ Pu	2.411×10^4	2.296×10^9	α	²³⁸ Np 衰变子体
²⁴⁰ Pu	6.561×10^3	8.401×10^9	α	²³⁹ Np 衰变子体
²⁴¹ Pu	14.35	3.825×10^{12}	β	多次中子捕获
²⁴² Pu	3.75×10^5	1.458×10^8	α	多次中子捕获
²⁴⁴ Pu	8.08×10^7	6.710×10^5	α	多次中子捕获

收稿日期: 2011-11-25

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (A0150507)。

作者简介: 卜文庭 (1988—), 男, 2010 年毕业于北京大学物理学院, 现为北京大学物理学院粒子物理与核物理专业博士研究生。

通讯作者: 郭秋菊。E-mail: qjguo@pku.edu.cn

1.2 环境中钚的来源

环境中钚的来源主要是 20 世纪 40 年代至 80 年代全球进行的一系列大气层核试验。前苏联、美国、英国、法国和我国在半个世纪中共进行了 543 次大气层核试验,向环境中释放了 1.1×10^{16} Bq 的 $^{239+240}\text{Pu}$ [7]。大气层核试验会对核试验场周边地区造成区域性污染,而大当量的核爆还会将大部分核爆产物直接送入大气平流层从而形成全球大气沉降。此外,核设施泄露、卫星发射和反应堆事故等也会造成 Pu 向环境中释放 [8]。

由于世界主要核试验场位于北半球, Pu 的全球分布也存在着明显的纬度分布特征,如图 1 所示,整体上呈现北半球较高,南半球较低的特点。不同来源的 Pu 同位素比值不尽相同, Kelly 等 [10] 分析了 20 世纪 70 年代全球采集的 50 多个土壤样品,得到 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比值在 0.18 左右,这是全球大气层核试验混合的结果。

自 1964 年我国首次进行威力 22 kt TNT 当量的原子弹装置爆炸试验以来,至 20 世纪 90 年代初,我国在罗布泊地区共进行了 23 次大气层核试验,其中最大当量为 4 Mt TNT [11]。受核试验场风向影响,我国大气层核试验放射性烟云自罗布泊向东南方向运动 [12],可能的影响范围为新疆东南部及甘肃西北地区。放射性核

素会随着核爆烟云的运动通过干沉降和湿沉降两种方式达到地面。

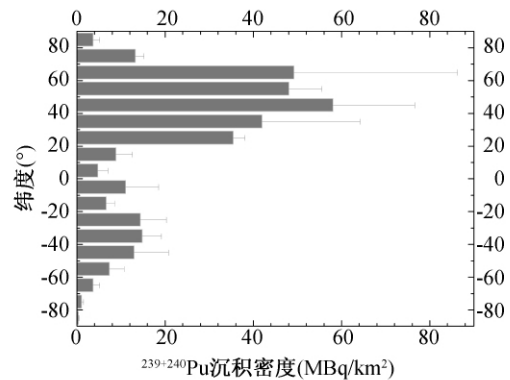
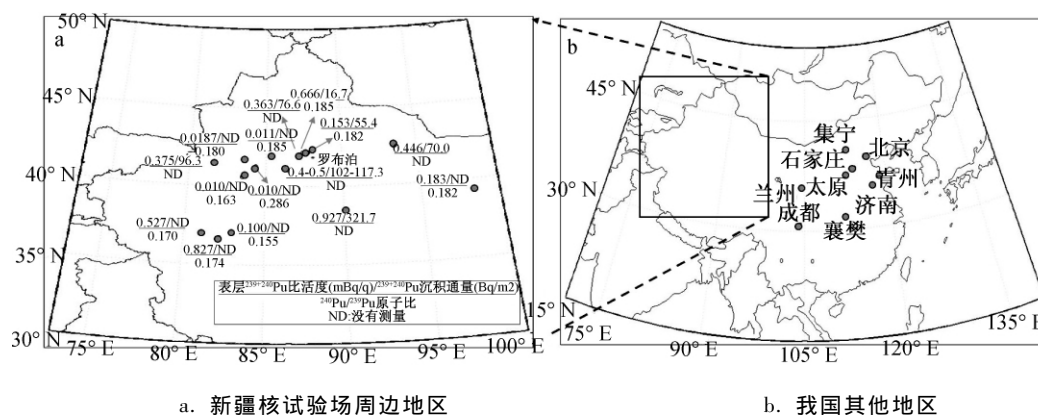


