

# 我国环境土壤中的重要超铀核素分布

郭秋菊,倪有意,李思璇

(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:** Pu、Am、Np 是 3 种重要的超铀核素,环境中的这些核素主要来源于人类的核活动,包括大气层核武器试验、核设施排放和核事故释放等。这些超铀核素不仅具有放射性,还兼具化学毒性。我国地域辽阔,环境土壤类型丰富,在当前核电事业蓬勃发展的背景下,建立和扩大我国环境土壤中这些重要超铀核素的“准本底”数据库是辐射环境安全评价的重要组成部分,也是公众关心的热点问题。近 30 多年来,研究人员对我国不同环境土壤中这几种超铀核素从不同科学角度开展了调查测量研究。本文对此进行整理和分析,对我国环境土壤中这些重要超铀核素(主要是 Pu 核素,还包括<sup>241</sup>Am和<sup>237</sup>Np)的来源、浓度水平和分布特征进行讨论和综述,为辐射环境安全评价奠定基础。

**关键词:** 土壤;Pu 核素;<sup>241</sup>Am;<sup>237</sup>Np;分布特征;全球沉降;中国核试验

**中图分类号:** TL732

**文献标志码:** A

**文章编号:** 1000-6931(2019)10-2083-09

**doi:** 10. 7538/yzk. 2019. 53. 10. 2083

## Distribution of Important Transuranium Nuclides in Chinese Environmental Soil

GUO Qiuju, NI Youyi, LI Sixuan

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

**Abstract:** Pu, Am and Np are important transuranium nuclides relating to human nuclear activities including nuclear weapon tests, operating of nuclear facilities and releasing of nuclear accident. These transuranium nuclides not only have radioactivity but also have chemical toxic. With the rapid development of the nuclear power industry in China in recent years, the necessity of establishing and enlarging the baseline database of these transuranium nuclides in Chinese environment soil is highlighted. The retrievable papers and reports were reviewed to provide a comprehensive view on the source, concentration and distribution of these transuranium nuclides (Pu isotopes, <sup>241</sup>Am and <sup>237</sup>Np) in Chinese environmental soil.

**Key words:** soil; Pu isotopes; <sup>241</sup>Am; <sup>237</sup>Np; distribution characteristic; global fallout; Chinese nuclear test

Pu、Am 和 Np 是 3 种重要的超铀核素。环境中的这些核素主要来源于人类的核活动,包括核武器试验、核设施排放以及核事故释放等。在这些来源中,20 世纪 40—80 年代以美国和前苏联为主进行的一系列大气层核试验是目前环境中这几种重要超铀核素的最重要来源。30 多年间,全世界共进行了 2 000 多次核试验,其中包括 543 次大气层核试验(包括 1945 年的日本广岛和长崎核爆),共导致了约 11 PBq 的  $^{239+240}\text{Pu}$  以及 39 TBq 的  $^{237}\text{Np}$  释放到环境中<sup>[1-2]</sup>。与 Pu 核素和  $^{237}\text{Np}$  的情况不同,大气层核试验直接释放的  $^{241}\text{Am}$  很少,环境中本底水平的  $^{241}\text{Am}$  主要是通过大气层核试验产生的  $^{241}\text{Pu}$  ( $T_{1/2}=14.4\text{ a}$ ) 经过  $\beta$  衰变产生。据估计,环境中全球沉降来源的  $^{241}\text{Am}$  预计在 21 世纪中叶达到峰值,届时其活度将达到环境中  $^{239+240}\text{Pu}$  活度的 40% 左右<sup>[3]</sup>。Pu 核素、 $^{237}\text{Np}$  和  $^{241}\text{Am}$  不仅具有放射性,还具有化学毒性。在放射性毒性分组中,Pu 的主要同位素(如  $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$ ) 和  $^{241}\text{Am}$  被分为极毒组, $^{237}\text{Np}$  则被分为高毒组<sup>[4]</sup>。这些超铀核素一旦通过食物链摄入或颗粒吸入等途径进入人体,将会给人体健康带来潜在放射性危害。因此,环境中这些重要超铀核素的来源、浓度水平、分布特征与环境行为研究是环境放射性评估、辐射安全风险评价和高放射性废物地质处置所关心的重要问题。此外,作为人工放射性核素,Pu 核素具有特定的来源及较长的半衰期,研究环境中 Pu 同位素组成(例如  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子比)信息也能为同位素溯源提供依据,从而将 Pu 核素作为独特的环境示踪剂应用于大气科学、地球化学、海洋学等环境研究领域。在陆地环境中,土壤是全球沉降的超铀核素的最重要的载体。鉴于我国地域辽阔,环境类型丰富,从环境辐射安全层面,研究我国环境土壤中 Pu 核素、 $^{241}\text{Am}$  和  $^{237}\text{Np}$  的来源、浓度水平、分布特征对于人体剂量评估十分重要。近年来,随着我国核电事业的蓬勃发展,建立和扩大我国环境尤其是环境土壤中包括这些重要超铀核素在内的人工放射性核素的“准本底”数据库是核安全评价的重要组成部分,也是公众关心的热点问题之一。

