CNIC-01025 CSNAS-0098

CN9600995

中国核科技报告

CHINA NUCLEAR SCIENCE AND TECHNOLOGY REPORT

放射性铈在农业生态系中的行为

THE BEHAVIOR OF RADIOACTIVE CERIUM IN AGRICULTURAL ECOSYSTEM

(In Chinese)



中国核情报中心原子能出版社

China Nuclear Information Centre Atomic Energy Press

VOL 27胎11



钟伟良:理学硕士。1992年毕业于华中理工大 学生物系,1995年获浙江农业大学原子核农业 科学研究研究所生物物理专业硕士学位。 Zhong Weiliang: A master of science. Graduated from Biology Department of Huazhong University of Science and Technology in 1992 and received MS degree in biophysics at Institute of Nuclear-Agricultural Sciences, Zhejiang Agricultural University in 1995.

CNIC-01025 CSNAS-0098

放射性铈在农业生态系中的行为:

钟伟良" 王寿祥 陈传群 张永熙 孙志明

(浙江农业大学原子核农业科学研究所,杭州)

摘 要

研究了¹⁴¹Ce 在模拟水稻田和模拟水生生态系中的迁移、积累和 分布。结果表明:(1)¹⁴¹Ce 引入田水后,水中¹⁴¹Ce 的浓度迅速下降。 水稻主要经根部吸收¹⁴¹Ce,然后在稻株各部位中再分配。¹⁴¹Ce 在模拟 水稻田中移动性较差,土壤对¹⁴¹Ce 的吸附迅速,吸附率较高,93%以 上的¹⁴¹Ce 滞留于表层 4 cm 之内。¹⁴¹Ce 在模拟水稻田中的动态变化 可用封闭三分室模型描述。(2)¹⁴¹Ce 进入模拟水生生态系后,因物 理、化学作用很快产生吸附、凝聚、络合沉淀,并为水生生物及底泥 吸附、吸收。底泥对¹⁴¹Ce 有很强的吸附能力。水生生物对¹⁴¹Ce 的富 集能力依次为:金鱼藻>螺蛳>鱼。¹⁴¹Ce 在模拟水生生态系中的行为 规律可用封闭五分室模型描述。

由中国原子能农学会供稿。
 现在华南农业大学生物系工作。

¹

THE BEHAVIOR OF RADIOACTIVE CERIUM IN AGRICULTURAL ECOSYSTEM

(In Chinese)

Zhong Weiliang^{••} Wang Shouxiang Chen Chuanqun Zhang Yongxi Sun Zhiming (INSTITUTE OF NUCLEAR AGRICULTURAL SCIENCES, ZHEJIANG AGRICULTURAL UNIVERSITY, HANGZHOU)

ABSTRACT

Studies on the transport, accumulation, and distribution of ¹⁴¹Ce in simulated paddy and simulated aquatic ecosystem were done. The results are as follows: (1) The concentration of ¹⁴¹Ce in water decreased sharply when ¹⁴¹Ce was put into the paddy through water. The upstake of ¹⁴¹Ce by rice was mainly via root, and redistribution in all parts of rice occurred consequently. ¹⁴¹Ce which was rapidly and almost completely adsorbed by soil could not move readily through the soil, and over 93 per cent of that was retained within 4 centimeter of the surface layer. The dynamic behavior of ¹⁴¹Ce in the paddy could be described as a closed three-compartment model. (2) After ¹⁴¹Ce was put into the aquatic ecosystem, the adsorption, condensation, complexation and deposit of ¹⁴¹Ce were quickly generated by physical and chemical processes, and then most of that was adsorbed by silt, aquatic plants and animals. Silt had a great capability of adsorbing ¹⁴¹Ce. The concentration capability of aquatic for ¹⁴¹Ce have the order of: hoenwort>snail>fish. A closed five-compartment model was applied to describe the behavior of ¹⁴¹Ce in the aquatic ecosystem.

[•] Contributed by the Chinese Society of Nuclear-Agricultural Sciences (CSNAS).

^{**} South China Agricultural University.

前 言

核裂变产物中铈有半衰期为 32.5 d 的¹¹Ce 和 284.4 d 的¹¹Ce 两种放射性同位素;¹¹Ce 的产额较高,约达 6%。尽管¹¹Ce 的溶解度和流动性通常较低,但在美国太平洋地区的核试 验不久,曾在鱼组织中检测到该核素^[1];在黑尾鹿的肝脏中亦发现由遍及全球的落下灰所携 带的该核素。特别值得注意的是,在估算黑尾鹿的肝脏由落下灰的几种放射性核素所引起的剂量中有 71%是由¹¹Ce-¹¹¹Pr 贡献的^[2]。可见,¹¹¹Ce 也是核电站潜在的最重要的放射性污 染核素之一。因此,对放射性铈在农业生态系中的行为规律进行研究,以此说明和预测其 对生态环境的影响程度,具有重要的理论和现实意义。