图 1 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉积通量密度的全球纬度分布特征 [9]

Fig. 1 Average latitudinal distribution of global inventory of $^{239+240}\text{Pu}$ fallout

2 我国环境土壤中钚的放射性活度浓度与分布特征

我国针对核试验场周边环境钚放射性活度水平的调查始于上世纪 80 年代 [13],董微等 [14] 也于近年对新疆地区土壤中 Pu 活度浓度进行了研究。此外,针对华北、中部、西南等地区也有文献数据报道 [15-18]。将我国环境中 Pu 核素信息报道的地点及新疆地区 Pu 分布特征总结绘制如图 2 所示。



a. 新疆核试验场周边地区

b. 我国其他地区

图 2 我国环境土壤中有 Pu 信息报道的地区

Fig. 2 Regions/provinces of China with Pu being identified in soils

2.1 表层土壤 $^{239+240}\text{Pu}$ 活度浓度

表层土壤钚的活度浓度反映了采样时钚在土壤表层中的活度水平。Zhu 等 [19] 使用我

国表面土壤中 ^{137}Cs 的实测数值和推荐的全球沉降 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 的活度比例 (0.02) 计算得出我国表面土壤中 Pu 的活度浓度(下文未经

说明,均指²³⁹⁺²⁴⁰Pu 活度浓度)如下:在我国北方区域(>45°N),²³⁹⁺²⁴⁰Pu 约为 0.5 mBq/g;中部地区(25°N~45°N),约为 0.2 mBq/g;南方区域(<25°N),约为 0.1 mBq/g。这一推算值没有考虑来自我国核试验可能造成的局部区域的钚的沉降。

2.1.1 新疆核试验场周边地区

在核试验场上风向地区,张聚敬等^[13]的研究表明表层土壤 Pu 活度浓度在 0.363~0.679 mBq/g 之间;而董微等^[14]采集的 10 个表面土壤样品钚的活度浓度在 0.010~0.827 mBq/g 之间,平均值为 0.215 mBq/g。这些已知的上风向地区的表层样品钚活度浓度与文献^[19]的推算值大致符合,可见上风向地区没有受到明显的来自我国大气层核试验的影响。

在核试验场下风向地区,除了米兰地区外(0.927 mBq/g),研究报道的数据非常有限,特别在位于我国核试验场较近的甘肃西北地区,目前尚未见有关土壤钚的信息报道。Zheng 等^[17]分析了兰州土壤样品,结果发现表层土壤(0~1 cm)的钚活度浓度仅为 0.023 mBq/g。考虑到该地区属于干旱、半干旱地区,植被覆盖不均,钚核素的纵向迁移较为活跃,而采样年代距我国核试验主要时间有 20 年甚至更大的时间跨度,表层样品的钚活度浓度很难代表土壤中的钚含量总体水平,我国核试验的影

响水平及范围不明确。

2.1.2 我国其他地区

将图 2b 中标注地区报道的相关钚信息整理如表 2 所示。从表 2 中看出,西南地区成都表层土壤²³⁹⁺²⁴⁰Pu 活度浓度仅为 0.04 mBq/g;华中襄樊地区表层土壤²³⁹⁺²⁴⁰Pu 活度浓度在 0.3~0.4 mBq/g 之间;而华北地区不同采样点之间存在着一定的差异,总体上表层土壤钚活度浓度在 0.4 mBq/g 以下。

以上结果表明,在有信息报道的地区,表层土壤钚的活度浓度在 1 mBq/g 以下,与 Zhu 等(2002)的推算值比较,没有显著的区域性差异,考虑到每一个地区的气候地形条件相差巨大,表层土壤的活度浓度仅能代表采样年代该地区的钚活度水平。Kim 等^[20]报道的韩国表层土壤钚活度浓度在 0.18~1.85 mBq/g 之间;Shabana and Al-Shammari^[21]报道的沙特阿拉伯表层土壤钚活度浓度在 0.02~0.50 mBq/g 之间,这与我国大部分地区表面土壤钚的活度浓度水平相当。

