

· 论文报告 ·

土壤中钚的迁移行为研究

倪有意, 卜文庭, 郭秋菊, 董微

(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)

杨斌, 全葳, 孟瑞杰

(环境保护部核与辐射安全中心, 北京 100082)

摘要: 我国表层土壤中存在的钚主要来自于 20 世纪中后叶大气层核试验之后的全球沉降。本研究以土壤中现存的钚为研究对象, 利用加速器质谱(AMS)和电感耦合等离子体质谱(ICP-MS)对环境中的痕量水平钚同位素精准测量技术, 在我国部分典型地区进行了现场土壤纵向分层采样和实验室测量。在此基础上, 将对流-弥散方程在单次瞬时输入情况下的解与我国不同地区土壤柱中钚核素的垂直分布数据进行了拟合, 得到新疆、湖北、贵州、重庆、甘肃土壤中钚核素的表观对流系数为 0.046 ~ 0.163 cm/a, 表观扩散系数为 0.058 ~ 0.339 cm²/a, 土壤中²³⁹⁺²⁴⁰Pu 浓度峰的迁移速率为 0.063 ~ 0.187 cm/a。实测结果表明, 钚同位素在土壤中的迁移速率与土壤有机质含量有明确的负相关关系。

关键词: Pu; 核素迁移; AMS; ICP-MS; 对流-弥散模型

中图分类号: X837

文献标识码: A

钚(Pu)是与核军工和核电工业密切相关的重要且敏感的核素。20世纪40—80年代以美国和前苏联为主的有核国家进行的一系列大气层核试验, 向环境释放了大量的Pu。这些Pu同位素随大部分核爆产物可以直接进入平流层充分混合, 之后随落下灰在全球范围内通过干湿沉降至地球表面^[1]。沉降到地表的Pu可以通过植物吸收进入生物圈, 也会向土壤介质内迁移。包含Pu元素在内的关键超铀元素在土壤介质中的迁移速率是关系到核环境安全评价的重要参数。过快的迁移速率会加速核素进入地下水, 有可能增加内照射风险^[2]。因此, 研究Pu在土壤中的迁移行为对于核与辐射安全评价具有重要意义。

核素迁移的研究手段主要有理论模拟、实验室土柱喷淋试验和野外土柱喷淋试验。最常用的理论方法是利用土壤溶液的对流-弥散方程(convection dispersion equation, CDE)在不同条件

下进行求解计算, 并通过与实际测量结果的拟合得到表观对流系数 v 和表观扩散系数 D ^[3-6]。除此之外隔室模型(compartment model)和随机行走模型(random walk model)也被用于核素深度分布曲线的模拟^[7]。Smith等^[4]对早期应用于土壤中核素迁移的几种模型进行了比较后认为基于对流-弥散方程的模型具有更直接的物理意义, 并且能够较好地拟合土壤中核素的活度-深度分布曲线。最近Jarvis等^[8]针对土壤生物对土壤(尤其是浅层土壤)中核素迁移的影响, 在对流-弥散模型的基础上增加了生物扰动项来模拟核素迁移过程中由于生物活动引起的土壤中核素混合作用。另外, 不同土壤性质和土壤因素对迁移的影响也有大量的研究报道。Lee等^[9]研究了韩国土壤中有机物、土壤pH值及黏土含量对²³⁹⁺²⁴⁰Pu、⁹⁰Sr和¹³⁷Cs迁移的影响。除此之外Sheppard等^[10]、Gil-Garcia等^[11]对影响迁移过程的重要参数分

收稿日期: 2016-03-07

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(No. 11275015)。

作者简介: 倪有意(1992—), 男, 2014年毕业于北京大学物理学院物理专业, 现为北京大学物理学院辐射防护与环境保护专业博士研究生。E-mail: niyouyi@pku.edu.cn