国内有关放射性铈环境行为的研究时有报道^[3~5],但都是静态的,很少通过建立数学模型来描述放射性铈在生态系中的动态行为规律。

本文从动力学观点出发,研究了¹¹¹Ce 在模拟水稻田和模拟水生生态系中的迁移和输运 动态,运用示踪动力学分室模型,通过计算机拟合建立了¹¹¹Ce 在上述系统中行为规律的数 学模式,为了解和预测放射性铈对生态环境的影响程度提供了科学资料和理论依据。

1 材料与方法

1.1 ¹⁴¹Ce的转化与配制

目前国内¹¹Ce来自反应堆照射产物。由中国原子能科学研究院提供的¹¹Ce为淡黄色 ¹¹CeO₂粉末,出厂时的比活度为 9.25×10⁶ Bq/mg (1994.06.11),使用前转化成¹¹Ce (NO₃)₃。其方法是:加入适量的 H₂O₂ 和浓 HNO₃,待其溶解后用蒸馏水定容,使用时再稀 释成适当比活度的母液。其反应式如下:

 $2^{141}CeO_2 + H_2O_2 \longrightarrow {}^{141}Ce_2O_3 + H_2O + O_2$

 $^{111}Ce_2O_3 + 6HNO_3 \longrightarrow 2^{111}Ce(NO_3)_3 + 3H_2O_3$

在 G-M 计数器上测得其对 "Ce 活度的计数效率为 36.5%。

1.2 ¹¹¹Ce 在模拟水稻田中的迁移、消长和分配动态

采用盆栽。盆钵尺寸为 20 cm×20 cm。每只盆钵装入风干的杭州华家池黄松田或青紫 泥 (取自秦山核电厂下风向 6 km 范围) 各 5.0 kg。其主要理化参数为:有机质 1.9%, 3.15%; pH 值 6.0, 6.4 (水浸); 5.5, 6.3 (盐浸); 交换性总酸度 (H⁺) 0.5, 2.4 mmol/kg 干土; 交换性钙 59, 51.5 umol/kg 干土; 交换性镁 7.5, 16.5 mmol/kg 干土; 粘粒 (<0.001 mm) 12.5, 23.5%。每种土壤分成 6 组,每组三只重复。每盆栽插水稻 (品种: 浙辐 218) 4 丛,每丛 5 株,分别于插秧、返青、孕穗、齐穗、乳熟和黄熟期一次灌入¹⁴¹Ce (NO₃)₃ 水溶液 (比活度为 2546890 计数•min⁻¹/ml, 1994.08.01) 10.00 ml,其引入距收 获的时间间隔相应为 95, 81, 58, 44, 13 和 3 d。盆钵土表面水量约 2 L。整个试验期间保 持水面高度基本不变。于是合田表水初始引入浓度为 12734.4 计数•min⁻¹/g 水 (1994.08.01)。

于收获期一次性收获全部水稻(连根拔起),然后将水稻分糙米、稻壳、稻草和稻根, 各作适当处理后于~600℃马弗炉中灰化8h;每只盆钵中的土壤,用筒式取土器取分布均

匀的六个点,然后将各土柱约每2 cm 横向均等分割,计7 段,烘干研碎后过筛(粒径<0.6 mm)。所有样品取适量铺于测样皿中,在 G-M 计数器上测定¹⁴¹Ce 计数率,测定值经衰变及 自吸收校正后供分析处理。

1.3 ¹⁴¹Ce在模拟水生生态系中的迁移、消长及分配动态

试验在1m×1m×0.6m的水泥池(内衬塑料板)内进行(2次重复),每池内装50.0kg 风干的前述黄松田,灌水250.0kg,待水基本澄清后(约2d),每池放养40尾非洲鲫鱼(*Tilapia mossambica*),每尾重约5g,100枚螺蛳(*Bellamya purificata*),每枚重约2g,金鱼藻(*Ceralophyllum demersum*)200g。驯养10d后,池内水生动植物基本处于正常生长状况,然后每池引入比活度为822430计数・min⁻¹/ml(1994.09.23)的¹⁴¹Ce(NO₃)₃水溶液250ml,合池水中¹⁴¹Ce初始浓度为822.4计数・min⁻¹/ml(1994.09.23)。