2.2 Pu 在土壤中的沉积通量

钚的沉积通量反映了当地自有核素钚的沉降开始到采样时刻钚的沉降总量。如果某地区 Pu 沉积通量高于图 1 所示同纬度全球沉降值,则一般认为该地区受到了来自周边核设施的区域性影响。

表 2 我国部分地区土壤中钚活度浓度与分布特征

Tab. 2 Concentration and distribution of Pu in soils of some places in China

地点	采样点数	表层 ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu 活度浓度(mBq/g)	沉积通量(Bq/m ²)	²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu 原子比	参考文献
北京	11	0.363 ± 0.152 ^m	—	—	[15]
华北	2	0.149 ± 0.015	35.7	—	[16]
		0.066 ± 0.008	10.1	—	
集宁	1	0.237 ± 0.014	—	0.185 ± 0.025	[18]
青州	1	0.013 ± 0.001	—	0.206 ± 0.020	[18]
济南	2	0.174 ± 0.015	33.9	—	[16]
		0.119 ± 0.021	36.4	—	
兰州	1	0.023 ± 0.003	32.4	0.182 ± 0.008	[17]
太原	1	0.040 ± 0.007	10.5	—	[16]
石家庄	1	0.075 ± 0.008	14.8	—	[16]
成都	2	0.04 ± 0.006	—	0.223 ± 0.019	[18]
		<0.010	—	0.184 ± 0.021	
襄樊	2	0.358 ± 0.021	44.9	0.186 ± 0.008	[18]
		0.380 ± 0.016	54.6	0.198 ± 0.006	

注:—表示没有相关测量数据; m 表示 11 个采样点平均值。

钚的沉积通量定义为各层样品中的钚的活度浓度和各层样品质量深度之积的加和,即:

$$I = \sum_{i=1}^n A_i d_i \rho_i k$$

式中 I 为沉积通量, Bq/m^2 ; A_i 为第 i 层土壤中的 Pu 活度浓度, Bq/g ; d_i 为第 i 层土壤厚度, cm ; ρ_i 为第 i 层土壤密度, g/cm^3 ; k 为量纲调节系数。

新疆核试验场周边地区除下风向米兰地区 ($321.7 \text{ Bq}/\text{m}^2$)^[13] 以外,其余地区没有发现明显有别于全球沉降的数据报道。而下风向地区报道的数据有限,不足以评价我国核试验区域性影响的具体范围与影响程度。我国其他地区 Pu 沉积通量均在 $60 \text{ Bq}/\text{m}^2$ 以下,可以判定 Pu 来源于全球大气沉降,没有受到我国核试验的影响。

2.3 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比

不同来源 Pu 的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比不同,因此 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比可作为一个重要指标对 Pu 的来源进行判断。随着加速器质谱法 (AMS)、电感耦合等离子质谱法 (ICP-MS)、热电离质谱法 (TIMS) 等测量方法的应用, $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比逐渐得到较精确的分析。美国内华达核实验场、马绍尔群岛核实验场等实验场的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比得到了较好的确认^[23,24],而我国核爆所产生的 Pu 这一同位素比值信息相对匮乏。Warnke^[24] 等及 Koid^[25] 等对极地冰芯的调查结果推断我国核试验场产生钚的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值在 0.25 左右。金玉仁等 (2004)^[26] 分析了西安和甘肃两地土壤样品的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比,结果发现,西安样品的这一值是 0.18,而甘肃为 0.16。董微等^[14] 分析的新疆、湖北、北京等地以及 Zheng 等^[17] 分析的兰州土壤样品中的钚同位素比值都与全球沉降比值 0.18 没有显著的差异。由于公布的土壤钚信息有限,从已报道的结果还不能断定出我国核试验产生的钚特征同位素比值。

