

核电厂周边土壤中放射性核素⁶⁰Co的淋溶迁移分布

张琼, 陈鲁, 王博, 叶远虑*

生态环境部核与辐射安全中心, 北京 100082

摘要 我国核电厂址目前主要以滨海厂址为主, 周边土壤多为棕壤土和风砂土, 关于核素¹³⁷Cs和⁸⁹Sr等核素在土壤中迁移分析较多, 关于⁶⁰Co在棕壤土和风砂土中的迁移报道较少。本研究采用原状土柱法及同位素示踪技术, 采集我国三代核电“国和一号”石岛湾示范厂址周边的原状土柱, 开展放射性核素⁶⁰Co在棕壤土和风砂土中的淋溶垂直迁移实验, 模拟核事故后放射性核素⁶⁰Co在2种土壤中的垂直迁移, 分析影响⁶⁰Co垂直迁移的相关因素, 预测核事故后⁶⁰Co对地下水的影响。实验结果表明, 随着淋溶实验的增加, 风砂土中⁶⁰Co迁移量比棕壤土中的大, 但随着喷淋实验的进行差异渐趋减小; 由于土壤对⁶⁰Co的极强吸附, 导致淋溶水检测不到⁶⁰Co; 经过为期3年的原状土柱实验, 72.36%~85.26%的⁶⁰Co主要滞留于土壤表层0~5 cm范围内, 因此⁶⁰Co短期内很难迁移到地下水中。土壤中⁶⁰Co比活度与距离土壤表层深度分布呈单项指数规律。

关键词 放射性核素⁶⁰Co; 棕壤土; 风砂土; 土柱淋溶实验; 迁移与分布

核电的快速发展和装机容量的速增, 导致核事故后放射性物质外泄的风险概率也在增加。放射性核素Co是压水堆核电站冷却剂中的主要活化产物, 通过气液态途径进入环境, 主要有⁵⁸Co和⁶⁰Co, 其中⁶⁰Co因其半衰期较长(5.27 a)、毒性大、伽马射线能量高(平均1.25 Mev), 易经过食物链进入人

体, 从而在一定部位积累, 对人体造成放射性辐射, 导致畸形和癌变, 对人类的健康造成严重威胁^[1-2]。因此, ⁶⁰Co成为土壤环境中的危险放射性物质之一, 对放射性⁶⁰Co在核电厂周边土壤中的垂直迁移进行深入研究具有重要意义。

在我国内陆厂址尚未开放的前提下, 滨海厂址

收稿日期: 2021-12-10; 修回日期: 2022-03-30

基金项目: 大型先进压水堆及高温气冷堆核电站国家科技重大专项(2013ZX06002001)

作者简介: 张琼, 正高级工程师, 研究方向为辐射防护与环境保护, 电子信箱: zhangqiong@chinansc.cn; 叶远虑(通信作者), 高级工程师, 研究方向为辐射防护与环境保护, 电子信箱: yeyuanlv@chinansc.cn

引用格式: 张琼, 陈鲁, 王博, 等. 核电厂周边土壤中放射性核素⁶⁰Co的淋溶迁移分布[J]. 科技导报, 2022, 40(19): 106-116; doi:10.3981/j.issn.1000-7857.2022.19.011

作为唯一的选择,周边土壤类型,如山东半岛、辽东半岛,南部黄棕壤区等都是以棕壤土为主(如红沿河核电厂、山东海阳核电厂以及田湾核电厂等);东北、内蒙古及沿海地区土壤类型为含沙量高的风砂土为主(如山东石岛湾核电厂、防城港核电厂等)。有关放射性核素如 ^{137}Cs 、 ^{89}Sr 等在土壤中的扩散特性前人已有较多研究,主要以定性和静态描述为主,对于原状土(棕壤土和风砂土)、模拟实际降雨和日照的动态描述较少^[3-6],且缺乏核素在土壤剖面的详细分布特征分析。

