

秦山核电基地外围植被中 ^{14}C 水平分布研究

王钟堂¹, 向元益², 郭秋菊¹, 王侃², 龚传德²

(1. 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;

2. 浙江省辐射环境监测站, 浙江 杭州 310012)

摘要: 为了解秦山核电基地外围 ^{14}C 的水平分布与规律, 本文采用加速器质谱法(AMS)对秦山核电基地外围 6.5 km 以内的植物样品(苔藓、松针)与食物样品中的 ^{14}C 比活度进行测量。测量结果显示: 苔藓样品的 ^{14}C 比活度范围为 223.0~265.6 Bq/kg C(本底为 223.8 Bq/kg C), ^{14}C 比活度随距排放点距离的增加呈降低的趋势, 在距排放源 6.5 km 处达到了本底水平。与松针相比, 苔藓更适合做核设施 ^{14}C 排放的指示植物。苔藓样品的 ^{14}C 比活度分布规律表明, ^{14}C 气态污染物在大气中的扩散受地形和风向因素的影响。食物样品的 ^{14}C 比活度比参照样品高 8.5~13.0 Bq/kg C(大米样品除外), 给当地公众带来的附加剂量为 0.5 $\mu\text{Sv/a}$ 。

关键词: ^{14}C ; 秦山核电基地; AMS; 比活度分布; 剂量

中图分类号: TL75

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2012)S0-0683-06

Terrestrial Distribution of ^{14}C in Vicinity of Qinshan Nuclear Power Plant

WANG Zhong-tang¹, XIANG Yuan-yi², GUO Qiu-ju¹, WANG Kan², GONG Chuan-de²
(1. *State Key Laboratory of Nuclear Physics and Technology, Peking University, Beijing 100871, China*;
2. *Environmental Radiation Monitoring Center of Zhejiang Province, Hangzhou 310012, China*)

Abstract: To study the ^{14}C levels in the food samples and botanic samples (moss and pine needle) which were distributed in the radius of 6.5 kilometer, ^{14}C specific activity was measured using accelerator mass spectrometry (AMS). The ^{14}C specific activity in moss samples, which ranges from 223.0 to 265.6 Bq/kg C, decreases with increasing of the distance from the stacks of Plant III (heavy water reactor) and reaches to the background (223.8 Bq/kg C) at a distance of 6.5 km. Compared to pine needle sample, moss sample is a better indicator to investigate the ^{14}C distribution close to Qinshan Nuclear Power Plant. The ^{14}C specific activity distribution in moss samples shows that the diffusion of the ^{14}C pollutant discharged from the Qinshan Nuclear Power Plant is affected by the geographical and meteorological conditions. The excess ^{14}C specific activities in the food samples range from 8.5 to 13.0 Bq/kg C (except for rice samples),

收稿日期: 2012-05-30; 修回日期: 2012-08-12

基金项目: 浙江省环保科研计划项目资助(200929)

作者简介: 王钟堂(1987—), 男, 湖南邵阳人, 博士研究生, 粒子物理与原子核物理专业

resulting a radiation dose of 0.5 $\mu\text{Sv/a}$ to the public.

Key words: ^{14}C ; Qinshan Nuclear Power Plant; AMS; specific activity distribution; dose

核电站正常运行时会产生 ^{14}C (半衰期为5 730 a),这些 ^{14}C 是由裂变中子与反应堆材料(燃料、覆盖层、慢化剂、冷却剂等)中的氮、氢、氧反应生成。在反应堆运行过程中,产生的 ^{14}C 主要以气态的形式排放到环境中去^[1]。由于堆型设计以及反应堆运行情况不同,各类型反应堆 ^{14}C 的年排放量也不同。通常,各主要堆型的 ^{14}C 气态污染物排放量大小关系为:CANDU(1.6) > RBMK(1.3) > BWR(0.51) > PWR(0.22)(括号内数字为1990年至1994年平均归一化排放量,其单位为TBq/GWe)^[2]。CANDU反应堆(重水堆)被认为是 ^{14}C 的主要排放源。