通讯作者: 郭秋菊。E-mail: qjguo@pku.edu.cn

配系数 K_d 也进行了大量的研究。国内报道的研究中,王榕树等^[12]利用拉普拉斯变换给出了对流-弥散方程在一维近似条件下的解,李书绅等^[13]对²³⁷Np、²³⁸Pu 和²⁴¹Am 在包气带黄土中的迁移行为进行了模拟实验研究,给出了²³⁷Np、²³⁸Pu 和²⁴¹Am 三种核素的平均迁移速率分别为 3.03×10^{-3} 、 2.33×10^{-4} 和 2.33×10^{-4} cm/d,说明这些核素在土壤中的迁移十分缓慢。司高华等^[14]采用静态吸附法和动态柱法对²³⁹Pu 在粘土中的迁移行为进行了研究,研究表明动态喷淋情形下粘土对²³⁹Pu 的延迟系数为 2×10^4 ,相比静态吸附实验更加接近于实际情况,这也说明了野外现场测量的重要性。

实验室研究可以计算出与核素迁移相关的土壤参数如延迟系数、分配系数。原状土或者单一介质的喷淋实验也能进一步给出表观的迁移参数如迁移速率、表观对流系数等。但由于实验土壤和实际环境土壤存在差异,即使是从野外采集的原状土柱,土壤温湿度、有机质含量、微生物含量以及环境降水、土壤演化等动态因素仍然无法与实际环境保持一致。最重要的是,实验室的土柱喷淋实验持续时间较短,很少超过两年。因此,包括 Pu 在内的锕系元素在实验室模拟自然环境条件下,很难在短时间内观测到明显的迁移。文献报道的 Pu 在土壤中的迁移速率一般为几 mm/a^[15-16],因此仅仅利用短期喷淋给出的迁移结果来描述实际环境中核素的长期迁移其参考意义有限。

近年来,伴随测量手段和技术的进步,环境样品的 Pu 核素探测下限不断降低,特别是加速器质谱(AMS)和电感耦合等离子体质谱(ICP-MS)这些质谱技术的应用,使得环境样品中 Pu 核素已经可以达到极低的探测限(fg/g 量级),逐渐成为环境中痕量 Pu 核素分析的重要手段。这也使得在真实环境中,以全球放射性落下灰中包括 Pu 元素在内的重要锕系元素为对象,测量和研究其在土壤介质中的迁移规律成为可能。如前文所述,上世纪的大气层核试验之后核爆产物的全球沉降可以作为研究核素迁移的理想示踪剂来源,特别是包括²³⁹Pu、²⁴⁰Pu 在内的一些长寿命核素依然维持在沉降时几乎相同的水平。

为了研究实际环境中 Pu 核素在土壤介质中的迁移行为规律,本实验室自 2007 年以来开展了

我国不同地理区域、不同土壤类型的垂直土壤柱的纵向采集,利用 AMS 和 ICP-MS 测量了样品中的 Pu 核素,得到了²³⁹⁺²⁴⁰Pu 活度浓度在这些土壤柱中的垂直分布。在对环境样品进行真实测量的基础上,为了进一步分析比较 Pu 核素在不同环境土壤中的迁移行为的差异及原因,本文利用对流-弥散方程在单次瞬时沉降条件下的解对不同环境土壤样品的实际测量结果进行了拟合,给出了 Pu 核素在土壤介质中的表观对流系数和表观扩散系数,并与国内外不同环境中的研究结果进行了比较,最后本文讨论了影响迁移参数的可能因素,并对 Pu 在土壤中的长期迁移规律进行了理论预测。

1 材料与方法

1.1 土壤样品采集和测量

土壤样品采集是本研究实施的关键步骤。采样考虑了我国不同的地理区域,不同土壤类型;采样点选在地势平坦,无水流流经区域,同时,近 40~50 年人工扰动可能性极小的地点。本研究采样地理区域包括湖北、新疆、重庆、贵州和甘肃,土壤类型包括砂土、壤土、粘壤土,在这 5 个区域各采集了一个土壤柱样品。土壤柱样品的采样方法是:在满足条件的采样点挖一边长约 0.5 m,深约 40 cm 的土坑。土坑一面切面规整,垂直地表,利用钢尺进行标度纵向分层,最后用小铲采集每层样品,装袋。样品分层情况为:0~10 cm 每 2 cm 为一个样品,10~30 cm 每 5 cm 为一个样品。甘肃采样点由于条件所限只采集到 20 cm 深度,新疆和湖北两地采样深度为 25 cm,重庆和贵州两地采样深度为 30 cm。