从国内外研究现状来看,关于我国环境土

壤中 Pu 核素的研究已有一定报道。在公开的可检索的报道中,较具代表性和系统性的研究包括中国科学院地球环境研究所开展的关于我国不同环境土壤中 Pu 核素的来源及分布研究<sup>[5]</sup>以及北京大学辐射防护与环境保护研究组开展的关于我国罗布泊核试验场上风向的新疆和下风向的甘肃地区土壤中 Pu 核素的相关研究<sup>[6-7]</sup>。1964—1980 年,我国在罗布泊核试验场共进行了 22 次大气层核试验。为研究核试验中释放的 Pu 核素对我国环境产生的影响,早期的研究者如张聚敬等<sup>[8-9]</sup>、金玉仁等<sup>[10]</sup>、Zheng 等<sup>[11]</sup>针对我国罗布泊核试验场周围的新疆和甘肃地区进行了环境土壤中 Pu 核素的初步分析和报道。近些年,Xu 等<sup>[12-14]</sup>开始将 Pu 核素应用于我国东北和华北部分地区土壤侵蚀的研究中,这些研究报道了这些地区环境土壤中  $^{239+240}\text{Pu}$  的活度浓度和  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子比信息。此外,还有很多研究学者对我国不同地区环境中 Pu 核素的浓度水平和同位素组成信息进行了报道,但这些报道多为区域性报道,且报道的数据也较零散<sup>[15-17]</sup>。相比之下,关于我国环境中  $^{241}\text{Am}$  和  $^{237}\text{Np}$  的研究非常有限。

为提供关于我国环境土壤中重要超铀核素(主要是 Pu 核素,还包括  $^{241}\text{Am}$  和  $^{237}\text{Np}$ ) 的来源、浓度水平(含 Pu 同位素比值)和分布特征的整体信息,本文对相关文献进行整理和分析,对我国环境土壤中这些超铀核素的分布进行综述。

## 1 我国环境土壤中的 Pu 核素

### 1.1 表层土壤

在我国环境土壤中 Pu 核素的研究报道中,表层土壤中 Pu 核素的报道数据(包括  $^{239+240}\text{Pu}$  活度浓度和  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子比)较为丰富。早期的研究由于技术手段所限,Pu 核素的测量主要是利用  $\alpha$  能谱法进行的。因此部分文献只报道了土壤样品中  $^{239+240}\text{Pu}$  活度浓度,而未报道其  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子比。此外,需要注意的是,不同学者的研究中定义的表层土壤深度也有所差别。例如,Bu 等<sup>[18-19]</sup>和王煜等<sup>[15]</sup>的研究中采集 0~2 cm 深度的土壤作为表层土壤。而 Zheng 等<sup>[3]</sup>、沙连茂等<sup>[20-21]</sup>和颜启民等<sup>[22]</sup>的研

究中则将 0~5 cm 的土壤定义为表层土壤。另外,在张聚敬等<sup>[8]</sup>的早期研究中,将 10 cm 深度的土壤作为表层土壤进行采样和分析。邢闪<sup>[5]</sup>的研究中定义表层土壤为 0~20 cm 深度的土壤。鉴于不同研究中表层土壤深度差别较大,将这些研究中的表层土壤分为两类进行分析讨论:一类是采样深度 $\leq 10$  cm 的表层土壤,另一类为采样深度为 20 cm 的表层土壤。

### 1) 表层土壤<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度

对文献中我国环境中采样深度 $\leq 10$  cm 和采样深度为 20 cm 的表层样品中<sup>239+240</sup>Pu 的活度浓度分别进行统计分析,所得的直方图如图 1 所示。对于采样深度 $\leq 10$  cm 的表层土壤样品,其中的<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度范围为 0.005~1.99 mBq/g(样本数  $N=150$ ),中值为 0.200 mBq/g;相比之下,深度为 20 cm 的表层土壤样品中,<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度介于 0.008~2.662 mBq/g 之间( $N=115$ ),中值为 0.092 mBq/g。可看到,不论是 $\leq 10$  cm 的表层土壤样品还是 20 cm 的表层土壤样品,大部分样品中<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度均集中在低浓度区。一个趋势是,<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度越高,样品数越少。其中,20 cm 采样深度的样品在低浓度处的样品数量相对更多,样品计数随<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度的增加而陡然下降;相比之下,对 $\leq 10$  cm 采样深度的样品而言,计数在各浓度区间上的分布则下降相对平缓。

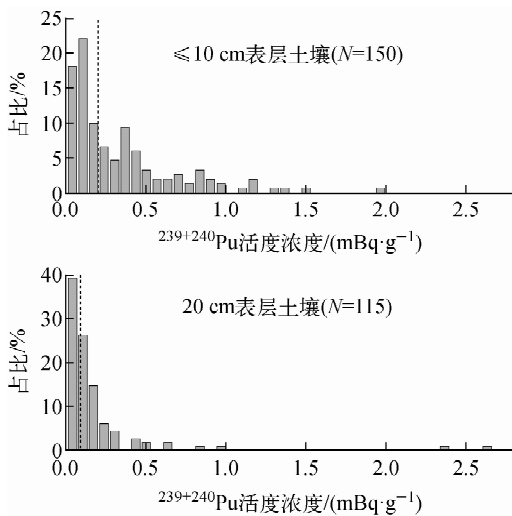


图 1 我国表层土壤样品<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度统计图  
Fig. 1 Histogram of <sup>239+240</sup>Pu activity concentration in Chinese surface soil