虽然核电站排放的 ^{14}C 相对于自然界 ^{14}C 的产量(1 400 TBq/年)和大气层核试验产生的 ^{14}C (在1963年使得大气中的 ^{14}C 比活度翻倍)要低得多,但从长期看,核电站排放的 ^{14}C 有可能导致大气中的 ^{14}C 浓度升高。因为碳是重要的生命元素,而放射性 ^{14}C 能通过光合作用进入生物圈,导致核电站附近的植被和生物体(包括人)内的 ^{14}C 比活度增加^[3-6]。从辐射防护与环境保护的角度来说,研究核电站附近的 ^{14}C 水平与分布具有重要的意义。

国外一些研究发现,正常运行情况下,核电站排放的气态 ^{14}C 污染物的影响半径一般为几km,具体取决于反应堆堆型及当地的地理和气象条件^[6-9]。秦山核电基地(Qinshan NPP)是我国一址多堆、多堆型的核电基地,目前有6座反应堆,有压水堆(PWR)和重水堆(HWR)两种堆型。目前关于秦山核电基地附近环境中 ^{14}C 的现场数据很少^[10-11]。

为了解和评价秦山核电基地排放的 ^{14}C 对周围环境的影响。本文通过测量核电基地外围指示植物中的 ^{14}C 比活度,来了解 ^{14}C 污染物在核电基地附近的水平和空间分布,并通过测量核电基地附近农作物中的 ^{14}C 水平来估算核电站运行对当地公众的剂量影响。

1 材料和方法

1.1 秦山核电基地简介

秦山核电基地位于我国浙江省海盐县秦山

镇,包括3座核电厂:秦山核电厂(一期)、秦山第二核电厂(二期)和秦山第三核电厂(三期)。秦山核电厂是我国大陆建成运行的第一座压水堆核电站,装机容量为30万千瓦,于1994年4月正式投入商业运行。秦山第二核电厂目前在运行的反应堆有3个,其装机容量为60万千瓦,分别于2002年4月、2004年5月和2010年8月投入商业运行。秦山第三核电厂是我国目前唯一一座重水堆核电站,工程设计装机容量为两台70万千瓦级(CANDU-6型)重水核电机组,分别于2002年12月和2003年7月投入商业运行。这3座核电厂的地理位置及其烟囱分布如图1所示,烟囱高度分别为102、63和55 m。核电基地附近3个气象监测站风向数据显示,2010年该地区主风向为东风。

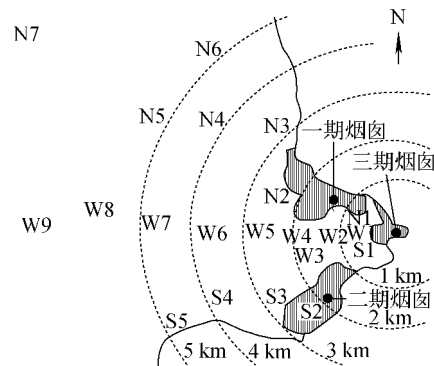


图1 秦山核电基地地理位置及采样点分布
Fig. 1 Geographic position and sample location of Qinshan NPP

1.2 样品采集

2010年12月,在秦山核电基地外围采集了表层苔藓和松针样品,采样点的分布也示于图1。采样点主要依据主风向和采样半径(以三期核电站烟囱为圆心)进行布设。在主风向上,最远采样距离为6.5 km。选择苔藓、松针作为研究 ^{14}C 在植被中分布的指示植物,原因是苔藓为1年生植物,能反应其生长期空气内 ^{14}C 的平均水平,且苔藓分布广泛,易于采集,被广泛地应用于核设施的 ^{14}C 分布研究中^[3,12-13]。松针则是国家标准中分析核设施排

放污染物的推荐植物^[14],但由于秦山区域松树分布较少,只在部分采样点采集到松针样品。2011年8月,采集了食物样品(大米、青菜、肉类、茶叶),其中青菜、肉类与茶叶样品在夏家湾(图1中W2点)附近采集。夏家湾附近区域是距离核电站最近的农作物种植区,区域内的农作物受到核电站排放的¹⁴C的影响最大。由于该区域没有种植大米,因此,大米样品在3 km外的种植点采集。