2.4 Pu 在土壤中的纵向迁移

研究放射性核素在土壤的纵向迁移有助于评价其潜在危险性:较慢的迁移将导致放射性核素在表层土壤中较长时间的停留;而较快

的纵向迁移意味着其将较快的进入到地下水中。放射性核素迁移速率的大小主要取决于降水量、土壤的结构及组成成分、土壤的化学状态 (pH 值、EH 值等)、放射性核素的物理化学性质等^[27]。目前,在世界范围内针对 Pu 核素在土壤中的纵向迁移行为的研究已经广泛地开展,不同土壤类型中钚的迁移行为逐渐被认识。Pu 也因此逐渐替代¹³⁷Cs 被广泛地作为海洋运动、土壤流失等研究的示踪剂^[28]。

在我国,黄鹤翔等^[29] 针对一地区 5 个深度的土壤样品进行了分析,结果发现随着土壤深度的增加,钚的放射性比活度逐渐降低,表面 10 cm 的钚含量达到了 85% 以上,计算得到钚在土壤中的迁移率 $\leq 1 \text{ cm}/\text{a}$ 。Zheng 等^[17] 对兰州土壤中钚的分布结果表明兰州土壤中上层 10 cm 内土壤钚的含量仅占到钚沉积通量的 17%,而钚的分布峰值出现在土壤表面以下 13 cm 处。董微等^[14] 研究了湖北土壤中钚分布,发现了钚分布峰值有两种形式,分别为出现在表层和表层以下约 5 cm 处。总体来讲,与黄鹤翔等的研究结果相似,土壤中上层 10 cm 钚的含量达到了 95% 以上。由于兰州和湖北具有完全不同的土壤类型和气候条件,降水量、土壤有机质含量、土质组成的差异导致了不同的钚迁移速率。因此建立多变量、具有广泛适用性的土壤 Pu 迁移模型对评价 Pu 的环境影响具有实际应用意义。

3 我国江河湖泊沉积物中钚的活度浓度与分布

Pu 由大气沉降进入水体后,会通过重力沉降、水体对流等形式沉积到沉积物中,水体沉积物中的 Pu 信息很好地反映了 Pu 在该地区的沉降历史。近年来,南京大学及中科院地球化学研究所分别与日本放射医学综合研究所合作,开展针对我国长江河口及 12 个湖泊沉积物中放射性核素铯和钚的分布特性研究,并以此进行沉积物溯源及年代学应用^[30-35]。

3.1 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉积通量与垂向分布特征

由已发表的结果看,我国湖泊沉积物中 Pu 沉积通量差异较大。在西北地区,分别在甘肃

省的苏干湖和双塔湖中观察到了 20.2 MBq/km² 的低值和 240.6 MBq/km² 的高值^[33],均异于同纬度全球沉降值,低值的出现可能源于西北地区相对干旱的气候,而高值的出现被认为是地表侵蚀的影响,是否跟我国核试验相关还需进一步论证。在西南地区,云南省的程海湖与贵州省的红枫湖沉积通量分别为 35.4 MBq/km² 和 60.7 MBq/km²,与同纬度全球沉降值没有显著性差异^[33]。然而在云南滇池和江苏太湖中,沉积通量却异常低(分别为 7.0 MBq/km² 和 4.8 MBq/km²)^[36],可能受到了生物扰动、人为扰动等因素的影响。

因为大气层核试验时间集中在上世纪 40—80 年代,Pu 在沉积物中的分布也表现出明显的年代特征,通常呈现出随深度先逐渐升高后逐渐减低的分布形式。将 Pu 分布峰值位置与 1964 年全球沉降高峰期相对照,可以对沉积物沉积速率进行计算,并为近代沉积物定年提供依据。Wu 等(2010)利用这一原理计算得到甘肃省得双塔和苏干湖以及吉林省的四海龙湾三个湖泊的沉积物沉积速率分别是 0.651、0.058~0.061 和 0.015 g·cm⁻²·a⁻¹^[33]。

3.2 ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子比

由于沉积物中不同深度的 Pu 很好的反映了年代学特征,利用其与²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子比的特征结合能够对沉积物中 Pu 的来源进行判定。