关于核电厂事故后放射性核素在土壤中的迁移,如1986年切尔诺贝利事故和2011年福岛第一核电厂核事故后,相关国家在核事故影响区域进行了放射性核素在土壤中的迁移调查研究^[7-10],结果发现,切尔诺贝利核事故发生10年后,在周边表层土壤中发现 ^{137}Cs 比活度为 $4.98 \text{ E5 Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、 ^{60}Co 的比活度为 $5.9 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$;14年后,厂址周边草地土壤中 ^{137}Cs 主要分布在表层0~4 cm,核事故发生20年后, ^{137}Cs 在当地土壤迁移深度达到25.5 cm,在一些位置甚至达到60 cm,但大部分核素仍然滞留在土壤表层(0~5 cm)。福岛第一核电厂事故后一个月,超过70%的核素集中在土壤最上层2 cm;2年后, ^{137}Cs 主要分布在0~5 cm土壤。中国辐射防护研究院与日本原子力研究所合作,在黄土高原实验场进行了大量实验,发现实验场址的黄土层对所选示踪核素具有强烈的吸附滞留作用^[11-13]。

本研究在调研核电厂址分布及土壤类型的基础上,选取我国三代核电“国和一号”石岛湾示范厂址(棕壤土和风砂土),选取 ^{131}I 、 ^{137}Cs 和 ^{60}Co 等多种示踪核素,采取原状土,采用人工铺设放射源、参考当地的降雨量和日照时长^[14],模拟放射性核素在棕壤土和风砂土中垂直迁移情况。本文主要分析 ^{60}Co 在2种土壤中垂直迁移的浓度、深度及影响因素,模拟预测其对地下水的影响; ^{131}I 和 ^{137}Cs 在2种土壤中垂直迁移及对地下水的影响见后续文章。选择 ^{60}Co 作为示踪核素开展实验,是因为其具有适当的半衰期,既能满足实验结束后在不太长时间内衰变为非放废物,以便于处理和确保环境安全;又具有一定能力的 γ 射线,便于直接测量。结合我国

核电厂址以棕壤土与风砂土为主,缺少 ^{60}Co 在期内垂直迁移的相关参数及规律,因此选择 ^{60}Co 作为示踪核素开展实验。

1 放射性核素在土壤中迁移模型

放射性核素在表层包气带土壤中的迁移,取决于多种因素,例如土壤水分的渗透、蒸发、温度梯度导致的热湿迁移,放射性核素浓度差异导致的扩散、离子的吸附与解析,以及动植物的活动和农事操作等,这些因素对迁移的影响有时是相互制约和矛盾的。核素在包气带中的迁移是土壤水运动和核素间各种物理化学作用的结果,由于大气降水是通过包气带土层垂直下渗进入地下含水层,故可用一维对流弥散方程描述核素迁移规律^[15-16],方程如下:

$$R_d \frac{\partial C}{\partial t} = D_z \frac{\partial^2 C}{\partial Z^2} - v_w \frac{\partial C}{\partial Z} - \lambda C$$

式中: C 为液相中核素浓度, $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$; t 为时间, s ; Z 为垂直距离, m ; D_z 为弥散系数 $\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$; v_w 为水流速率, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$; λ 为核素衰变常数; R_d 为延迟系数,通过动态法和静态法获得。

2 材料与方法

2.1 实验材料

2.1.1 供试 ^{60}Co

^{60}Co ($^{60}\text{CoCl}_2$)放射性核素示踪液由原子高科股份有限公司生产并铺放,每个柱子初始投放量为 $1.74\times 10^3 \text{ Bq}$,将示踪核素一次性投放到土壤表面。

2.1.2 供试土壤

利用土地利用类型和数值高程等信息,结合Google earth和ArcGIS绘制研究区域土地利用类型和地形图,以国和一号石岛湾示范厂址为中心、选择代表性时空分布点进行采样分析,最终选定采样地点大疃李家村($37^\circ 14' 02''$ 、 $122^\circ 31' 14''$),土壤类型为棕壤土,距离核电厂29 km;后海崖村($36^\circ 55' 50''$ 、 $122^\circ 18' 58''$),土壤类型为风砂土,距离核电厂5 km,具体采样地点及采样过程如图1所示。