取样分别于"Ce引入后1h,6h,1d,3d,6d,11d,16d,21d,26d和35d进行。每次直接吸取水样1.00 ml(三只重复)于测样皿中经红外灯烘干;取底泥(表层约1.5 cm 深)适量,经尼龙纱沥水后烘干,研碎过筛(粒径<0.6 mm),取200.0 mg平铺在测样皿上;取适量金鱼藻,用清水冲洗后吸去表面水,称鲜重后于马弗炉~600℃下焚烧8h;取鱼2尾,螺蛳2枚,皆用清水冲洗后吸去表面水,然后将鱼分成鳞、肉、鳃、骨(头)和内脏,螺蛳分壳和肉,采取与金鱼藻相似的处理方法。金鱼藻、鱼和螺蛳灰化后各称取100.0 mg平铺在测样皿上,均设三只重复。各样品均在G-M计数器上作"Ce计数率测定。并作衰变和自吸收校正。

2 结果与讨论

2.1 "Ce在模拟水稻田中的迁移、消长和分配动态

2.1.1 ¹¹¹Ce 在模拟水稻田各部分中的分布动态

¹¹Ce由田水引入后,便在系统各部(组)分中发生迁移,从而引起各组分中¹¹Ce浓度 (或比活度)的变化,其测定结果如表1所示。

表 1 模拟水稻田各组分中¹¹¹Ce 浓度的变化

 Table 1 The Dynamic Change of Concentration of ¹⁴¹Ce in Each Compartment of Simulated Paddy

时间	田水/计数 • min ⁻¹ • g ⁻¹		水稻土・(干)/i	十数 • min ⁻¹ • g ⁻¹	水稻 (干) /计数・min ⁻¹ ・g ⁻¹		
d	黄松田	青紫泥	黄松田	青紫泥	黄松田	背紫泥	
3	18.8	80.1	4774.7	4643.7	2566.6	2296. 2	
13	14.4	2.7	4606-5	4059.3	14060.9	4274.9	
44	3.8	2.2	3339. 2	3383.8	14681.9	8963.5	
58	5.5	0.7	2691.7	2455.3	18524.0	15479.8	
81	1.2	0.8	2769.9	2615.1	14126.2	11084.0	
95	1.2	1.0	2665.2	2510.3	3383. 5	3843.9	

* 水稻土系土壤的平均值。

田水中的¹¹¹Ce,因水稻土的吸附和水稻根及浸入水中的水稻茎杆的吸附、吸收,使其浓度迅速下降。从表1不难看出,引入后3d 黄松田和青紫泥的田水中¹¹¹Ce 浓度仅为初始浓度的 0.15%和 0.63%,13d 后其浓度变化较为缓慢并逐渐趋于平衡状态。

¹¹Ce 是分别于插秧、返青、孕穗、齐穗、乳熟和黄熟期一次性由田水引入的。稀土族 元素如铈、锴、钕等虽不是植物生理上的必需元素,但是水稻能通过根系从土壤中吸收和

积累它们^[3];稻株对铈的吸收是与其它营养元素一起进行的,因而只有当水稻生长旺盛时,因其对营养元素需求增大才吸收较多的¹⁴¹Ce;同时¹⁴¹Ce 也极易被土壤吸附,其中大部分为 土壤牢固吸附,中性盐对它的解吸能力较弱^[6],因而田水中水溶态¹⁴¹Ce 的供给也就显著减 少。这是表1所反映的各生育期之间水稻吸收¹⁴¹Ce 的较大差异,也是距收获3d(黄熟期) 和 95 d(插秧期)的水稻中¹⁴¹Ce 浓度特别低的原因。

由稻根吸收的¹¹¹Ce 可通过输导组织输运至茎、叶、谷粒;表 2 表明,为水稻所吸收的 ¹¹¹Ce 绝大部分集中于稻根和稻草,稻壳中较少,而糙米中则更少。

表 2 不同生育期水稻各部位 (干) 中¹⁴¹Ce 的浓度 · 计数 · min⁻¹/g Table 2 The Concentration of ¹⁴¹Ce in Different Parts of Rice (dry sample) During Different Growing and Developing Periods, cpm/g

时间/d	3	13	44	58	88	95
根	13991.2	29597.8	4105.8	5187.2	42051.2	4192.5
稻草	3589.5	26031.2	30650.6	38728.9	24565.7	6637-2
稻売	365.9	582.5	116.8	139.3	128.8	111.4
糙米	24.6	28.9	28. 9	35.2	35.2	14.0

*土壤为黄松田。

表1的数据还指出,¹¹¹Ce进入田水后,迅速地被土壤吸附。其吸附¹¹¹Ce的途径主要有两条:¹¹¹Ce³⁺与土壤矿物表面裸露的羟基、土壤中的有机质形成络合物^[7],及¹¹¹Ce³⁺水解后的沉淀或共沉淀作用^[8]。¹¹¹Ce首先被土壤表层吸附,由于淋溶等作用向土壤深层迁移;但是¹¹¹Ce向土壤深层的迁移是极其有限的,总量的93%集中在表层4 cm(表3)。因此,一旦水稻田被核电站事故释放的放射性铈污染,可通过翻耕将表层土壤转至深层来予以治理。