3.2.1 ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子比对沉积物溯源的应用

Liu 等(2011)分析了长江口沉积物中 Pu 的分布特征,观察到从河岸线到海域及从北到南逐渐升高的²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子比值(>0.18),表明长江河口有来自美国太平洋试验场的 Pu 贡献(原子比 0.33~0.36)。并利用双源混合模型计算表明,洋流对长江口沉积物的贡献与河流对长江口沉积物的贡献几乎相当^[35]。

3.2.2 西北湖泊沉积物中异常²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子比

Wu 等^[31]在程海湖中观察到了相对全球沉降稍高的²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子比,推测有我国核试验的来源贡献。而同样在离我国核试验场更近的新疆省博斯腾湖和甘肃省苏干湖中,却分

别观察到了 0.107 和 0.103 的²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子比值^[33],此值低于全球沉降值,且与 Warnke 等(2002)及 Koid 等(1985)推测的我国核试验特征原子比差异较大。由于我国核试验²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 比值尚无明确定论,此三处湖泊中异常 Pu 来源尚需进一步考证。

4 结论与展望

通过对至今已经公开发表的有关我国环境中钚的活度水平和分布特征的数据的综述分析,可以发现与其他有核国家相比,我国的调查研究数据匮乏,很难给出细致的描述。现阶段可以初步认为:

(1) 围绕新疆核试验场周边,在其上风向地区,无论是表面土壤中钚的放射性比活度还是沉积通量,虽然不同采样点差异较大,但整体水平近似于同纬度全球沉降值,没有发现显著的来自我国核试验场的局域性影响;但在其下风地区,米兰地区有报道沉积通量达到 300 Bq/m²,可以考虑是受到了我国核试验场的局域性影响,但影响范围以及影响水平尚难以确定。

(2) 由于我国西北属于干旱区,植被匮乏,多风沙,考虑到钚在土壤中的纵向迁移、气溶胶再悬浮和长距离扩散等环境因素,表层土壤中保存的有关钚的信息已经非常有限。

(3) 在新疆核试验场周边以外的我国其他地区,钚的沉积通量整体水平处于同纬度全球沉降值范围;表层土壤中的放射性活度浓度虽然由于受不同地区土壤类型(土壤粒径组成、有机质含量等)的影响,存在着一定差异,但结果都在 1mBq/g 以下,同时²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子比值也处于全球沉降比值范围内,可以认为这些地区钚的来源是全球大气沉降,没有观察到来自我国核试验的局域性影响。

(4) 关于人们关心的我国大气层核试验产生的钚的特征同位素比值,在西北湖泊中有明显低于全球沉降值的数据报道,但数据有限,尚难以给出确切的数值。

(5) 随着痕量 Pu 测量技术的发展,Pu 作为环境示踪剂在湖泊沉积物近代定年应用中可靠性得到验证。

针对我国环境中钚核素放射性比活度与分布特征的研究刚刚起步,在今天我国核电事业大力发展的背景下,调查和评价我国核试验的区域性影响,提供完善的环境放射性核素的数据信息,有重要的应用价值和科学意义。

可以展望,凭借不断完善的测量手段,如 AMS、ICP-MS 以及 TIMS 等先进的测量设备,开展钚核素土壤中迁移模式研究、我国大气层核试验产生的特征²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子比值判断研究、我国大气层核试验对下风向地区的区域性影响,包括影响范围和水平的调查研究,以及气象条件导致的钚随气溶胶的中长距离迁移等研究,必将会切实推动我国在该领域的研究发展,完善环境数据库,为核工业的安全发展评价提供科学参考依据。

参考文献:

- [1] Essington EH, Fowler EB, Gilbert RG, et al. Plutonium, americium and uranium concentrations in Nevada Test Site soil profiles//IAEA. international symposium on transuranium nuclides in the environment [C]. USA: International Atomic Energy Agency, 1975: 157-173.
- [2] Yamamoto M, Hoshi M, Takada J, et al. Pu isotopes and ¹³⁷Cs in surrounding areas of the former Soviet Union's Semipalatinsk nuclear test site[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 1999, 242(1): 63-74.
- [3] Turner M, Rudin M, Cizdziel J, et al. Excess plutonium in soil near the Nevada Test Site, USA [J]. Environmental Pollution, 2003, 125: 193-203.
- [4] Buesseler KO. The isotopic signature of fallout plutonium in the north pacific [J]. Journal of Environmental Radioactivity, 1997, 36(1): 69-83.
- [5] 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.
- [6] Morss LR, Edelstein NM, Fuger J, et al. The Chemistry of the Actinide and Trans-actinide Elements[M]. Dordrecht: Springer, 2006.
- [7] UNSCEAR. Sources and effects of ionizing radiation[R]. United Nations, New York, 2000.
- [8] Hu QH, Weng JQ, Wang JS. Source of anthropogenic radionuclides in the environment: a review[J]. Journal of Environment Radioactivity, 2010, 101: 426-437.
- [9] Krey PW. Remote plutonium contamination and total inventories from Rocky Flats [J]. Health Physics, 1976, 30(2): 209-214.
- [10] Kelley JM, Bond LA, Beasley TM. Global distribution of Pu isotope and Np [J]. The Science of The Total environment, 1999, 237/238: 483-500.
- [11] 叶常青,任天山,喻名德.核武器试验环境辐射与人类健康[M].北京:国防工业出版社,2009.
- [12] 谢滋.参加我国首次核试验场外高空放射性烟云取样测量的回忆[J].中华放射医学与防护杂志,1989,9(5): 340-342.
- [13] 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.
- [14] 董微,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.
- [15] 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: 10-13.
- [16] Sha L, Yamamoto M, Komura K, et al. ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ²⁴¹Am and ¹³⁷Cs in soils from several areas of China [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 1991, 155(1): 45-53.
- [17] Zheng J, Yamada M, Wu FC, 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.
- [18] 董微.放射性同位素钚在环境中的分布与行为研究(D).北京大学,2010.
- [19] Zhu YG, Yang JG, Zhu YI. Radiological research in China: current status and perspectives [C]// Borretzen P, Jolle T, Strand P, Eds. Proceeding from the international conference on radioactivity in the environment. Monaco, 2002: 595-599.
- [20] Kim CS, Lee MH, Kim CK, et al. ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu and ²³⁸Pu concentrations in surface soils of Korea [J]. Journal of Environmental Radioactivity, 1988, 40: 75-88.

- [21] Shabana EI, Al - Shammari HL. 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.
- [22] Buesseler KO, Sholkovitz ER. The geochemistry of fallout plutonium in the north Atlantic: II. $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratio and their significance [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1987, 51 (10): 2 623 - 2 637.
- [23] Muranmatsu Y, Hamuilton T, Uchida S. Measurement of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotopic ratios in soil from the Marshall islands using ICP - MS [J]. *Science of the Total Environment*, 2001, 278(1 - 3): 151 - 159.
- [24] Warneke T, Croudace IW, Warwick PE, 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: 1 047 - 1 057.
- [25] Koide M, Bertine KK, Chow TJ, et al. The $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratio, a potential geochronometer [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 1985, 72 (1): 1 - 8.
- [26] 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, 10: 1 321 - 1 324.
- [27] Solovitch-Vella N, Pourcelot L, Chen VT, et al. Comparative migration behavior of ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in mineral and organic soils of France [J]. *Applied geochemistry*, 2007, 22: 2 526 - 2 535.
- [28] Everett SE, Tims SG, Hancock GJ, et al. Comparison of Pu and ^{137}Cs as tracers of soil and sediment transport in terrestrial environment [J]. *Journal of Environment Radioactivity*, 2008, 99: 383 - 393.
- [29] 黄鹤翔, 田青青, 董文, 等. 土壤中钚的深度分布和结合态研究 [C] // 全国放射性流出物和环境监测与评价研讨会论文集. 北京: 中国核学会, 2003: 411 - 414.
- [30] Liu ZY, Zheng J, Pan SM, et al. Pu and ^{137}Cs in the Yangtze river estuary sediments: distribution and source identification [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45: 1 811 - 1 905.
- [31] Zheng J, Liao HQ, Wu FC, et al. Vertical distributions of $^{239+240}\text{Pu}$ activity and $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio in sediment core of Lake Chenghai, SW China [J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2008, 275(1): 37 - 42.
- [32] Zheng J, Wu FC, Yamada M, et al. Global fallout Pu recorded in lacustrine sediments in Lake Hongfeng, SW China [J]. *Environmental Pollution*, 2008, 152: 314 - 321.
- [33] Wu FC, Zheng J, Liao HQ, et al. Vertical distributions of Plutonium and ^{137}Cs in lacustrine sediments in Northwestern China: quantifying sediment accumulation rates and source identifications [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, 44: 2 911 - 2 917.
- [34] Wu FC, Zheng J, Liao HQ, et al. Distribution of artificial radionuclides in lacustrine sediments in China [J]. *Radiation Protection Dosimetry*, 2011, 146(1 - 3): 291 - 294.
- [35] Wu FC, Zheng J, Liao HQ, et al. Anomalous plutonium isotopic ratio in sediments of Lake Qinghai from Qinghai-Tibetan Plateau, China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45 (21): 9 188 - 9 194.
- [36] 廖海清. 放射性钚和铯在湖泊中的时空分布特性及近代沉积年代学应用 [D]. 中国科学院研究生院, 2008.