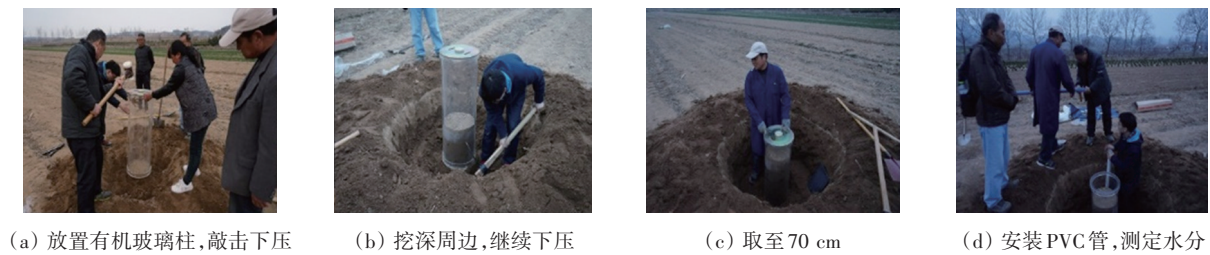
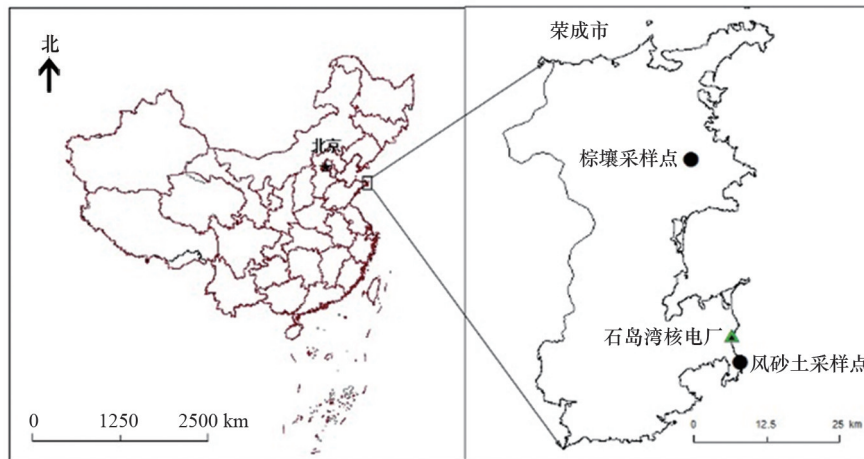


图1 棕壤土与风砂土采样地点及采样过程

2.1.3 实验装置

有机玻璃柱完成原状土的采集后运回实验室, 建立原状土核素迁移土柱淋溶装置, 如图2所示。上部为移动喷淋装置; 有机玻璃柱内原状土高度 70 cm; 土柱底部支架高度 30 cm, 底部安放土壤流

出液收集装置。有机玻璃柱底部铺放 10 cm 石英砂, 示踪层表层覆盖粒径 2 mm、厚度 1 cm 的石英砂, 目的是使喷淋水能均匀下渗。玻璃柱采用黑色塑料袋进行遮光处理, 降雨及日照参考当地自然条件。

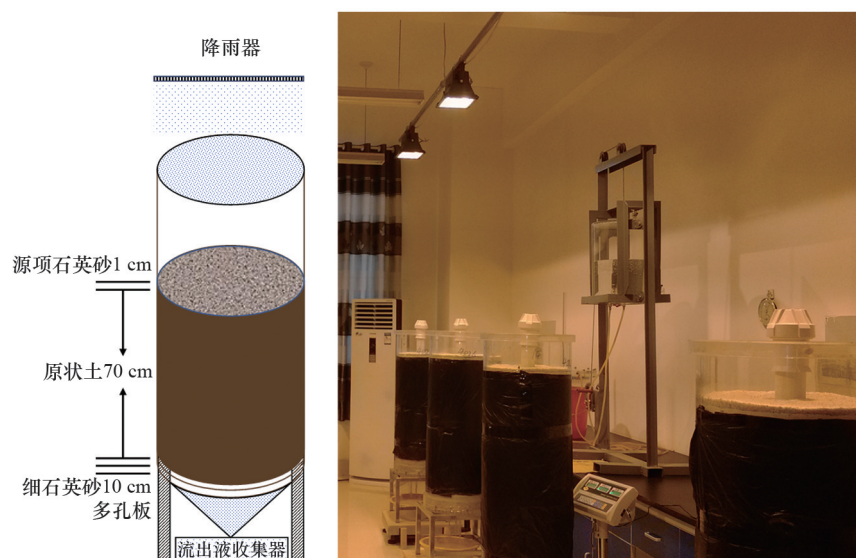


图2 原状土柱淋溶实验装置

2.2 实验方法

2.2.1 原状土采集

原状土的采集采用有机玻璃柱进行,通过当地土层厚度调查,确定原状土采样深度为70 cm。土柱中间埋设PVC管,用来监测土壤含水量。每种土壤类型采集8个原状土柱。在采集土柱的同时用根钻采集背景土壤,用于土壤核素背景值和理化性质分析。背景土壤采样位置靠近土柱采样位置,每种土壤类型取3钻,深度同样为70 cm,深度间隔10 cm。为了减少空间变异性带来的误差,同一土壤的原状土柱和背景值采样位置相近,远离道路和村庄。