1.3 样品处理

对所有样品除杂、洗涤、干燥以后,称取5 mg左右的样品放入石英管中,再加入200 mg左右的氧化铜。将石英管接入真空系统中抽真空,当管内气压低于 1.33×10^{-2} Pa时,用火焰烧封。然后将石英管放入马弗炉中,在900 °C中氧化3 h,在此过程中样品中的有机碳全部转化为CO₂。将氧化后的石英管接入真空系统,断开石英管将CO₂释放出来,通过阀门控制使气流依次通过干冰冷阱和液氮冷阱,将气流中的水蒸气与杂气除去。除杂后的CO₂气体转移到还原管(玻璃管,内装Zn、TiH₂和Fe粉)后,用火焰烧封。最后将还原管放入马弗炉中,540 °C高温反应8 h,石墨将在Fe粉的表面生成^[15]。

1.4 样品测量

将处理好的石墨样品压入靶盘,用北京大学¹⁴C测量加速器质谱仪(1.5SDH-1型)^[16]进行¹⁴C测量。与样品一起测量的还有空白样品和标准样品,这两种样品也经过同样的流程处理。空白样品是煤样品,用于扣除处理及测量的本底。标准样品是美国国家标准技术研究院提供的草酸II样品,用于调整仪器状态。该装置测量现代¹⁴C的精度为0.3%,仪器本底(¹⁴C/¹²C)低于 4×10^{-16} 。北京大学加速器质谱实验室曾参加由国际原子能机构举办的第5次¹⁴C国际比对,其测量结果与IAEA加权统计平均值的偏差在1σ内^[17]。用该装置测量得到的是样品中的¹⁴C/¹²C、¹³C/¹²C比,最终的测量结果通过式(1)计算得到。式(1)中A_s为样品比活度,可通过样品中¹⁴C/¹²C比直接计算得到,A_{SN}为归一化后样品比活度。大括弧内的项用于校正样品处理测量的碳原子分馏。

$$A_{SN} = A_s \left\{ 1 - \frac{2(25 + \delta(^{13}\text{C}))}{1000} \right\} \quad (1)$$

$$\delta(^{13}\text{C}) = \left[\frac{^{13}\text{C}/^{12}\text{C}}{^{13}\text{C}/^{12}\text{C} - 1} \right] \times 1000\% \quad (2)$$

2 结果与讨论

2.1 结果

基地外围的苔藓和松针样品、食物样品¹⁴C比活度结果分别列于表1和2。基地外围苔藓样品的¹⁴C比活度范围为223.0~265.6 Bq/kg C(参照点苔藓样品平均¹⁴C比活度为223.8 Bq/kg C),松针样品的¹⁴C比活度范围为232.5~284.2 Bq/kg C(参照点松针样品平均¹⁴C比活度为228.8 Bq/kg C)。除了N7点的苔藓样品外,其他样品的¹⁴C比活度均高于本底。W1点的苔藓样品¹⁴C比活度最大,比本底高40.5 Bq/kg C(18.1%);N1点的松针样品¹⁴C比活度在松

表1 秦山核电基地外围苔藓、松针样品¹⁴C比活度
Table 1 ¹⁴C specific activity of moss and pine needle samples in vicinity of Qinshan NPP

采样点 编号	离三期烟囱 距离/km	¹⁴ C比活度/(Bq·kg ⁻¹ C)	
		苔藓	松针
N1	0.7	250.7±0.9	284.2±0.8
N2	1.3	231.9±0.6	
N3	3.0	225.1±0.6	
N4	4.0	229.9±0.7	
N5	5.0	228.6±0.6	
N6	5.0	224.7±0.6	
N7	8.0	223.0±0.6	
W1	0.8	264.3±0.7	267.3±0.7
W2	1.0	252.1±0.9	
W3	1.3	237.3±0.7	273.0±1.0
W4	1.7	237.4±0.7	
W5	2.8	230.4±0.6	
W6	3.7	229.5±0.6	235.6±0.6
W7	5.0	229.1±0.6	232.5±0.9
W8	5.7	226.9±1.0	
W9	6.5	225.1±0.8	
S1	0.5	265.6±0.8	265.5±0.8
S2	2.4	233.3±0.6	
S3	2.9	231.1±0.8	
S4	4.0	231.8±0.6	
S5	5.0	229.3±0.7	
R1	100	222.8±0.6	
R2	100	224.8±0.7	
R3	100		229.7±0.7
R4	100		227.8±0.7