表 3 ""Ce在土壤中的铅垂分布 %

Table 3 The Vertical Distribution of ¹⁴¹Ce in the Paddy Soils, %

深度 cm	0~2	2~4	4~6	6~8	8~10	10~12	12~14
貸松田	75.2	18.1	2.6	1.2	0.8	检不出	检不出
青紫泥	67.8	25.9	4.2	1.1	1.0	检不出	检不出

2.1.2 "Ce 在模拟水稻田中的动力学

模型

我们运用三分室模型建立了¹¹¹Ce在 模拟水稻田中的输运和消长的数学模 式。¹¹¹Ce系于水稻不同生长期一次性由 田水引入,于是便向土壤和水稻转移;对 于水稻,其中的¹¹¹Ce还来自土壤;稻根由 田水和土壤吸收的¹¹¹Ce将向地上部输 运,略去向水和土壤的迁移;被土壤吸收 或吸附的¹¹¹Ce(尤其是¹¹¹Ce³⁺)部分将发 生解吸而返回田水中;另外,在模拟试验 条件下,¹¹¹Ce不会因挥发、流失而损失, 故系统是封闭的(图 1)。因此不难得各分



图 1 封闭三分室模型

Fig. 1 The Closed Three-compartment Model

室中¹¹¹Ce 量 qi 对时间变化率的表达式:

$$dq_w/dt = - (k_{ws} + k_{wr})q_w + k_{sw}q_s$$
$$dq_s/dt = - (k_{sw} + k_{sr})q_s + k_{ws}q_w$$
$$dq_r/dt = k_{wr}q_w + k_{sr}q_s$$

式中 k_{ii} 表示¹⁴¹Ce 由 i 分室向 j 分室转移的速率,可视为常数。利用初始条件 $t = 0, q_w = q_{w,0}$, $q_{s,0} = q_{r,0} = 0$,及 $q_{w,0} = \sum q_i = 常数, m_iC_i = q_i$ (此处 m_i 为 i 分室的质量,可视为常数, C_i 为 i 分室中¹⁴¹Ce 的浓度),解上方程组得:

$$C_{w} = \frac{C_{w,0}}{B - A} [(D - A)e^{-At} - (D - B)e^{-Bt}]$$

$$C_{e} = \frac{m_{w}C_{w,0}k_{wa}}{m_{e}(B - A)}(e^{-At} - e^{-Bt})$$

$$C_{r} = \frac{m_{w}C_{w,0}}{m_{r}}(1 - \frac{k_{wr} - B}{A - B}e^{-At} + \frac{k_{wr} - A}{A - B}e^{-Bt})$$

式中:

$$A = \frac{1}{2} \Big(D + k_{ws} + k_{ws} - \sqrt{(k_{wr} + k_{ws} - D)^2 + 4k_{ws}k_{sw}} \Big)$$
$$B = \frac{1}{2} \Big(D + k_{wr} + k_{ws} + \sqrt{(k_{wr} + k_{ws} - D)^2 + 4k_{ws}k_{sw}} \Big)$$
$$D = k_{sr} + k_{sw}$$

利用表 1 的数据和 $C_{w,0} = 12734.4$ 计数 • min⁻¹/g 及各分室的质量 ($m_w = 2000$ g, $m_s = 5000$ g, $m_r = 250$ g), 经计算机拟合得各分室中¹⁴¹Ce 浓度随时间变化的数学模式。 黄松田:

 $C_{w_1} = 12734.5(0.0004 e^{-0.00825t} + 0.9996 e^{-2.237t})$ $C_{s_1} = 5562.1(e^{-0.00825t} - e^{-2.237t})$

 $C_{r_1} = 110734.8(1 - 0.8895 e^{-0.00825 t} - 0.1105 e^{-2.237 t} - 0.0965 e^{0.0185 t})$ 其中各速率常数为 $(d^{-1}): k_{w_1} = 1.981, k_{w_2} = 0.255, k_{sw} = 0.00106, k_{sr} = 0.00808$ 。 背紫泥:

> $C_{w_2} = 12734.5(0.0003 e^{-0.00605i} + 0.9997 e^{-1.705i})$ $C_{v_2} = 4465.2(e^{-0.00605i} - e^{-1.705i})$

 $C_{r_2} = 82158.1(1 - 0.9095 e^{-0.0005} + 0.0905 e^{-1.705} - 0.0725 e^{0.0188})$ 其中各速率常数为 $(d^{-1}): k_{w_2} = 1.544, k_{w_1} = 0.160, k_{w_2} = 0.00595, k_{w_1} = 0.00081$ 。