从土壤中<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度空间分布分析,对于采样深度为 20 cm 的表层土壤样品,<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度较高的数据主要出现在新疆和甘肃两地。邢闪<sup>[5]</sup>采集的新疆和甘肃 20 cm 表层土壤中,部分样品中测量到较高( $>0.5$  mBq/g)的<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度,有两个采自我国罗布泊核试验场周边的样品中<sup>239+240</sup>Pu 的活度浓度甚至分别高达 2.362 mBq/g 和 2.662 mBq/g。由于这些表层样品的采样深度已达 20 cm,整个 0~20 cm 土壤经充分混合后仍能测量到如此高的<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度说明这些采样点相比于其他地区采样点有可能有全球沉降以外的 Pu 核素输入。

相比之下,对于采样深度 $\leq 10$  cm 的表层土壤样品,<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度较高( $>0.5$  mBq/g)的数据除出现在新疆、甘肃地区外,其他地区也偶有出现。张聚敬等<sup>[8]</sup>在 20 世纪 80 年代对我国罗布泊核试验场上风向的新疆地区进行了 Pu 污染状况调查报道,10 cm 的表层土壤中<sup>239+240</sup>Pu 的活度浓度普遍较高,其范围为 0.363~0.927 mBq/g,其中<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度最高的地区为米兰地区。董微等<sup>[23]</sup>在新疆地区也进行了土壤 Pu 核素调查,该研究报道的新疆地区表层土壤中<sup>239+240</sup>Pu 的活度浓度范围为 0.010~0.827 mBq/g。此后,Bu 等<sup>[19]</sup>在罗布泊核试验场下风向的甘肃敦煌地区表层土壤中测出了较高的<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度(最高达 0.89 mBq/g)。由于新疆和甘肃分别地处我国罗布泊核试验场上风向和下风向,部分地区可能受到来自于我国核试验释放的 Pu 核素的局域性影响,从而导致部分表层土壤中存在较高的<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度。此外,在我国的其他远离核试验场的地区,尤其是降雨量更充沛的东部及东北部地区,也有较高<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度的表层土壤样品的零散报道。Xu 等<sup>[12]</sup>分析测量了在辽东半岛的耕地、盐碱地和草地 3 种类型土壤中的 Pu 核素和<sup>137</sup>Cs。草地表层土壤中的<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度(0.027~0.938 mBq/g)总体上高于耕地表层土壤中的<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度(0.023~0.223 mBq/g)。而且,在草地土壤中测量到两个较高的<sup>239+240</sup>Pu 活度浓度(0.640 mBq/g 和 0.938 mBq/g)。此外,在该小组的另一研究中<sup>[14]</sup>报道了大连地区和连云港地区的表层土壤中的<sup>239+240</sup>Pu 浓度水平。其中,大连地区的

几个样品测出了较高的 $^{239+240}\text{Pu}$ 活度浓度(0.929~1.178 mBq/g)。另外,Bu等<sup>[24]</sup>在重庆采集的剖面土壤中,测量到表层土壤(2 cm)具有较高的 $^{239+240}\text{Pu}$ 活度浓度(1.30 mBq/g)。可看到,由于我国地域辽阔,环境类型丰富,不同地区表层土壤中 $^{239+240}\text{Pu}$ 活度浓度之间存在较大差异。

土壤中Pu核素活度浓度受多环境因素共同影响,如降雨量可能影响Pu核素的沉积量从而直接影响土壤中Pu核素的活度浓度,而具体土壤性质(土壤有机物含量、土壤pH等)则影响Pu核素在土壤中的迁移行为以及在表层土壤的停留时间,从而影响表层土壤中的 $^{239+240}\text{Pu}$ 活度浓度<sup>[16,25-26]</sup>。正是由于不同地区实际环境条件的复杂性和独特性,目前研究中没有明确证实影响表层土壤中 $^{239+240}\text{Pu}$ 活度浓度的具体因素。未来的研究中仍需针对我国不同地区环境条件进行更系统布点采样,这不仅有助于建立更精细的我国环境土壤中Pu核素分布图谱,且对于探究影响表层土壤Pu核素浓度水平的因素和机制也将很有帮助。

## 2) 表层土壤 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比

在早期的研究中,很多Pu核素的测量是利用 $\alpha$ 能谱法进行的。 $\alpha$ 能谱法无法分辨 $^{239}\text{Pu}$ 和 $^{240}\text{Pu}$ 同位素,所以早期研究并未报道样品中的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比。随着质谱技术尤其是电感耦合等离子体质谱(ICP-MS)的普及应用,越来越多的质谱分析测量方法被使用于环境土壤样品中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位素原子比的测量工作中<sup>[10-11,16,18-19,27]</sup>。

由于 $^{239}\text{Pu}$ 和 $^{240}\text{Pu}$ 属于同位素,它们的环境行为相同,因此不同采样深度下土壤中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比应无明显差异。因此将文献中报道的所有深度(包括20 cm和 $\leq 10$  cm)的表层土壤样品中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比的结果统计于图2中。需说明,由于 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比是重要的同位素溯源依据,为能较准确反映我国大部分环境土壤中的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比,图2中所使用的数据已排除文献中所有 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比报道值的离群点。可看到,我国不同环境表层土壤中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比总体符合正态分布( $t$ 检验, $p < 0.05$ ),其平均值为 $0.183 \pm 0.032(2\delta)$ 。