针样品中最大,比本底高 55.4 Bq/kg C(24.2%)。其他国家重水堆核电站 ^{14}C 研究也报道了类似的现象(表3),罗马尼亚 Cernavoda 核电站周围的草样品 ^{14}C 比活度显示,在 200 m 处, ^{14}C

比活度高于本底 28%^[3]。Kim 等^[9]对韩国 Wolsong 核电站附近的松针样品研究发现,在 1 000 m 处,松针样品中的 ^{14}C 比活度达最大,比本底值高 23.2%。

表 2 秦山核电基地外围食物样品 ^{14}C 比活度
Table 2 ^{14}C specific activity in food stuff in vicinity of Qinshan NPP

采样地点	^{14}C 比活度/(Bq·kg ⁻¹ C)			
	大米	肉类	蔬菜	茶叶
秦山附近	228.5±0.9	245.9±0.5	238.9±0.9	235.6±1.0
参照点	229.6±0.5	232.9±1.0	227.8±0.5	227.1±0.5

注:每种食物采集了两个样品,表中数据为平均值

表 3 各国 CANDU-6 型重水堆核电站周边植物 ^{14}C 比活度比较
Table 3 ^{14}C specific activity in terrestrial organisms taken around CANDU-6 type pressurized heavy water reactor in the world

国家	样品种类	最大比活度 距离/m	^{14}C 最大比活度/ (Bq·kg ⁻¹ C)	本底/ (Bq·kg ⁻¹ C)	净增比例/ %
罗马尼亚 ^[3]	草	200	311	243	28
加拿大 ^[8]	树叶	1 000	4 890	260	1 780
韩国 ^[9]	松针	1 000	278.6	226	23.2
中国(本文)	苔藓	800	264.3	223.8	18.1

表 1 中数据显示,同一地点采集的苔藓、松针样品 ^{14}C 比活度不一样,松针样品的 ^{14}C 比活度大于等于苔藓样品。这与两种植物的生长期不同有关,苔藓是 1 年生植物,苔藓中的 ^{14}C 比活度反映的是 2010 年苔藓生长时期内空气中 ^{14}C 的平均水平;松树是多年生常绿乔木,松针样品的生长时间为 1 年或多年,故松针样品的 ^{14}C 比活度反映的是 1 年或多年的空气中 ^{14}C 的平均水平。而自然界中 ^{14}C 本底是逐年降低的^[18],所以多年生植物中的 ^{14}C 比活度要高于 1 年生植物的。实验采集的松针中有 1 年的和多年的,所以松针样品的 ^{14}C 比活度大于等于苔藓样品的 ^{14}C 比活度。苔藓样品的 ^{14}C 比活度结果更适合用作核设施附近 ^{14}C 在植物中分布研究。

2.2 ^{14}C 扩散规律讨论

通过分析苔藓样品研究 ^{14}C 气态污染物在大气中的扩散规律。在主风向上采集 9 个苔藓样品,苔藓样品 ^{14}C 比活度随距排放源的距离增加而减少,在 6.5 km 处, ^{14}C 比活度已接近

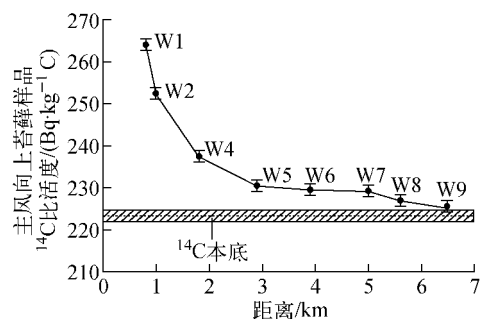


图 2 主风向上苔藓样品比活度随距离的变化
Fig. 2 ^{14}C specific activity in moss samples at dominant wind direction

本底水平,样品 ^{14}C 比活度随距离的变化如图 2 所示。测量结果显示,苔藓样品 ^{14}C 比活度的最大值在 0.8 km 以内。利用高斯烟羽模型进行理论模拟,烟囱为 55 m 的扩散源在相同气象条件下,在平原地形上, ^{14}C 比活度的最大值应出现在 0.8 km 以外。模拟值与实测结果不一致,这是因为地形影响了气体的扩散(秦山位于三期烟囱的下风向),使得主要污染区域在秦