(下转第 157 页, Continued on page 157)

rate and ratio at high temperature stage is 10^{4-5} times higher than at normal temperature and that nuclides dissolution largely takes place at high temperature stage. The dissolution ratio of ⁹⁰Sr might between 0.3% and 65% , the dissolution ratio of ²³⁹Pu might between 0.5% and 82% . The key factors affecting nuclides release are temperature , glass dissolution rate and reactive surface area.

Key words: melt glass; temperature; releasing rate; releasing ratio

(上接第 138 页 ,Continued from page 138)

- [8] Lee BY , Tsui KC. Retrospective analysis of radiation fallout in Hong Kong after the Chernobyl accident in 1986 [R]. Environmental Radiation Monitoring in Hong Kong Technical Report No. 6. 1991 ,11: 10.
- [9] 沙连茂. 环境中的²¹⁰Pb [J]. 辐射防护通讯 2004 24 (2) : 14 - 17.
- [10] 秦山核电有限公司. 秦山核电厂扩建项目环境影响报告书(申请审批厂址阶段) [R]. 2006.

Environmental Radiation Monitoring at Qinshan Nuclear Power Base (1992—2011)

Gu Shaozhong , Zhu Yuelong

(CNNC Nuclear Power Operations Management Co. , Ltd. , Zhejiang Haiyan 314300)

Abstract: This paper introduces the environmental radiation monitoring at Qinshan Nuclear Power Base from 1992 through 2011 , including the design of monitoring program , monitoring equipment and methods , quality control measures , and the monitoring data of some major radionuclides as well. Then by analysis , technical challenges and lessons drawn through practices are summarized. Results show the running of Qinshan Nuclear Power Base has no perceptible effects on the environment , and its radioactive environmental quality remains basically at the same level as the background investigated before operation.

Key words: Qinshan Nuclear Power Base; radiation monitoring; quality control; impact

(上接第 150 页 ,Continued from page 150)

Concentration and Characterization of Plutonium in Soils and Groundwater Sediments in China

Bu Wenting , Guo Qiuju

(State Key Laboratory of Nuclear Physics and Technology , Peking University , Beijing 100871)

Abstract: The activity of ²³⁹⁺²⁴⁰Pu in surface soils from different areas of China varies , but typically less than 1 mBq/g. It was indicated by previous study that no influence from Chinese Nuclear Test Site (CNTS) has occurred to the upwind areas. However , the Pu inventory at one point in downwind areas of CNTS is five times higher than that of global fallout and ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu atom ratio in one lake sediment is below 0.18 , which were suggested to be the influence of CNTS. Further field investigations in detail are necessary to master the total figure of CNTS. For the areas far away from CNTS , Pu inventory and ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu atom ratio are both similar with global fallout. The forms of Pu vertical distribution vary for different soils , depending upon various factors (e. g. soil type , weather condition) .

Key words: plutonium; soil; groundwater sediment; China