以上各数学模式不仅定量地描述了""Ce 在各相应分室中的动态变化状况,而且可给出 预测;两种土壤的水稻浓度表达式中最后加了一个修正项,其主要原因是水稻不同生育期 的生长速率差异较大。尤其是插秧、返青时生理代谢并不活跃,因而对""Ce 的吸收也相应 较少。故对理论模式加以修正是必要的。拟合过程中,理论值与实验值偏差控制在 30%以 内。

2.2 ¹⁴¹Ce在模拟水生生态系中的迁移、消长与分配动态

2.2.1 ¹¹¹Ce 在模拟水生生态系各组分中的分配测定结果列于表 4。可见,当¹¹¹Ce 进入水体 后,由于络合作用、水解及悬浮颗粒的沉淀^[9],底泥、水生动植物的吸附、吸收等,使池水 中¹¹¹Ce 浓度迅速降低,并逐渐平缓。这是由于¹¹¹Ce (NO₃)。进入水体后,¹¹¹Ce³⁺与水体中悬 浮微粒发生凝聚沉淀作用,从而使¹¹¹Ce 进入底泥或为金鱼藻羽毛状枝叶所吸附、吸收,鱼 和螺蛳的表面由于生理代谢作用也迅速地吸附、吸收¹¹¹Ce,使得水中的¹¹¹Ce 浓度急剧降低; 与此同时,因水相中¹¹¹Ce 浓度降低较快,于是各部分对¹¹¹Ce 的富集也趋缓慢,加上同时存 在的¹¹¹Ce 的解吸、溶出,池水中¹¹¹Ce 浓度变化逐渐平缓。

表 4 模拟水生生态系中¹¹¹Ce分配动态

Table 4 The Distributive Dynamic of Concentration of ¹⁴¹Ce in the Simulated Aquatic Ecosystem

<u>时间</u> d	<u>池水</u> 计数・min ⁻¹ /g	<u>底泥(干)</u> 计数・min ⁻¹ /g	<u>鱼 (鲜样)</u> 计数・min ⁻¹ /g	<u>金魚藻 (鲜样)</u> 计数・min ⁻¹ /g	<u>螺蛳(鲜样)</u> 计数・min ⁻¹ /g
1/24	446.5	387.7	6161.4	17601.8	4316.6
6/24	185.6	1065.5	9097.7	21536.4	6889.9
1	65.4	1471.0	3556.1	34083.0	3546.9
3	45.5	2486.6	2586.6	18450.6	1691.0
6	17.6	4897.7	1452.0	10378.9	1036.3
11	6.8	5464.7	633.7	6509.3	799.9
16	4.4	5680.0	428. 1	4355.3	1115.0
21	16.6	5870.9	355.6	2634.6	608.3
26	14.4	6304.7	373.8	3930. 7	383.1
35	0.9	6058.7	108.5	1301.3	443.6

底泥中¹¹¹Ce 浓度则随时间延长而增大,第 11 d 后基本达到平衡。这是由于底泥对¹¹¹Ce 的吸附大部分是通过有机质络合、沉淀物吸附及铁锰氧化物吸附而发生的^[7],而且因被表层 底泥吸附的¹¹¹Ce 可以向深层迁移,从而减少了溶出和解吸的机会。

¹⁴¹Ce 进入池水后,由于鱼的呼吸、进食及体表吸附等,使鱼体各组织、器官中发生¹⁴¹Ce 积累,而由于解吸、排泄等作用,又使鱼体各组织、器官中¹⁴¹Ce浓度降低。鱼体各部分中 ¹⁴¹Ce浓度随时间变化情况列于表 5。

表 5 鱼体各部分(鲜样)中¹⁴¹Ce 浓度与时间关系 计数・min⁻¹/g Table 5 The Concentration of ¹⁴¹Ce Different Parts of Fish (fresh sample) as a Function

<u>时间</u> d	1/24	6/24	1	3	6	11	16	21	26	35
鳞	974.9	490.4	611.5	345.2	110.6	163.6	173.5	74.9	91.7	17.1
鳃	1620.8	1500.4	392.6	341.4	85.8	92.4	85.5	78.3	31.0	48.9
内脏	37264.5	35193.3	22769.4	17464.9	9778.4	4242.9	2989. 0	1790.3	2374.3	633.9
肉	278.9	332.7	295.0	44.8	21.1	43.8	6.9	38.8	7.6	9.3
骨,头	739.3	348.1	371.0	150.0	45.0	86.5	50.4	63.6	13.3	14.6

of Time, cpm/g

前已述及,¹¹¹Ce进入系统后,首先为池水中悬浮颗粒所吸附,并发生聚凝沉降;这些 聚凝物被鱼的体表所吸附,或在鱼吸收、进食过程中为鱼鳃所滞留。因此,当¹¹¹Ce进入系统后,鱼鳞和鱼鳃中¹¹¹Ce浓度便迅速上升,几小时内便达最大值。但由于这种最初的吸附