山附近(2 km)以内。其总体规律、影响范围和国外研究是吻合的^[6,9,13]。

图3中显示了两个半径上(2 km和5 km)位于不同风向上苔藓样品的¹⁴C比活度。在2 km到5 km的区域内,既有三期重水堆排放的¹⁴C的扩散,又有一期、二期压水堆排放的¹⁴C的影响,使得浓度分布变得复杂。图3选择2 km和5 km两个半径作为分析对象,是因为这两个半径上的样品的¹⁴C主要受到三期重水堆排放的¹⁴C影响(文献[8-9,19]中压水堆核电站排放的¹⁴C影响范围一般小于4 km,所以在5 km半径处,二期和一期两个压水堆排放的¹⁴C的影响基本可忽略)。如图3所示,在2 km和5 km半径上,主风向上(东风)的苔藓样品明显比侧风向上样品的¹⁴C比活度要高,表明¹⁴C气态污染物的扩散受到风向的影响,同等距离外,下风向的受污染程度要高于侧风向。因此,风向是核设施的¹⁴C排放物在大气中扩散的一个重要影响因素。

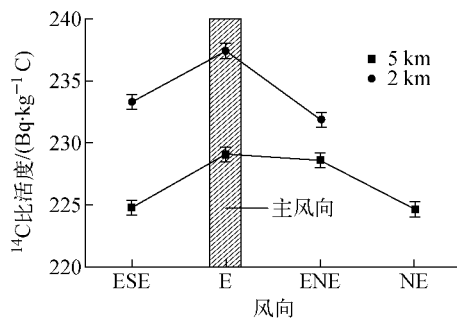


图3 不同半径上¹⁴C比活度与风向的关系
Fig. 3 Relationship between wind direction and ¹⁴C specific activity in different radii

2.3 食物样品

表2中,除大米外,其他样品的¹⁴C比活度均高于参照样品。大米样品¹⁴C比活度与本底水平相近的原因是大米样品的采样点在3 km以外。其他食物样品的¹⁴C比活度高于本底水平,说明核电站排放的¹⁴C会给当地公众带来额外的剂量。利用IAEA剂量估算模型^[20],有效剂量可用式(3)进行估算:

$$D = AfG \quad (3)$$

式中: D 为有效剂量; f 为当地食物在膳食中的比例,本文取1; A 为食物中¹⁴C比活度; G 为剂量转

换系数,本文取 $5.6 \times 10^{-5} \text{ Sv} \cdot \text{a}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{g C}$ 。

利用式(1)对秦山地区与参考区域分别计算得秦山地区的¹⁴C的年有效剂量为 $13.3 \mu\text{Sv}$,参考地区¹⁴C年有效剂量为 $12.8 \mu\text{Sv}$ 。核电站排放的¹⁴C对当地公众的附加剂量为 $0.5 \mu\text{Sv/a}$,仅为天然本底的万分之二。

3 结论

通过对秦山核电基地内部及外围的植物、食物样品进行¹⁴C比活度分析,可得出以下几点结论:

- 1) 环境植物样品中¹⁴C水平自管理区域内至周边环境呈明显逐渐降低趋势,在主风向6.5 km处已达本底水平。苔藓样品活度的最大值为 265.6 Bq/kg C ,比本底高 41.8 Bq/kg C ;
- 2) ¹⁴C在大气中的扩散与水平分布受地形和风向的影响,最大浓度出现在管理区域内;
- 3) 较松针相比,苔藓更能反映近期¹⁴C水平,且苔藓分布广泛、易于采集,是理想的指示植物;
- 4) 秦山核电基地排放的¹⁴C对外围公众的附加剂量仅为 $0.5 \mu\text{Sv/a}$,远小于国家标准所规定的剂量约束值 0.25 mSv ,可忽略。

所有¹⁴C样品在北京大学物理学院AMS实验室加速器上进行测量,感谢刘克新、丁杏芳老师的帮助。所有样品的化学处理工作在北京大学城市与环境学院第四纪实验室进行,得到了周力平老师和高攀、谭文炳的悉心帮助,在此一并表示感谢。

参考文献:

- [1] IAEA. Management of waste containing tritium and carbon-14[R]. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2004.
- [2] UNSCEAR. Sources and effects of ionizing radiation[R]. New York: [s. n.], 2000.
- [3] MAGNUSSON A, STENSROM K, SKOG G, et al. Levels of ¹⁴C in the terrestrial environment in the vicinity of two European nuclear power plants[J]. Radiocarbon, 2004, 46(2): 863-868.
- [4] ISOGAI K, COOK G T, ANDERSON R. Reconstructing the history of ¹⁴C discharges from Sellafield: Part 1—Atmospheric discharges[J].