20世纪70年代,美国能源部环境测量实验室在世界范围内采集了几十个深度土壤样品用于分析人工放射性核素在全球范围内的分布。基于对其中部分土壤样品的分析测量,Kelley等<sup>[28]</sup>报道了这些土壤中的Pu核素的活度浓度及原子比,从而重构了大气层核试验导致的Pu核素在全球不同纬度范围内的分布特征,其中 $30^\circ\text{N} \sim 71^\circ\text{N}$ 纬度带内全球沉降来源的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比为 $0.180 \pm 0.014(N=24)$ 。鉴于我国不同环境中表层土壤样品的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比的平均值与Kelley等<sup>[28]</sup>的报道值非常符合,可认为我国环境土壤中Pu核素的来源以全球沉降为主。

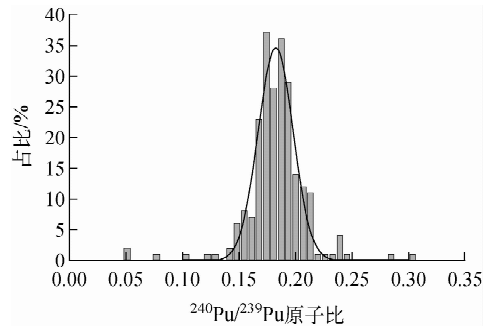


图2 我国表层土壤中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比分布  
Fig. 2 Distribution of  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratio in Chinese surface soil

同时,图2中我国环境表层土壤中的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比数据存在一些离群点。将这些表层土壤中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比的空间分布绘于图3。结合文献报道可看到,我国表层环境土壤中具有较高 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比的离群点样品在辽宁、内蒙、山西、新疆等地区<sup>[6,12,29]</sup>。除邢闪<sup>[5]</sup>和董薇<sup>[6]</sup>在新疆罗布泊核试验场上风向地区采集的表层土壤中测出很高的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比(分别为 $0.307 \pm 0.162$ 和 $0.286 \pm 0.047$ )外,其余报道的表层样品中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比(0.216~0.245)略超出全球沉降的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比的上限(0.194)。然而,考虑到这些样品中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比的测量不确定度较大(部分结果不确定度高达20%以上),目前还难以明确断定这些样品中存在全球沉降以外的Pu核素来源;相比之下,我国表层环境土壤中较低的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比则主要出现在我国罗布泊

核试验场下风向的甘肃地区。Bu 等<sup>[18-19]</sup>和邢闪<sup>[5]</sup>报道了在甘肃酒泉地区的表层土壤中大量低于全球沉降特征值的<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比。其中,Bu 等<sup>[18-19]</sup>观测到的两个<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比极低值分别为 0.080±0.007 和 0.125±0.007,有力证明了甘肃地区确实存在全球沉降以外的 Pu 核素来源,由于该地区地处我国罗布泊核试验场下风向地区,可推测受到了我国核试验造成的 Pu 核素区域性影响。

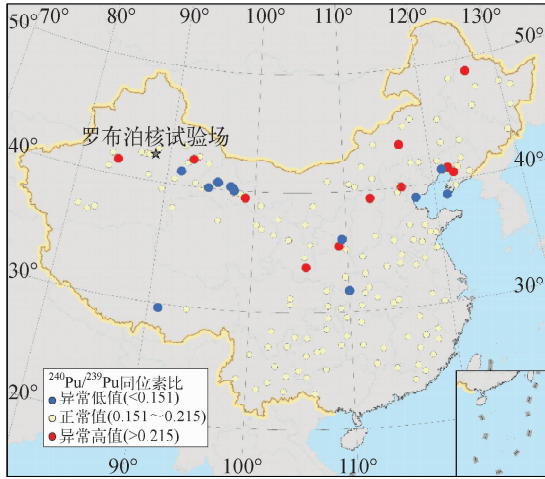


图 3 我国表层土壤<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比空间分布  
Fig. 3 Spatial distribution of <sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu atom ratio in Chinese surface soil

## 1.2 垂直剖面土壤

### 1) 剖面土壤<sup>239+240</sup>Pu沉积通量

由于Pu核素沉降到地表后存在垂直迁移

等环境行为,因此相比于表层土壤,垂直剖面土壤能更好保存土壤中的 Pu 核素信息。研究者利用沉积通量将 Pu 核素的沉降水平进行量化,沉积通量的计算方法为:

$$I = \sum_{i=1}^N B d_i C_i$$

其中: $I$ 为<sup>239+240</sup>Pu的沉积通量,Bq/m<sup>2</sup>;B为土壤容重,g/cm<sup>3</sup>;d<sub>i</sub>为土壤柱第*i*个土壤层的厚度,cm;C<sub>i</sub>为实际测量得到的第*i*个土壤层土壤样品中的<sup>239+240</sup>Pu活度浓度,Bq/g。将文献报道的我国不同纬度带环境中的<sup>239+240</sup>Pu的沉积通量绘于图4,两虚线之间为Hardy等<sup>[30]</sup>报道的全球范围内相应纬度带的<sup>239+240</sup>Pu的沉积通量范围。对于我国20°N~30°N和30°N~40°N纬度带地区,环境土壤柱中<sup>239+240</sup>Pu沉积通量与全球沉降的范围相差不大。在部分土壤中,<sup>239+240</sup>Pu的沉积通量稍高于该纬度带内全球沉降的平均值,可能是由于当地较大的降雨量所导致<sup>[16,24]</sup>;然而,在40°N~50°N纬度带内,我国环境土壤中<sup>239+240</sup>Pu沉积通量则在一个极大的范围(13~546 Bq/m<sup>2</sup>)内变化。需注意,该范围内<sup>239+240</sup>Pu沉积通量的极小值((13±1) Bq/m<sup>2</sup>)和极大值((546±27) Bq/m<sup>2</sup>)均出现在卜文庭<sup>[7]</sup>报道的我国罗布泊核试验场下风向的甘肃地区采样点中。甘肃地区气候干旱,土壤颗粒再悬浮情况严重。采样点中极低的<sup>239+240</sup>Pu沉积通量可能是风沙引起的Pu核素损失所致。而该地区显著高于全球同纬度带(40°N~50°N)平均值(81.4 Bq/m<sup>2</sup>)的<sup>239+240</sup>Pu

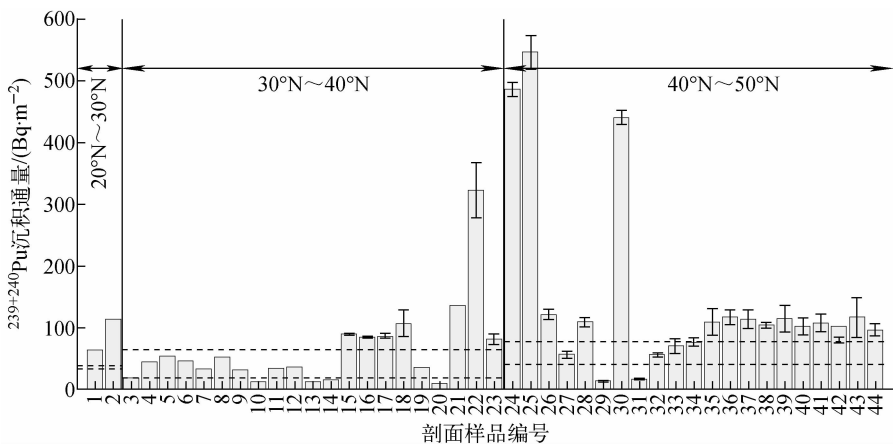


图 4 我国不同纬度带环境剖面土壤中<sup>239+240</sup>Pu沉积通量  
Fig. 4 <sup>239+240</sup>Pu inventories in Chinese soil cores in different latitude regions

沉积通量则表明该地区受到了全球沉降以外的来自于我国核试验的 Pu 核素影响<sup>[7]</sup>。

## 2) 剖面土壤<sup>239+240</sup>Pu垂直分布特征

Pu 核素沉降到地表后,在具体环境条件下遵循特定的环境行为规律。由于不同地区环境条件(如降雨量、土壤有机物含量、土壤 pH 值等)各不相同,使得在剖面土壤样品采集时土壤中的 Pu 核素具有特定的垂直分布规律。然而,由于 Pu 核素是一颗粒活性极高的核素,总体而言,其在剖面土壤中的垂直迁移仍较缓慢。鉴于上述原因,从报道的结果来看我国环境中保存较好的剖面土壤中<sup>239+240</sup>Pu活度浓度的垂直分布主要存在两种模式。(1) <sup>239+240</sup>Pu的活度浓度出现在表层土壤,随土壤深度的增加,土壤层中的<sup>239+240</sup>Pu活度浓度降低。较具代表性的如 Xu 等<sup>[12-13]</sup>的研究,他们在辽东半岛平原上采集的大量土壤柱中的<sup>239+240</sup>Pu活度浓度呈上述垂直分布特点。利用指数衰减函数拟合土壤剖面<sup>239+240</sup>Pu活度浓度的垂直分布,拟合度 $R^2$ 均高于0.8<sup>[13]</sup>。(2) <sup>239+240</sup>Pu活度浓度出现在亚表层土壤,在该层深度以上的土壤层中,随土壤深度的增加,<sup>239+240</sup>Pu的活度浓度逐渐增加直至达到峰值,而在峰值深度以下的土壤层中,随深度的增加,土壤中的<sup>239+240</sup>Pu活度浓度逐渐降低,整体呈现高斯分布。剖面土壤中<sup>239+240</sup>Pu活度浓度峰的位置一定程度上也能反映 Pu 核素在土壤中迁移速率的快慢。Ni 等<sup>[16]</sup>的计算指出,Pu 核素森林土壤中的垂直迁移慢于草地和荒漠土壤,在森林土壤条件下 Pu 核素能更好保存在浅层土壤中,倪有意等<sup>[31]</sup>的研究中也有相似结论。此外,值得注意的是,有研究者在剖面土壤柱中也观测到了异于上述两种形式的<sup>239+240</sup>Pu活度浓度分布特征。例如,Bu 等<sup>[18]</sup>在甘肃地区采集的部分剖面土壤柱中,<sup>239+240</sup>Pu活度浓度不随土壤深度变化而改变,整体呈现均匀分布特征;此外也有土壤柱中的<sup>239+240</sup>Pu活度浓度随土壤深度的增加而增加,<sup>239+240</sup>Pu峰值活度浓度出现在最底层(25~30 cm)土壤的报道。Bu 等<sup>[18]</sup>认为出现这个现象的原因是该地区降雨量小,土壤有机物含量低导致 Pu 核素在该地区的迁移较快。然而更明确的原因和机理还值得进一步探究。