主要为表面物理吸附,且因池水中¹¹¹Ce 浓度下降很快,故在鱼游动过程中,鱼鳞和鱼鳃中 的大部分¹¹¹Ce 又重新释放或分配,只有小部分被其真正固定。

鱼内脏中¹¹¹Ce 浓度增高极快,试验开始后 1 h 即达最大值,为池水初始浓度的 45 倍。 随后开始下降,这主要是由于因进食聚凝物被鱼的胃肠道所阻留,而在短时间内¹⁴Ce的排 泄又极为有限所致,但鱼的胃肠道对11°Ce的吸收毕竟是很低的。因此,随着时间的延续,胃 肠道中的¹¹¹Ce 被排出体外,内脏中¹¹¹Ce 浓度也就随之降低。鱼体各部分中¹¹¹Ce 浓度的差异 是很大的,其大小次序为:内脏>鳃>鳞>骨、头>肉。

金鱼藻对'''Ce 有较强的吸附、吸收能力。在'''Ce 引入池水后 1 d,其吸附'''Ce 的量就 达最大值;随着时间的延长,金鱼藻中¹⁴Ce浓度开始下降。这是由于系统刚引入¹⁴Ce时,其 与水中悬浮颗粒发生凝聚和络合沉淀作用,含¹¹¹Ce的凝聚物被具有巨大比表面积的金鱼藻 羽状枝叶所吸附,部分被吸收。被吸附在表面的¹¹¹Ce由于水流搅动等原因发生解吸、溶出 而重新进入池水,从而使金鱼藻中¹¹¹Ce浓度下降,并趋于平衡。

螺蛳中¹¹¹Ce浓度随时间变化的状况与其它水生动植物相似。但是,¹¹¹Ce由池水引入后 6 h, 螺壳和螺肉中的¹¹Ce 浓度即已达最大值(表 6)。随后由于释放、生理排泄等原因, 其 浓度逐新下降。但螺壳中¹⁴¹Ce浓度下降幅度较小。至于螺肉,它可分为螺体的头部和胃肠 内脏两部分。螺体的头部是螺蛳进食、爬行等活动的重要器官,所以摄入的¹¹Ce 首先在头 部积累。但由于代谢作用,头部的¹¹¹Ce又逐渐向肠胃内脏转移,而肠胃对¹¹¹Ce的吸收率是 很低的,因此, 螺肉中¹¹¹Ce浓度趋于稳定时与其最大值相差很大, 仅为其 3%左右。

> 表 6 螺蛳各部分(鲜样)中¹¹¹Ce浓度与时间关系。 计数・min⁻¹/g

Table 6 The Concentration of ¹⁴¹Ce Different Parts of Snail (fresh sample) as a Function

时间/d	1/24	6/24	1	3	6	11	16	21	26	35
螺壳	1672.0	3463.1	2133.9	1080.1	1062.9	1128.3	1221.0	569.7	408.6	520.9
螺肉	7271.2	12242.6	4963.6	2355.1	1013.3	458.6	1011.0	657.3	349.1	348.9

of Time, cpm/g

总之,¹¹Ce 在水生生态系中的行为过程是 极其复杂的,它受复杂的物理、化学及生物学过 程所制约和支配。¹¹¹Ce 进入水环境后,将被水 生动植物吸收、富集而影响它们利用价值。这应 引起我们的注意。

2.2.2 "Ce 在模拟水生生态系中的迁移模型

"Ce在所论系统中的迁移模型可用池水-底泥-鱼-金鱼藻-螺蛳五分室模型原理求得(图 2)。由于在模拟试验条件下,¹¹¹Ce不会挥发和 散失,故所论系统是封闭的;其次,该五个分室 中,¹¹¹Ce 量对时间的变化率是由五个总共含 20 个转移系数(或速率常数)的微分方程构成的方 程组, 欲求得各转移系数值是相当困难的, 但若 忽略一些次要过程,则问题将大为简化。此时各