将样品于干燥箱中 105 °C 烘干 6 h 后,过 2 mm 振动筛,除去土壤中的砾石及植物根茎等。然后利用灼烧失重法,将样品置于马弗炉中在 600 °C 下灼烧 4 h,通过灼烧前后失重计算土壤的有机物含量,并称取样品 1 g 用于²³⁹⁺²⁴⁰Pu 测量。测量早期采用的是加速器质谱方法(AMS),在澳大利亚国立大学的 14UD 串列加速器上完成,测量系统对²³⁹Pu 的检测限能达到约 0.1 fg/g(2.30×10^{-4} mBq/g);后期测量采用型号为 Element2 型电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS),与 APEX 膜去溶进样系统联用后对土壤样品中²³⁹Pu 的检测限

为 0.14 fg/g (即 $3.21 \times 10^{-4} \text{ mBq/g}$)。这两种方法都能很好地满足现存真实环境土壤样品中痕量水平 $^{239+240}\text{Pu}$ 的测量要求。利用 AMS 和 ICP-MS 这两种方法测量土壤样品 Pu 同位素时样品化学前处理和核心是 Pu 同位素富集和干扰杂质去除,特别是去除土壤中高于 Pu 元素 6 个数量级的水平存在的 U 元素。相应的仪器及方法已有很多报道^[16], 本文不再详述。采样信息和测量方法列于表 1。

表 1 垂直土壤样品采集和测量信息表

Tab. 1 Sampling information and determination methods of soil samples

样品编号	HB	XJ	CQ	GZ	GS
采样地点	湖北荆门	新疆巴音郭楞	重庆武隆	贵州贵阳	甘肃瓜州
土壤环境	森林	荒漠	森林	森林	荒漠
测量方法	AMS	AMS	ICP-MS	ICP-MS	ICP-MS

1.2 对流-弥散模型

理论模型研究通常采用的是对流-弥散模型。该模型的前提条件是核素随着土壤溶液的对流和弥散(包括机械弥散和分子扩散)而进行迁移。该模型基本假设为^[15]: (1) 土壤颗粒对核素的吸附在短时间内完成; (2) 核素在土壤颗粒和土壤溶液之间的分配系数不随时间和核素浓度、形态而改变; (3) 核素表观对流系数 v 和表观扩散系数 D 不随土壤深度而变化; (4) 核素迁移为一维垂直迁移, 不考虑核素在水平方向上的迁移。对流-弥散方程如下:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - v \frac{\partial C}{\partial x} - \lambda C_1 \quad (1)$$

式中 C 为核素的体积浓度, mBq/cm^3 ; D 和 v 分别为表观扩散系数和表观对流系数, 单位分别为 cm^2/a 和 cm/a ; x 为土壤深度, cm ; λ 为衰变常数。Smith 和 Elder 总结了该方程在不同初始条件(瞬时沉降和持续均匀沉降)和边界条件下的解, 认为单次瞬时沉降是对全球沉降的有效合理简化, 对流-弥散方程在该条件下的解与实测结果符合较好^[4]。在全球沉降的 Pu 同位素素的迁移研究中, 由于所关心的 Pu 同位素 ^{239}Pu 和 ^{240}Pu 半衰期很长(分别为 24 110 a 和 6 163 a), 因此可以不考虑迁移过程中 Pu 放射性核素的衰变。忽略核素的衰变后对流-弥散方程在单次瞬时沉降条件下的解被广泛地应用于描述核素在土壤中的迁移, 其表

达式为^[15]:

$$C(x, t) = C_0 \frac{1}{2\sqrt{\pi Dt}} \exp\left[-\frac{(x-vt)^2}{4Dt}\right] \quad (2)$$