2.2.2 淋溶实验

根据当地的气象资料,选用最大年份降雨方案(1800 mL)及日照时长(7 h)。该实验在室内进行,实验室内保持室温20°C左右。土壤淋溶实验开始时间为2015年2月,结束时间为2018年2月。每隔半年采样1次(175 d, 355 d, 577 d和800 d),每次采样每种土壤类型均为2个土壤剖面。样品运回实验室后风干、过2 mm筛,最后测定样品中的核素活度。由于石英砂粒径均小于2 mm,石英砂样品风干后可直接进行核素测定。本实验土壤采集完成后在中国农业科学研究院新乡实验室完成土柱实验。

2.3 实验仪器及测量方法

2.3.1 土壤理化性质测定

土壤颗粒组成:土壤风干过筛,经双氧水及盐酸预处理后,用偏磷酸钠作为分散剂分散样品,利用激光粒度仪(Microtrac, S3500, USA)测定样品的粘粒体积百分比,并转化为质量百分比,判定土壤的颗粒组成^[17-19]。

土壤pH值和电导率EC:称取10 g 20目土样放入50 mL烧杯,加入25 mL蒸馏水(蒸馏水预先煮沸(去CO₂),冷却过程中盖住烧杯,防止气体进入),搅拌30 s后静置半小时。用pH标准缓冲液标定pH=7.0和pH=10.0两个值校准pH电极,然后测定土水溶液的pH值;用EC计测量土壤的电导率。

土壤有机质:采用高锰酸钾容量法(外加热法),测定土壤中的有机质(SOC)。

分配系数 K_d :采用静态批式法实验,计算方程

如下:

$$K_d = \frac{Y}{W} \left(\frac{B}{E} - 1 \right) - \frac{X}{W}$$

式中, K_d 为分配系数($\text{mL} \cdot \text{g}^{-1}$); Y 为示踪地下水体积(ml); W 为固体样品重量(g); B 为原始溶液活度浓度($\text{Bq} \cdot \text{mL}^{-1}$); E 为样品管中上清液活度浓度($\text{Bq} \cdot \text{mL}^{-1}$); X 为冷洗残留在固相中的溶液体积(ml)。

2.3.2 土壤水分监测

每个原状土柱中间埋设70 cm的PVC管,用于检测土壤剖面含水量。测量时将Diviner 2000便携式土壤水分廓线仪(简称Diviner 2000)插入PVC管中,静止10 s后慢慢拔出获取读数。Diviner 2000由探测器、连接电缆和显示器组成,通过显示器和应用软件可以对探头进行使用前标定、采集数据、存储数据、分析数据,采用Diviner 2000检测土壤含水量。

2.3.3 刮板采样及浓度分析

为准确示踪核素迁移特征,刮板采样可以减少交叉污染,研究发明了一种特殊的刮板装置^[20],一个金属圆框主体和可调节高度的刮板,采样面积为706 cm²(半径15 cm)。土壤剖面样品采集方式:表层土0~20 cm以2 mm为间隔,20~50 cm以5 cm为间隔。

样品核素的测定在中国农科院分析实验室(CAAS-ALMERA)(中国北京)完成。采用无源效率刻度GAMMA能谱仪,其测量误差(不确定度/活度 $\times 100$)在10%范围以内。仪器由美国CANBERRA公司生产的,探测器型号BE5030型,探测相对效率为50.9%,晶体尺寸为 $\Phi 80 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$,可测量 γ 射线能量范围为3 keV~3 MeV;系统使用Canberra 747E铅室,壁厚为10 cm;使用DSA 1000数字化谱仪;Genie 2000谱分析软件分析谱数据。

3 结果与讨论

3.1 土壤理化性质

棕壤土和风砂土的样品经风干、过筛,测试所得的理化参数具体如表1所示。2种土壤主要以粉粒为主。砂粒和粉粒的矿物组成主要为石英、斜长

石、钾长石、方解石、白云石,可溶矿物主要石盐等;黏粒主要矿物为黏土矿物。风砂土一般由石英、斜长石和钾长石等矿物组成,含量约为58%、11.33%、9.33%;黏土矿物组成主要为伊利石、绿泥石、高岭石平均含量分别为22%、4%、4.33%^[21]。棕壤土的石英、斜长石和钾长石平均含量分别为56.38%、