## 3) 剖面土壤<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比垂直分布特征

与土壤柱中<sup>239+240</sup>Pu活度浓度的垂直分布特征不同的是,大部分文献报道的我国环境土壤柱中不同土壤层<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比变化不大。除部分深层土壤样品由于 Pu 核素含量极低导致测量的<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比不确定度较大外,目前报道的我国环境土壤柱中大部分<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比均接近于0.18,说明全球沉降仍是我国环境中 Pu 核素的主要来源。然而,需注意的是,部分土壤柱中也出现了异于全球沉降特征值的<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比。从空间分布来看,这些异常值报道较为集中的是在我国罗布泊核试验场下风向的甘肃地区。在早期研究中,金玉仁等<sup>[10]</sup>比较了陕西西安和甘肃某地土壤柱中的<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比,发现西安和甘肃地区土壤样品中<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比分别为0.18和0.15,说明西安地区 Pu 核素来源于全球沉降,而甘肃地区样品中的 Pu 核素则另有来源。随后,Zheng 等<sup>[3]</sup>分析测量了甘肃兰州附近的森林土壤柱中<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比,结果显示不同深度土壤中<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比均与全球沉降特征值符合很好。近年来,邢闪<sup>[5]</sup>对我国西北部的新疆、甘肃、宁夏及青海地区进行了剖面土壤的采集和 Pu 核素测量。尽管在部分土壤柱的土壤层中测量到了极异常(>0.3)的<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比,然而由于在这些出现异常的土壤层中,<sup>239+240</sup>Pu的活度浓度极低,使得<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比测量值不确定度很大。实际上,邢闪<sup>[5]</sup>采集的6个土壤柱中除了甘肃玉门地区的1个土壤柱,其余5个采自新疆、甘肃、宁夏和青海的土壤柱中各土壤层<sup>239+240</sup>Pu活度浓度绝大部分均低于0.05 mBq/g。这可能是测量得到的<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比较为异常且测量不确定度较大的原因。尽管如此,邢闪<sup>[5]</sup>在<sup>239+240</sup>Pu活度浓度较高的甘肃玉门土壤柱中仍观测到了稍异于全球沉降特征值的<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比(0.143~0.147),说明该地区可能受到全球沉降以外的 Pu 核素的影响。随后,Bu 等<sup>[5]</sup>针对性地对甘肃酒泉地区进行了土壤柱样品采集和分析,8个甘肃地区土壤柱中经过沉积通量加权的<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子比为0.132~0.168,均低于全球沉降特征值(0.18)。此外,在两个土壤柱的

土壤层中还发现了极低(0.059和0.085)的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比。这些比值与被认为受到我国核试验的Pu核素污染的我国西北湖泊沉积物中的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比相近<sup>[32-33]</sup>,说明我国核试验产生的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比可能略低于全球沉降特征值,并且进一步证明我国罗布泊核试验场下风向的甘肃地区有可能受到了来自于我国核试验的Pu核素区域性影响。

## 2 我国环境土壤中的 $^{241}\text{Am}$ 和 $^{237}\text{Np}$ 核素

与Pu核素的相关研究相比,可检索的关于我国环境土壤中 $^{241}\text{Am}$ 和 $^{237}\text{Np}$ 的报道非常有限,目前仅3篇文献涉及到我国环境土壤中 $^{241}\text{Am}$ 的来源、浓度水平及分布情况。中国辐射防护研究院的沙连茂等<sup>[20-21]</sup>与日本金泽大学低水平放射性实验室在80年代末开展过我国华北地区的北京、济南、石家庄和太原的土壤的 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 和 $^{137}\text{Cs}$ 本底调查合作研究。结果显示,4个地区土壤中 $^{241}\text{Am}$ 的活度浓度范围为0.01~0.12 mBq/g(为便于比较和说明,已衰变修正到2018年1月,余同),而 $^{241}\text{Am}$ 的沉积通量为5.9~19.9 Bq/m<sup>2</sup>。最近,Ni等<sup>[16]</sup>研究报道了河北承德、甘肃瓜州、浙江秦山和贵州贵阳不同类型(森林、草地和荒漠)土壤柱中 $^{241}\text{Am}$ 和Pu核素的来源、浓度水平、分布特征及迁移行为,4个地区 $^{241}\text{Am}$ 沉积通量范围为28.29~61.05 Bq/m<sup>2</sup>(已衰变修正到2018年1月),显著高于沙连茂等报道的华北地区土壤中 $^{241}\text{Am}$ 的沉积通量,说明 $^{241}\text{Am}$ 的沉积通量也存在较大的地区差异性。土壤柱中 $^{241}\text{Am}$ 活度浓度的垂直分布也出现了亚表层浓度峰值,峰值以下随土壤深度的增加, $^{241}\text{Am}$ 活度浓度不断降低,与 $^{239+240}\text{Pu}$ 的垂直分布特征非常相似。通过计算Pu核素和 $^{241}\text{Am}$ 的迁移速率,Ni等<sup>[16]</sup>进一步证实了这两种超铀核素在土壤中具有相似的垂直迁移行为。基于两者环境行为的相似性,Ni等<sup>[16]</sup>使用 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 活度浓度比作为非同位素示踪依据,证实了这些土壤中的 $^{241}\text{Am}$ 主要是由全球沉降的 $^{241}\text{Pu}$ 衰变而来。