需要注意的是对流-弥散方程(1)及其解(2)中的 C 为核素的体积浓度, 而通过质谱直接测量得到的为土壤灰化之后的核素质量浓度(mBq/g)。因此, 在进行拟合之前需要根据土壤容重(g/cm^3)将 Pu 核素的质量浓度转化为体积浓度。

本研究使用公式(2)对实地采样测量得到的我国不同环境土壤中的 Pu 核素的垂直分布结果进行拟合, 通过拟合得到当地环境类型下的土壤中 Pu 核素的相关迁移参数。为了更加直观地比较不同土壤条件中 Pu 的迁移快慢, 本文利用土壤中 $^{239+240}\text{Pu}$ 浓度峰值出现的深度与迁移时间之比粗略计算了 Pu 核素浓度峰的迁移速率。最后, 本文利用拟合的表观对流系数和表观扩散系数对核素在今后长时间范围内的迁移行为进行了预测。

2 结果与讨论

大气层核试验之后的大气监测结果显示, 来自于全球沉降的放射性核素的沉积量随时间逐年变化, 1963 年北半球达到沉积峰值^[1]。因此将 1963 年等效为全球沉降的放射性核素沉降到地表的年份。本实验测量和计算得到的不同环境土壤中 Pu 核素体积浓度的垂直分布数据及对流-弥散方程解的拟合结果如图 1 所示。

图 1 中实点为土壤中 Pu 垂直分布实测数值, 实线为理论拟合曲线。值得注意的是, 我国是在 1963 年之后(1964 年)才开始在新疆罗布泊核试验场进行核试验, 因此不排除我国核试验局地沉降的 Pu 有异于全球沉降的 Pu 迁移行为。但就目前的报道来看, 我国核试验的影响范围有限而且空间上沉降不均匀^[21]。本文所研究的几个土壤柱的 Pu 的沉积通量也差别很大: 远离核试验场的重庆地区土壤柱的 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉积通量为 114 Bq/m^2 和试验场下风向的甘肃地区土壤柱(122 Bq/m^2)相近, 但采自试验场的上风向新疆土壤柱的 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉积通量(56 Bq/m^2)却与同纬度全球沉降(55.4 Bq/m^2)相当。目前从拟合结果来看尚未发现我国核试验导致 Pu 核素在土壤中的迁移行为差异的直接证据。

从实测结果和拟合曲线的吻合程度可以看

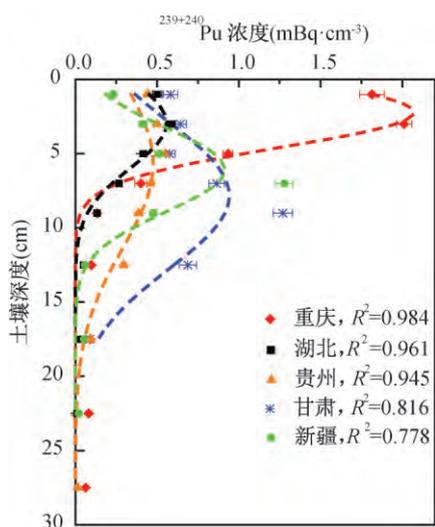


图 1 我国不同地区土壤中 Pu 核素垂直分布实测结果及拟合曲线

Fig. 1 Vertical distribution and its simulation results of Pu in soil cores collected in different areas

到,湖北、贵州和重庆三地的土壤中 Pu 核素实测结果和理论模拟分布曲线拟合得相对较好,优于新疆和甘肃土壤中两者的拟合度。可能的原因是湖北、贵州、重庆三地采样地区森林覆盖率高,土壤状态保存较好,采样点的土壤柱未受到人为扰动和水土流失等自然过程的破坏,因此能够较好地反映出 Pu 核素沉降之后的迁移情况;而新疆和甘肃地区由于沙尘暴严重,导致沉降的 Pu 核素很难完整地得到保存,同时由于再悬浮严重,土壤中的 Pu 除了来自于全球沉降,也很可能有来自于其他地区的再悬浮颗粒中 Pu 核素的加入,导致模型所用到的单次瞬时沉降的简化条件不能完全地模拟实际 Pu 核素来源情况。