17.25%、6.38%;粘土矿物组成主要伊利石、绿泥石、高岭石平均含量分别为23.13%、4.5%、4%^[22]。对样品进行了本底浓度的测量,⁶⁰Co本底浓度为零。由表1可知,对于土壤表层0~10 cm风砂土的容重、砂粒含量大于棕壤土,风砂土的有机质含量和EC值比棕壤土小,pH值比棕壤土大。

表1 土壤理化性质一览表

土壤类型	深度/ cm	容重/ (g·cm ⁻³)	颗粒组成/%			SOC(有机质)/ g·kg ⁻¹	pH值	EC/ μs·cm ⁻¹	分配系数 K _d /ml·g ⁻¹
			砂粒	粉粒	黏粒				
棕壤土	0~10	1.45	14.36	82.85	2.79	20.87	4.9	109.11	950
	>10~20	1.50	14.53	83.42	2.05	17.58	4.94	103.66	1079
	>20~30	1.56	14.16	83.78	2.06	12.89	5.0	87.12	904
	>30~40	1.67	14.24	81.17	4.59	11.31	5.26	83.88	579
	>40~50	1.62	11.16	85.72	3.12	9.38	5.64	84.54	387
	>50~60	1.62	13.09	84.64	2.27	7.58	6.15	61.79	260
	>60~70	1.68	15.96	81.45	2.59	6.73	6.49	61.05	223
风砂土	0~10	1.47	14.88	81.81	3.31	19.02	5.88	75.43	1058
	>10~20	1.48	15.51	80.88	3.61	18.64	6.06	68.96	280
	>20~30	1.59	13.84	83.84	2.32	13.61	6.84	52.89	229
	>30~40	1.57	21.33	75.46	3.22	11.57	7.14	61.47	578
	>40~50	1.59	18.97	75.68	5.36	8.18	7.29	57.55	508
	>50~60	1.64	18.80	78.14	3.06	6.94	7.46	56.11	720
	>60~70	1.77	18.52	70.92	10.56	0.51	7.54	65.95	1027

3.2 土壤剖面水分日变化

实验为期3年,实验持续时间进行淋溶及土壤水分检测,3年水分变化类似,选取实验年份2016年数据为例进行展示,棕壤土和风砂土含水量如图3所示,结果表明棕壤土含水量在20%~31%之间变化,随着土壤深度的增加,土壤含水量逐渐增大,55 cm深度土壤含水量超过30%。风砂土含水量变化与棕壤土稍有不同,在24%~30%之间变化,表层(0~10 cm)含水量比棕壤土高5%左右,风砂土0~30 cm之间变化范围较小,这是由于表层是耕作层,颗粒组成等性质基本相同,土壤孔隙度基本一致,导致含水量差异较小。

3.3 ⁶⁰Co在土壤中动态分布特性

随着原状土柱喷淋实验的进行,⁶⁰Co在棕壤土和风砂土中动态分布如图4所示。土壤表层0~10 mm,棕壤和风砂土中核素浓度均大于100 Bq·kg⁻¹,

土壤表层浓度最高,随着时间的推移,浓度逐渐减小。由于⁶⁰Co系一次性引入,随着喷淋实验的持续,表层土壤中⁶⁰Co的量逐渐减小。随着喷淋水总量的增加,被喷淋下的⁶⁰Co总量变化不明显,表明⁶⁰Co一旦被土壤吸附,则不易被解析。当实验进行355 d后,⁶⁰Co的浓度峰开始向下移动;实验进行577 d后,可明显观察到主峰向下迁移;实验进行800 d后,⁶⁰Co浓度峰迁移到1~1.4 cm,2种土壤中⁶⁰Co的迁移速率约为0.27 cm·a⁻¹。棕壤土和风砂土表层0~2 mm中⁶⁰Co比第175天分别减少了56%和50%。2种土壤中⁶⁰Co的迁移深度显示,实验进行800 d后,土壤中⁶⁰Co的迁移深度达到25 cm。在实验进行前577 d,棕壤土中⁶⁰Co的迁移深度均小于风砂土,在第800天2种土壤中⁶⁰Co的迁移深度基本相同。