对于 $^{237}\text{Np}$ ,目前还没有针对我国环境土壤中 $^{237}\text{Np}$ 浓度水平和分布特征报道。仅有1篇关于土壤中 $^{237}\text{Np}$ 分析方法的报道中报道了环境土壤样品中 $^{237}\text{Np}$ 的活度浓度用于方法验

证<sup>[34]</sup>。Yi等<sup>[34]</sup>建立了利用多接收杯电感耦合等离子体质谱仪(MC-ICP-MS)测量土壤中 $^{237}\text{Np}$ 的分析方法。在该研究中,分析测量了两个采自甘肃某地的土壤样品中的 $^{237}\text{Np}$ 活度浓度,结果分别为0.056 Bq/g和0.029 Bq/g。然而,该文章中并未提及具体的采样信息。由于这两个土壤中 $^{237}\text{Np}$ 的活度浓度显著高于国外环境土壤中全球沉降来源的 $^{237}\text{Np}$ 浓度水平(mBq/g量级),因此有理由相信这两个土壤样品受到了全球沉降以外的 $^{237}\text{Np}$ 影响。

## 3 结论与讨论

本文针对可检索的有关我国环境土壤中以Pu核素为主的包括 $^{241}\text{Am}$ 和 $^{237}\text{Np}$ 几种重要超铀核素的文献进行分析,从这些超铀核素的来源、浓度水平(含Pu同位素比值)和分布特征进行了讨论和总结,主要有以下几点结论。

1) 我国不同环境中表层土壤样品的 $^{239+240}\text{Pu}$ 活度浓度变化范围很大,为0.005~2.662 mBq/g。表层土壤中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比呈正态分布的统计特征,且其平均值(0.183±0.032)与全球沉降的特征值(0.180±0.014)非常符合,说明大部分样品中的Pu主要来源于全球沉降。

2) 环境剖面土壤中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积通量变化范围很大,为13~546 Bq/m<sup>2</sup>。甘肃部分地区存在较高的 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉积通量,可能受到了我国核试验的局域性影响;以全球沉降影响为主的土壤柱中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积通量或多或少与全球沉降在不同纬度带的平均值有所差异,可能受到当地具体自然环境条件的影响。

3) 剖面土壤中 $^{239+240}\text{Pu}$ 活度浓度的垂直分布主要有表面峰和亚表面峰两种形式。与 $^{239+240}\text{Pu}$ 活度浓度的情况不同,土壤柱中不同深度土壤层的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比差别不大。在甘肃部分土壤柱的土壤层中有明显异于全球沉降值的极低 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比(0.059和0.085)报道,提示这些区域可能受到了来自我国核试验的局域性影响。