根据实测结果拟合得到的迁移参数列于表 2 中。从测量结果可以看出,相比于富含有机物的森林土壤,荒漠地区(新疆和甘肃)土壤中的 Pu 核

素表现出更快的迁移速率。其中甘肃土壤中 Pu 的迁移最快,²³⁹⁺²⁴⁰Pu 浓度峰值出现在 9 cm 处(8~10 cm 土壤层),浓度峰的迁移速率为 0.187 cm/a,约为迁移最慢的重庆土壤中的 Pu 浓度峰迁移速率(0.063 cm/a)的 3 倍;Pu 核素迁移较慢是湖北、贵州和重庆三个采样点,其土壤柱中²³⁹⁺²⁴⁰Pu 浓度峰值分别出现在 4 cm(3~5 cm)、5 cm(4~6 cm 土壤层)和 3 cm(2~4 cm 土壤层)处。从土壤参数来看,不同地区,不同类型的土壤有机物含量差别很大。重庆、贵州、湖北这三个采样点的土壤为有植被覆盖的森林土壤,有机物含量丰富,重庆土壤中的有机物含量高达 14.3%。相比之下,新疆和甘肃处于荒漠化严重的干旱地区,土壤有机物含量明显低于另外三处,新疆土壤样品中有机物含量甚至低于 1%。此结果说明土壤有机物含量是影响 Pu 核素迁移的重要因素,两者之间存在负相关的定性关系。

但比较湖北与甘肃的数据,可发现除了有机物含量外,还有其它重要的环境因素影响迁移速率。这是因为虽然两地土壤中有机物含量相近(分别为 7.5% 和 5.8%),但湖北土壤中 Pu 的表观对流系数(0.067 cm/a)和表观扩散系数(0.103 cm²/a)都明显低于甘肃采样点中 Pu 的相关值,甘肃土壤中 Pu 核素浓度峰的迁移速率也约为湖北采样点的 3 倍。湖北与甘肃的环境条件相比,两地的降水量大小存在显著的差别。甘肃采样点所在的瓜州县属于干旱地区,年均降雨量仅为 50 mm 左右,而湖北荆门的年降水量最高则可达 1 000 mm 以上。因此不同地区年降水量可能也是影响土壤中 Pu 核素迁移行为的重要因素。由于湖北和甘肃两地的土壤性质也相差很大,因此影响两地土壤中 Pu 核素迁移行为差异的原因还需要进一步的研究。

表 2 不同环境土壤中 Pu 核素迁移参数与有机物含量比较

Tab. 2 Comparison of Pu migration parameter and organic matter content in soil of different regions

采样地点	表观对流系数 v (cm/a)	表观扩散系数 D (cm ² /a)	浓度峰迁移速率 (cm/a)	有机物含量 (%)	参考文献
HB	0.067	0.103	0.068	7.5	
XJ	0.138	0.092	0.159	<1	
GZ	0.118	0.339	0.104	11.3	
CQ	0.046	0.058	0.063	14.3	
GS	0.163	0.256	0.187	5.8	
Poland	—	—	0.3~0.5	3.4~6.6	[23]
Kopachi	0.150~0.197	0.021~0.110	—	—	[3]
Bohemia	—	2.23~3.25	0.65~0.94	4.2~6.5	[6]

另外,我们还注意到尽管湖北和重庆两地有机物含量相差一倍,但是迁移速率和表观对流系数却几乎相同。同时气象数据也表明两地的降水量并无太大差别。这说明除了之前讨论的土壤有机物含量和地区降水量以外, Pu 核素的迁移还受到其他因素的影响,比如土壤孔隙度、含水量、粒径分布、阳离子交换量、微生物活动等,这也是今后研究中需要关注的方向^[22]。