图 2 封闭五分室模型 Fig. 2 The Closed Five-compartment Model

分室中¹⁴¹Ce 量 qi 对时间的变化率分别为:

$$dq_{1}/dt = -\sum_{i=2}^{5} k_{1i}q_{1} + k_{31}q_{3} + k_{41}q_{4} + k_{51}q_{5}$$

$$dq_{2}/dt = k_{12}q_{1}$$

$$dq_{3}/dt = k_{13}q_{1} - k_{31}q_{3}$$

$$dq_{4}/dt = k_{14}q_{1} - k_{41}q_{4}$$

$$dq_{5}/dt = k_{15}q_{1} - k_{51}q_{5}$$

利用初始条件 $t = 0, C_{1,0} \neq 0, C_{i,0} = 0, (i = 2, 3, 4, 5), 和 C_j = q_j / m_j$ (此处 C_j, q_j, m_j 分别为第 j 分室中¹¹¹Ce 的浓度、总活度及相应分室的质量), 解得:

$$C_{1} = C_{1,0}(Ae^{-a_{1}t} + Be^{-a_{2}t} + Ce^{-a_{3}t} + De^{-a_{4}t})$$

$$C_{2} = \frac{C_{1,0}m_{1}k_{12}}{m_{2}}(1 - \frac{A}{a_{1}}e^{-a_{1}t} - \frac{B}{a_{2}}e^{-a_{2}t} - \frac{C}{a_{3}}e^{-a_{3}t} - \frac{D}{a_{4}}e^{-a_{4}t})$$

$$C_{3} = \frac{C_{1,0}m_{1}k_{13}}{m_{3}}(\frac{A}{k_{31} - a_{1}}e^{-a_{1}t} + \frac{B}{k_{31} - a_{2}}e^{-a_{2}t} + \frac{C}{k_{31} - a_{3}}e^{-a_{3}t} + \frac{D}{k_{31} - a_{4}}e^{-a_{4}t})$$

$$C_{4} = \frac{C_{1,0}m_{1}k_{14}}{m_{4}}(\frac{A}{k_{41} - a_{1}}e^{-a_{1}t} + \frac{B}{k_{41} - a_{2}}e^{-a_{2}t} + \frac{C}{k_{41} - a_{3}}e^{-a_{3}t} + \frac{D}{k_{41} - a_{4}}e^{-a_{4}t})$$

$$C_{5} = \frac{C_{1,0}m_{1}k_{15}}{m_{5}}(\frac{A}{k_{51} - a_{1}}e^{-a_{1}t} + \frac{B}{k_{51} - a_{2}}e^{-a_{2}t} + \frac{C}{k_{51} - a_{3}}e^{-a_{3}t} + \frac{D}{k_{51} - a_{4}}e^{-a_{4}t})$$

这里,

$$A = \frac{(k_{31} - \alpha_1) (k_{41} - \alpha_1) (k_{51} - \alpha_1)}{(\alpha_2 - \alpha_1) (\alpha_3 - \alpha_1) (\alpha_4 - \alpha_1)}$$

$$B = \frac{(k_{31} - \alpha_2) (k_{41} - \alpha_2) (k_{51} - \alpha_2)}{(\alpha_1 - \alpha_2) (\alpha_3 - \alpha_2) (\alpha_4 - \alpha_2)}$$

$$C = \frac{(k_{31} - \alpha_3) (k_{41} - \alpha_3) (k_{51} - \alpha_3)}{(\alpha_1 - \alpha_3) (\alpha_2 - \alpha_3) (\alpha_4 - \alpha_3)}$$

$$D = \frac{(k_{31} - \alpha_4) (k_{41} - \alpha_4) (k_{51} - \alpha_4)}{(\alpha_1 - \alpha_4) (\alpha_2 - \alpha_4) (\alpha_3 - \alpha_4)}$$

而 α1, α2, α3 和 α, 为与转移系数有关的常数。

根据表 4 的数据,并利用初始条件 C_{1.0} = 822.4 计数 • min⁻¹/g 水 以及各分室质量数据(忽略试验过程中各分室质量的变化,因取样使质量减少,与动植物生长、繁殖增加相抵销),用最小二乘法经计算机拟合得各分室中¹⁴¹Ce 浓度随时间变化的数学模式分别为:

 $C_{1} = 822.4(0.046 e^{-0.115} + 0.085 e^{-2.105} - 2.84 e^{-3.650} + 3.70 e^{-4.550})$ $C_{2} = 6632.3(1 - 0.838 e^{-0.115} - 0.084 e^{-2.105} + 1.625 e^{-3.650} - 1.703 e^{-4.550})$ $C_{3} = 3607.9 e^{-0.115} - 8623.7 e^{-2.105} + 103484.2 e^{-3.650} - 98468.4 e^{-4.550})$

$$C_4 = 21495.5 e^{-0.1157} - 50855.2 e^{-2.1057} + 614456.2 e^{-3.6507} - 585096.5 e^{-4.5507}$$

 $C_{\rm s} = 2663.0 \, {\rm e}^{-0.115}$ · - 6724.1 ${\rm e}^{-2.105}$ · + 79024.8 ${\rm e}^{-3.650}$ · - 74963.6 ${\rm e}^{-4.550}$ ·) 其中各转移系数为 (d⁻¹):

 $k_{12} = 2.092, k_{13} = 0.107, k_{14} = 0.510, k_{15} = 0.068, k_{31} = 1.240, k_{41} = 1.230, k_{51} = 1.260.$