- Journal of Environmental Radioactivity, 2002, 59: 207-222.
- [5] DEBET S R, GONTIER G, SICLET F, et al. Distribution of ^{14}C in the terrestrial environment close to French nuclear power plants [J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2006, 97: 246-259.
- [6] DIAS C M, SANTOS R V, STENSTR M K, et al. ^{14}C content in vegetation in the vicinities of Brazilian nuclear power reactors [J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2008, 99: 1 095-1 101.
- [7] STENSTROM K, SKOG G, THORNBERG C, et al. ^{14}C levels in the vicinity of two Swedish nuclear power plants and at two "clean-air" sites in Southernmost Sweden [J]. Radiocarbon, 1998, 40(1): 433-438.
- [8] MILTON G M, KRAMER S J, BROWN R M, et al. Radiocarbon dispersion around Canadian nuclear facilities [J]. Radiocarbon, 1995, 37(2): 485-496.
- [9] KIM C K, LEE S K, RHO B H, et al. Environmental distribution and behavior of ^3H and ^{14}C around Wolsong Nuclear Power Plant [J]. Health Physics, 2000, 78(6): 693-699.
- [10] 曹钟港,叶际达,汪宏峰,等. 秦山核电基地外环境大气 ^3H 、 ^{14}C 水平监测 [J]. 辐射防护通讯, 2006, 26(6): 17-20.
CAO Zhonggang, YE Jida, WANG Hongfeng, et al. Monitoring of ^3H and ^{14}C levels in air external environment around QNPPs [J]. Radiation Protection Bulletin, 2006, 26(6): 17-20 (in Chinese).
- [11] 戴开美, CHRISTOPHER J E, AUSTIN L, 等. 核电站附近大气中过量的放射性碳 [J]. 中国学术期刊文摘, 1998, 4(9): 1 103-1 104.
DAI Kaimei, CHRISTOPHER J E, AUSTIN L, et al. The study of excess ^{14}C in the airborne environment around nuclear power plant [J]. Chinese Science Abstracts, 1998, 4(9): 1 103-1 104 (in Chinese).
- [12] MIKHAILOV N D, KOLKOVSKY V M, PAVLOVA I D. Radiocarbon distribution in Northwest Belarus near the Ignalina Nuclear Power Plant [J]. Radiocarbon, 1999, 41(1): 75-79.
- [13] MAGNASSON A. ^{14}C produced by nuclear power plant generation and characterization of gaseous, liquid and solid waste [D]. Sweden: Lund University, 2007.
- [14] 中国核工业总公司. EJ 527-90 环境辐射监测中生物采样的基本规定 [S]. 北京: 中国标准出版社, 1990.
- [15] XU X M, TRUMBORE S E, ZHENG S H, et al. Modifying a sealed tube zinc reduction method for preparation of AMS graphite targets; Reducing background and attaining high precision [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 2007, 259(3): 320-329.
- [16] LIU K X, DING X F, FU D P, et al. A new compact AMS system at Peking University [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, 2007, 259(1): 23-26.
- [17] 刘克新, 丁杏芳, 傅东坡, 等. 北京大学 AMS ^{14}C 国际比对样品测量 [J]. 第四纪研究, 2007, 27(3): 469-473.
LIU Kexing, DING Xingfang, FU Dongpo, et al. The AMS measurement of VIRI samples at Peking University [J]. Quaternary Sciences, 2007, 27(3): 469-473 (in Chinese).
- [18] LEVIN I, KROMER B. The tropospheric $^{14}\text{CO}_2$ level in mid-latitudes of the northern hemisphere (1959-2003) [J]. Radiocarbon, 2004, 46(3): 1 261-1 272.
- [19] MOLNAR M, BUJTAS T, SVINGOR E, et al. Monitoring of atmospheric excess ^{14}C around Paks Nuclear Power Plant, Hungary [J]. Radiocarbon, 2007, 49(2): 1 031-1 043.
- [20] IAEA. Generic models for use in assessing the impact of discharges of radioactive substance to the environment [R]. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2001.