表2同时还给出了我国不同环境土壤中 Pu 核素的迁移参数和国外文献报道值的比较结果。与国外已有的文献报道相比,本文得到我国环境中 Pu 核素的表观对流系数与Bossew等^[3]利用对流-弥散模型计算得到的切尔诺贝利核电站附近Kopachi地区土壤值相近。Kopachi地区的土壤类型为草地,有机质和粘土含量低,相比本文所研究的两种土壤也更接近于荒漠土壤(新疆和甘肃),该地区土壤的表观对流系数也与本文的荒漠土壤表观对流系数(0.113~0.168)更相近。本文所研究的土壤中 Pu 浓度峰迁移速率低于Komosa等^[23]和Hoklgye等^[6]的报道值。主要的原因可能是Hoklgye等的研究使用的是隔室模型,该模型通过计算每一层土壤层中 Pu 的迁移速率,使用的是平均迁移速率来表征 Pu 核素迁移的快慢。鉴于我国不同环境中计算得到的 $^{239+240}Pu$ 浓度峰迁移速率之间最大也相差3倍之多(甘肃和重庆),环境条件和土壤参数的不同也可能是本文结果低于国外报道值的另一个重要原因。和国内的报道值相比,本研究计算得到的 $^{239+240}Pu$ 在环境土壤中的迁移速率(0.063~0.187 cm/a)也与李书绅等^[13]利用实验室土柱喷淋实验(1073天)计算得到的 ^{238}Pu 的迁移速率(2.33×10^{-4} cm/d,即0.085 cm/a)相近。

在本文所研究的新疆等5个地区不同环境的土壤柱样品中,重庆采样点土壤样品中 Pu 核素垂直分布的实测结果与对流-弥散方程在简化条件下的解拟合程度最高($R^2=0.984$)。因此我们利用拟合得到的重庆森林土壤中的表观对流系数 $v=0.046$ cm/a和表观扩散系数 $D=0.058$ cm²/a对 Pu 在该采样点的长期迁移行为进行了模拟。迁移时间分别取98 a、148 a和248 a(距采样时间50 a、100 a、200 a之后)得到的结果如图3所示。

从图3中可以看到,随着迁移时间的增加,土

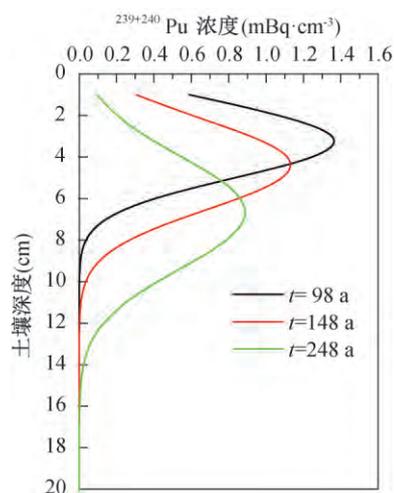


图3 重庆采样点土壤中 Pu 核素的长期迁移情况模拟
Fig. 3 Prediction of plutonium migration in forest soil of Chongqing Province

壤中的 Pu 核素逐渐向下迁移。在采样时间(2011年)之后50 a、100 a和200 a的时间里, $^{239+240}Pu$ 浓度峰仅迁移到3.2 cm、4.3 cm和6.7 cm的土壤深度。这也说明在有机物含量丰富的森林土壤中, Pu 核素的迁移十分缓慢。

3 结论和展望

近年来质谱分析技术的发展迅速,高精度、低检测限的AMS和ICP-MS被越来越广泛地应用于环境中痕量元素的测量,已经成为土壤中长半衰期痕量 Pu 核素的迁移研究中不可或缺的重要手段。伴随质谱测量技术的发展,以大气层核试验之后的全球沉降核素作为土壤中核素迁移研究的示踪剂成为可能。由于沉降核素在实际环境中的迁移时间长于目前实验室土柱喷淋实验的迁移时间,相比于实验室土柱喷淋实验的研究方法,毋庸置疑实地采样测量的结果在土壤中核素迁移行为研究中更具有实际意义和参考价值。