4) 关于我国环境土壤中 $^{241}\text{Am}$ 和 $^{237}\text{Np}$ 两种重要超铀核素的报道目前仍非常有限,亟需开展相关研究。

## 参考文献:

- [1] United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation. Source and effects of ionizing radiation[R]. New York: [s. n.], 2000.
- [2] BEASLEY T M, KELLEY J M, MAITI T C, et al.  $^{237}\text{Np}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios in integrated global fallout: A reassessment of the production of  $^{237}\text{Np}$ [J]. Journal of Environmental Radioactivity, 1998, 38(2): 133-146.
- [3] 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(3): 301-305.
- [4] 李玮博,叶常青,李钧. 放射性核素的毒性重新分组[J]. 辐射防护, 1999, 29(2): 114-120.  
LI Weibo, YE Changqing, LI Jun. Reclassification of toxicity for radionuclides[J]. Radiation Protection, 1999, 29(2): 114-120(in Chinese).
- [5] 邢闪. 长寿命放射性核素  $^{239,240}\text{Pu}$  和  $^{129}\text{I}$  在环境中的示踪研究[D]. 西安:中国科学院研究生院, 2015.
- [6] 董微. 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.
- [7] 卜文庭. 痕量放射性核素钚(Pu)的准确测量与环境行为研究[D]. 北京:北京大学, 2015.
- [8] 张聚敬. 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): 50-51.
- [9] 张聚敬,徐红,韦继管. 环境中钚的污染与迁移[J]. 中华放射医学与防护杂志, 1997, 17(6): 435-436.
- [10] 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析[J]. 分析化学, 2004, 32(10): 1 321-1 324.  
JIN Yuren, ZHANG Lixing, ZHOU Guoqing, et al. Determination of the concentration and isotopic composition of plutonium in soil[J]. Chinese Journal of Analytical Chemistry, 2004, 32(10): 1 321-1 324(in Chinese).
- [11] 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(1): 71-75.
- [12] XU Y, QIAO J, HOU X, et al. Plutonium in soils from northeast China and its potential application for evaluation of soil erosion[J]. Scientific Reports, doi: 10.1038/srep03506.
- [13] XU Y, QIAO J, PAN S, et al. Plutonium as a tracer for soil erosion assessment in northeast China[J]. Science of the Total Environment, 2015, 511: 176-185.
- [14] XU Y, PAN S, WU M, et al. Association of plutonium isotopes with natural soil particles of different size and comparison with  $^{137}\text{Cs}$ [J]. Science of the Total Environment, 2017, 581-582: 541-549.
- [15] 王煜,王卫宪,申茂泉,等. 山西、河南三地土壤样品中  $^{239+240}\text{Pu}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  分析[J]. 辐射防护, 2013, 33(2): 124-128.  
WANG Yu, WANG Weixian, SHEN Maoquan, et al.  $^{239+240}\text{Pu}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in soils of three sites from Shanxi and Henan[J]. Radiation Protection, 2013, 33(2): 124-128(in Chinese).
- [16] NI Y, WANG Z, GUO Q, et al. Distinctive distributions and migrations of  $^{239+240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  in Chinese forest, grassland and desert soils[J]. Chemosphere, 2018, 212: 1 002-1 009.
- [17] 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(1): 29-32.
- [18] BU W, NI Y, GUO Q, et al. Pu isotopes in soils collected downwind from Lop Nor: Regional fallout vs. global fallout[J]. Scientific Reports, 2015, 5: 12262.
- [19] BU W, GUO Q, ZHEG J, et al. Plutonium concentration and  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  isotopic ratio in the surface soils from the Jiuquan region in Northwestern China[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2017, 311(2): 999-1 005.
- [20] 沙连茂,山本政儀,小村和久,等. 中国几个地区土壤中  $^{239,240}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am}$  和  $^{137}\text{Cs}$  等放射性核素的测定[J]. 环境科学, 1991(6): 58-63.  
SHA Lianmao, YAMAMOTO M, KOMURA K, et al.  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in soils from some areas in China[J]. Environmental Science, 1991(6): 58-63(in Chinese).
- [21] SHA L, YAMAMOTO M, KOMURA K, et al.  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in soils from several areas in China[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 1991, 155(1): 45-53.



- [22] 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):12-15.
- [23] 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.  
DONG Wei, YANG Yilong, GUO Qiuju. Study on plutonium in terrestrial soil samples in China by AMS method[J]. Radiation Protection, 2010, 30(3): 175-180(in Chinese).
- [24] BU W, ZHENG J, GUO Q, et al. Vertical distribution and migration of global fallout Pu in forest soils in southwestern China[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2014, 136: 174-180.
- [25] BUNZL K, KRACKE W. Cumulative deposition of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  from global fallout in soils from forest, grassland and arable land in Bavaria (FRG)[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 1988, 8(1): 1-14.
- [26] LEE M H, LEE C W. Association of fallout-derived  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  with natural organic substances in soils[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2000, 47(3): 253-262.
- [27] 倪有意,卜文庭,胡丹,等. 土壤和沉积物中痕量 Pu 的 ICP-MS 测量方法研究[J]. 辐射防护, 2016,36(5):265-271.  
NI Youyi, BU Wenting, HU Dan, et al. A method of measurement of ultra-trace level Pu isotopes in soil and sediment samples by ICP-MS [J]. Radiation Protection, 2016, 36(5): 265-271 (in Chinese).
- [28] KELLEY J M, BOND L A, BEASLEY T M. Global distribution of Pu isotopes and  $^{237}\text{Np}$ [J]. Science of the Total Environment, 1999 (237-238): 482-483.
- [29] XING S, ZHANG W, QIAO J, et al. Determination of ultra-low level plutonium isotopes ( $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ) in environmental samples with high uranium[J]. Talanta, 2018, 187: 357-364.
- [30] HARDY E P, KREY P W, VOLCHOK H L. Global inventory and distribution of fallout plutonium[J]. Nature, 1973, 241(5390): 444-445.
- [31] 倪有意,卜文庭,郭秋菊,等. 土壤中钚的迁移行为研究[J]. 辐射防护, 2017,37(1):1-7.  
NI Youyi, BU Wenting, GUO Qiuju, et al. Study on the migration of Pu in soil[J]. Radiation Protection, 2017, 37(1): 1-7(in Chinese).
- [32] WU F, ZHENG J, LIAO H, et al. Vertical distributions of plutonium and  $^{137}\text{Cs}$  in lacustrine sediments in northwestern China: Quantifying sediment accumulation rates and source identifications[J]. Environmental Science & Technology, 2010, 44(8): 2 911-2 917.
- [33] LIAO H, BU W, ZHENG J, et al. Vertical distributions of radionuclides ( $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ , and  $^{137}\text{Cs}$ ) in sediment cores of Lake Bosten in Northwestern China[J]. Environmental Science & Technology, 2014, 48(7): 3 840-3 846.
- [34] YI X, SHI Y, XU J, et al. Rapid determination of  $^{237}\text{Np}$  in soil samples by multi-collector inductively-coupled plasma mass spectrometry and gamma spectrometry[J]. Journal of Radioanalytical & Nuclear Chemistry, 2013, 298(3): 1 757-1 761.