同样,由上述各数学模式即可计算出任一时刻系统各组分中""Ce的浓度,并可给出预测;理论值与实验值平均相对偏差在 30%以内,这主要是由于实验分析、测量过程中存在

一定的误差及在建模过程中略去了一些次要过程。

2.2.3 水生生物对"'Ce的浓集系数 CF

水生生物对¹¹¹Ce的富集能力可用浓集系数(或富集系数)CF来表示。它定义为水生系 统某一组分中放射性核素的浓度与同一时间、空间点上水中该核素的浓度之比。结果见表 7。

表 7	水生生物对;	"Ce 的 CF	值与时间关系
-----	--------	----------	--------

Table 7 The Values of CF of ¹⁴¹Ce by Aquatic Organisms as a Function of Time

时间/d	1/24	6/24	1	3	6	11	16	21	26	35
金鱼藥	39.4	116.0	521.2	405.5	589.7	957.2	989-8	158.7	273.0	1445.9
鱼	13.8	49.0	54.5	,	82.6	99.1	97.3	21.4	26.0	120.6
螺蛳	9.7	37.1	54.5		58.9	117.6	253.4	36.6	26.6	492.9

可见,任何时期金鱼藻的 CF 值皆远高于鱼和螺蛳,这显然与金鱼藻的羽毛状枝叶具有 巨大的比表面积有关。至于在 6 d 前,鱼的 CF 值大于螺蛳的 CF 值,但之后则相反;究其 原因,在前面有关¹⁴¹Ce 在它们体内消长特点的分析讨论中已作了介绍。

参考文献

- Palumbo R F. Factors controlling the distribution of the rare earths in the environment and in living organisms, in Radioecology, Schultz V, Klement A W Jr., Eds. Reinhold: New York, 1963. 533
- [2] Whicher F W, Walters R A, Dahl A H. Fallout radionuclides in Colorado deer liver. Nature (London), 1967, 214 (5087): 511
- [3] 邝炎华等.应用141Ce示踪研究水稻对铈的吸收和分配规律.环境科学,1981,2 (1):40~44
- [4] 陈瞬华编著.示踪技术在鱼类、水生生物科学中的应用.北京:原子能出版社,1991.54~62
- [5] 朱永懿, 裘同才, 裂变产物³⁰Sr, ¹³⁷Cs, ¹¹⁴Ce 在土壤-植物系统中的行为, 中国环境科学, 1991, 11 (4); 266~-269
- [6] 朱永懿, 裘同才, 春小皮和油菜经叶面吸收⁹⁰Sr、¹³⁷Cs、¹⁴⁴Ce的研究, 原子能农业应用, 1985, (2): 44~48
- [7] 冉勇,刘铮.土壤和氧化物对稀土元素的专性吸附及其机理.科学通报,1992,(18);1705~1709
- [8] 胡勤海,稀土元素的水生生态效应研究:〔学位论文〕,浙江农业大学,1993(待发表)
- [9] Greendale A E, Ballou N E. 1954. Physical state of fission product elements following their vaporization in distilled water and sea water, U. S. Naval Radiological Defense Lab. San Francisco, report USNRDL-436, 24 pp

(京) 新登字 077 号

图书在版编目(CIP)数据

中国核科技报告 CNIC01025 CSNAS0098. 放射性铈 在农业生态系中的行为 = THE BEHAVIOR OF RA-DIOACTIVE CERIUM IN AGRICULTURAL ECOSYS-TEM/钟伟良等著. 一北京:原子能出版社, 1995. 12

1. 中… Ⅰ. 钟… Ⅱ. 核技术-研究报告-中国 N. TL24

2

中国版本图书馆 CIP 数据核字 (95) 第 19730 号

C

原子能出版社出版发行

责任编辑: 孙凤春

社址:北京市海淀区阜成路 43 号 邮政编码: 100037

中国核科技报告编辑部排版

核科学技术情报研究所印刷

开本 787×1092 1/16・印张 1/2・字数 15 千字

1995年12月北京第一版·1995年12月北京第一次印刷

CHINA NUCLEAR SCIENCE & TECHNOLOGY REPORT

This report is subject to copyright. All rights are reserved. Submission of a report for publication implies the transfer of the exclusive publication right from the author(s) to the publisher. No part of this publication, except abstract, may be reproduced, stored in data banks or transmitted in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording or otherwise, without the prior written permission of the publisher, China Nuclear Information Centre, and/or Atomic Energy Press. Violations fall under the prosecution act of the Copyright Law of China. The China Nuclear Information Centre and Atomic Energy Press do not accept any responsibility for loss or damage arising from the use of information contained in any of its reports or in any communication about its test or investigations.

~~~~~~~~~~~~~~~