新疆、湖北、贵州、重庆、甘肃等5地土壤中 Pu 核素迁移结果显示,有森林覆盖,土壤保持良好地区的土壤中 $^{239+240}Pu$ 浓度的实测结果与理论模拟曲线的拟合程度高于再悬浮严重的干旱地区;对流-弥散模型在单次瞬时的简化沉降条件下的解能够较好地描绘全球沉降的 Pu 核素在土壤介质中的迁移行为;拟合得到不同地区土壤中 Pu 核素的表观对流系数为0.046~0.163 cm/a,表观扩散

系数为 $0.058 \sim 0.339 \text{ cm}^2/\text{a}$ 。 $^{239+240}\text{Pu}$ 浓度峰迁移速率为 $0.063 \sim 0.187 \text{ cm/a}$ ，略低于国外文献报道值，这可能是由于所采用的模型不同以及土壤参数和环境条件的差异造成的。

本工作实测结果定性表明：土壤有机质含量是影响 Pu 核素土壤迁移速率的重要因素，二者之间有明确的负相关关系；而地区降雨量与 Pu 核素迁移速率有正相关关系。利用对流-弥散模型进行预测，Pu 核素在有机物含量丰富的重庆采样

点土壤中迁移十分缓慢，在今后 200 年时间里，土壤中 $^{239+240}\text{Pu}$ 浓度峰仍然位于表层 10 cm 的深度范围内（6.7 cm）。

本研究还发现，除土壤有机质含量和地区降雨量之外，土壤 Pu 核素迁移行为还受到其它土壤特性因素如土壤质地（土壤分类）、孔隙度、阳离子交换量（CEC）、土壤 pH 值等的影响。定性的、更细致的 Pu 核素迁移相关性分析，是今后工作的关注方向之一。

参考文献：

- [1] UNSCEAR. Exposures and effects of the Chernobyl accident [R]. New York: United National Scientific Committee on the effects of Atomic Radiation, 2000.
- [2] Bossew P, Kirchner G. Modelling the vertical distribution of radionuclides in soil//Part 1: The convection - dispersion equation revisited [J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2004a, 73: 127 - 150.
- [3] Bossew P, Gastberger M, Gohla H, et al. Vertical distribution of radionuclides in soil of a grassland site in Chernobyl exclusion zone [J]. J of Environmental Radioactivity, 2004b, 73: 87 - 99.
- [4] Smith JT, Elder DG. A comparison of models for characterizing the distribution of radionuclides with depth in soils [J]. European Journal of Soil Science, 1999, 50: 295 - 307.
- [5] Bu W, Zheng J, Guo Q, et al. Vertical distribution and migration of global fallout Pu in forest soils in southwestern China [J]. J of Environmental Radioactivity, 2014, 136: 174 - 180.
- [6] Hoklgye Z. Sources, vertical distribution, and migration rates of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , and ^{137}Cs in grassland soil in three localities of central Bohemia [J]. J of Environmental Radioactivity, 2000, 47: 135 - 147.
- [7] Bunzl K. Transport of fallout radiocesium in the soil by bioturbation: a random walk model and application to a forest soil with a high abundance of earthworms [J]. The Science of the Total Environment, 2002, 293: 191 - 200.
- [8] Jarvis NG, Taylor A, Larsbo M, et al. Modelling the effects of bioturbation on the re - distribution of ^{137}Cs in an undisturbed grassland soil [J]. European Journal of Soil Science, 2010, 61: 24 - 34.
- [9] Lee MH, Lee W. Distribution and characteristics of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in the soil of Korea [J]. J Environ Radioactivity, 1997, 37(1): 1 - 16.
- [10] Sheppard SC. Robust prediction of K_d from soil properties for environmental assessment [J]. Human and Ecological Risk Assessment, 2011, 17: 263 - 279.
- [11] Gil - Garcia C, Tagami K, Uchida S, et al. New best estimates for radionuclide solid - liquid distribution coefficients in soils//Part 3: Miscellany of radionuclides (Cd, Co, Ni, Zn, I, Se, Sb, Pu, Am, and others) [J]. J of Environmental Radioactivity, 2009, 100: 704 - 715.
- [12] 王榕树, 冯为. 放射性核素在地质介质中的迁移研究[J]. 核化学与放射化学, 1994, 2: 117 - 121.
- [13] 李书绅, 王志明, 王金生, 等. ^{60}Co 、 ^{85}Sr 和 ^{134}Cs 在非饱和黄土中迁移特征研究[J]. 环境科学学报, 2002, 5: 614 - 619.
- [14] 司高华, 于静, 王青海, 等. 钚在粘土中的迁移实验[J]. 核化学与放射化学, 2013, 1: 29 - 33.
- [15] Kirchner G, Strebl F, Bossew P, et al. Vertical migration of radionuclides in undisturbed grassland soils [J]. J of Environmental Radioactivity, 2009, 100: 716 - 720.
- [16] Zheng J, Yamada M, Wang Z, et al. Determination of plutonium and its isotopic ratio in marine sediment samples using quadrupole ICP - MS with the shield torch system under normal plasma conditions [J]. Analytical and Bioanalytical Chemistry, 2004, 379: 532 - 539.
- [17] Bu W, Zheng J, Guo QJ, et al. A method of measurement of (^{239}Pu), (^{240}Pu), (^{241}Pu) in high U content marine sediments by sector field ICP - MS and its application to Fukushima sediment samples [J]. Environmental Science &