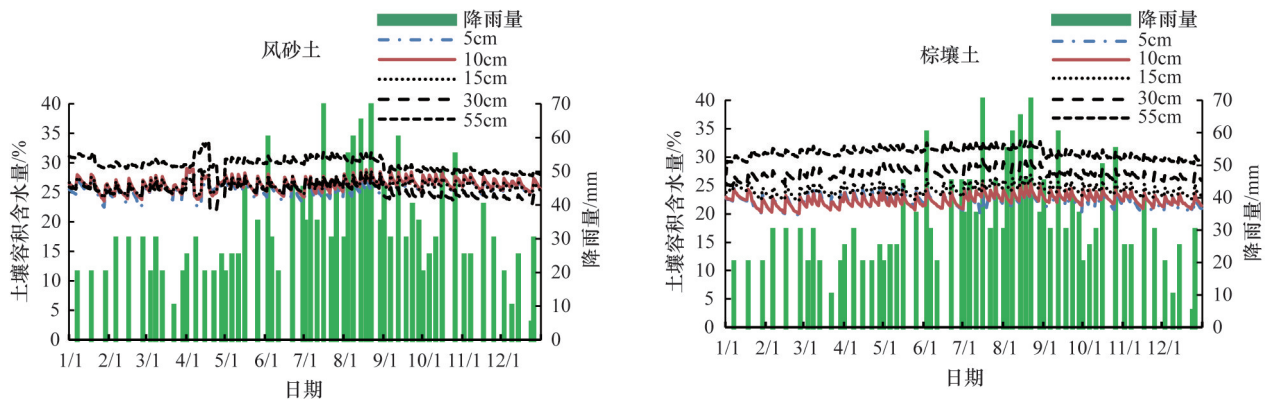
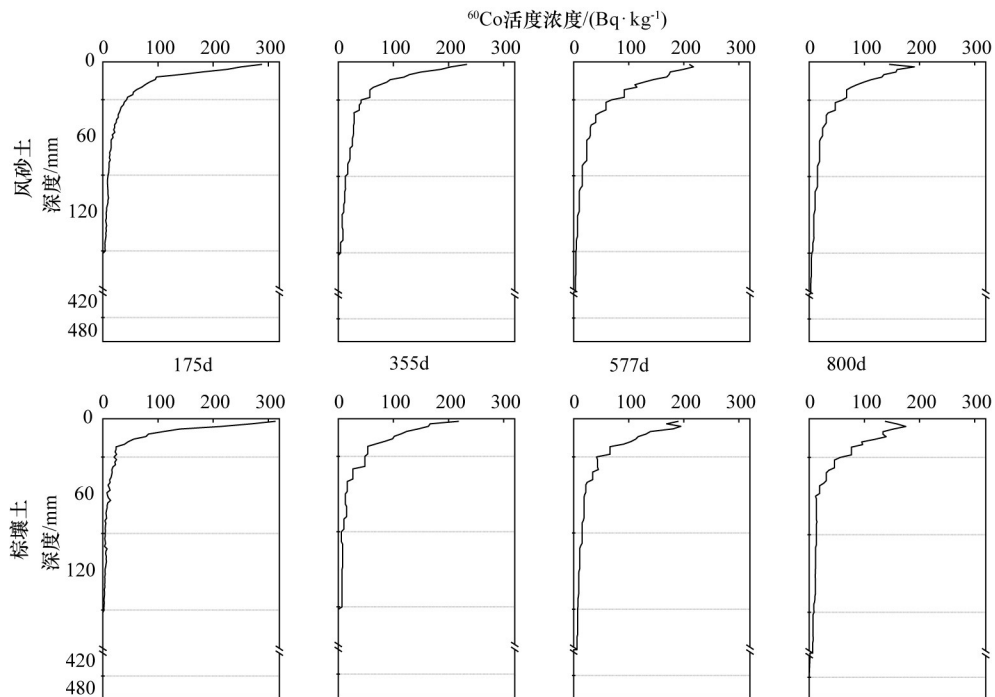