- Technology ,2014 ,48(1) :534 – 541.
- [18] Dong W ,Tims SG ,Fifield LK , et al. Concentration and characterization of plutonium in soils of Hubei in central China [J]. Journal of Environmental Radioactivity ,2010 ,101: 29 – 32.
- [19] Fifield LK. Accelerator mass spectrometry of the actinides [J]. Quaternary Geochronology ,2008 3:276 – 290.
- [20] Bu WT ,Ni YY ,Guo QJ , et al. Pu isotopes in soils collected downwind from Lop Nor: regional fallout vs. global fallout [J]. Scientific Reports ,2015 ,5: 12262.
- [21] 董微 ,杨益隆 ,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 – 180.
- [22] Zheng J ,Yamada M ,Wu F , 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.
- [23] Komosa A. Migration of plutonium isotopes in forest soil profiles in Lublin region (Eastern Poland) [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry ,1999 ,240: 19 – 24.

Study on the migration of Pu in soil

Ni Youyi , Bu Wenting , Dong Wei , Guo Qiuju

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

Yang Bin , Quan Wei , Meng Ruijie

(Nuclear and Radiation Safety Center , MEP , Beijing 100082)

Abstract: The ultra-trace level of Pu (plutonium) isotopes in Chinese surface soil are mainly resulted from global fallout following the world-wide atmospheric nuclear tests last century. The vertical migration behaviors of Pu in soil were studied by field sampling and laboratory measurements using AMS (Accelerator Mass Spectrometry) and ICP – MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry) . Subsequently by fitting the vertical distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ with the solution of convection – dispersion equation in single pulse condition , the apparent convection coefficient V in Chinese soils was found to be 0.046—0.163 cm/a , the apparent diffusion coefficient D ranged from 0.058 to 0.339 cm^2/a and the migration velocity of $^{239+240}\text{Pu}$ concentration peak in soils of different areas from 0.063 to 0.187 cm/a. Based on these , the predicted $^{239+240}\text{Pu}$ concentration peak would remain in top 10 cm of the surface soil in Chongqing province after 200 years' migration. The results indicated that the organic matter content of soil would be a key factor influencing the migration behavior of Pu. Besides , other soil parameters such as porosity , soil particle size , cation exchange capacity etc. tend to have influences on the migration velocity of Pu in soils.

Key words: Pu; radionuclides migration; AMS; ICP – MS; convection – dispersion equation