图3 棕壤土和风砂土剖面含水量和降雨量日变化

图4 不同时间棕壤土和风砂土剖面⁶⁰Co活度浓度变化

3.4 ⁶⁰Co在土壤中含量及垂直分布

由表2可知,由于土壤对⁶⁰Co极强的吸附性,致使⁶⁰Co在2种土壤中的分布不均匀,绝大部分滞留于表层土壤中,棕壤土和风砂土分别有74.69%~85.26%和72.32%~80.09%的⁶⁰Co滞留于0~5 cm土层范围内。表明棕壤土对⁶⁰Co的吸附能力略强于风砂土,因而风砂土中的⁶⁰Co向深层迁移稍多,滞留于表层中的量相对较少。实验在进行800 d后,仅有极少量(<1%)的进入到20~30 cm范围内。且当土壤深度超过5 cm,土壤不同深度之间⁶⁰Co活度差异减小。

放射性核素在土壤中迁移过程是水动力与阻止核素迁移2个对立因素共同作用的结果,主要推动力是作为核素溶剂的土壤水的流动和核素浓度梯度引起的扩散;阻滞核素迁移的制约因素主要是土壤对核素的吸附。⁶⁰Co在非饱和土壤中的迁移行为,很大程度上由土壤水分状况决定。在喷淋情况下,总的水流方向向下,于是⁶⁰Co在原状土中迁移视为由上向下流动的水流引起⁶⁰Co向下迁移和⁶⁰Co在土壤中因浓度不均匀引起的向下扩散所致。由表2可知,经淋溶后,⁶⁰Co随水流向下层迁移,但它们在土层内的浓度分布并不均匀,绝大部

表2 ^{60}Co 在棕壤土和风砂土中垂直分布

H/cm	棕壤土/%				风砂土/%			
	175 d	355 d	577 d	800 d	175 d	355 d	577 d	800 d
5	85.26	79.38	74.69	76.18	80.09	72.32	76.85	73.91
10	9.43	12.74	16.39	13.3	13.38	19.55	16.95	17.5
15	5.32	7.87	8.75	10.03	6.53	8.13	6.12	8.38
20	—	—	0.17	0.2	—	—	0.08	0.09
25	—	—	—	0.18	—	—	—	0.07
30	—	—	—	0.1	—	—	—	0.06

注:—表示未检测到核素。

分滞留于表层土中。实验 800 d 后,超过 76% 和 73% 的 ^{60}Co 滞留于棕壤和风砂表层土 0~5 cm 中,表明棕壤土对 ^{60}Co 的吸附能力略强于风砂土,因而风砂土中的 ^{60}Co 向下层迁移稍多,滞留于表层中的量相对较少。此外,在为期 3 年的实验期间,土壤中的 ^{60}Co 迁移深度也非常有限(25 cm),喷淋水中始终没有检测到 ^{60}Co 核素,表明棕壤土和风砂土对 ^{60}Co 的吸附能力较强。在本实验条件下, ^{60}Co 在土柱中的迁移是土壤水分(渗透流、毛细管流和热湿迁移流)的移动和离子的扩散共同作用的结果; ^{60}Co 的有效迁移率由土壤的吸附能力,被吸附的固着程度,以及自由离子的迁移率所决定^[23-26]。

由于棕壤土和风砂土对 ^{60}Co 的吸附能力较强,势必降低 ^{60}Co 在土壤中的迁移率和淋溶水中的含

量,加快 ^{60}Co 沿土壤深度的变化,对比表 2 的实验数据进行指数回归分析,结果如表 3、表 4 和图 5 所示。回归曲线分为 3 个区段模拟,第一区段为 0~2 cm 土层,在此区段土壤中的放射性核素比活度呈快速下降趋势,且浓度峰发生迁移;第二区段为 > 2~10 cm 土层,在此区段土壤中的放射性比活度下降趋势较为平缓;第三区段为 >10~30 cm 土层,在此区段土壤中的放射性核素比活度下降趋势非常缓慢。衰变速率常数的大小也反应出下降速度的快慢。由衰变常数变化规律可知,同一土层(如 0~2 cm)随着时间的增加,迁移的核素量逐渐减小,且实验初期减小较快,随着时间推移,减小速率变缓;对于同一柱子(如棕壤土 175 d),随着土层深度增加,迁移核素量减小。

表3 ^{60}Co 活度浓度在棕壤土中垂直分布的回归方程

时间/d	土壤层(0~2 cm)		土壤层(>2~10 cm)		土壤层(>10~30 cm)	
	回归方程	R^2	回归方程	R^2	回归方程	R^2
175	$y=400.11e^{-0.121x}$	0.9875	$y=51.759e^{-0.028x}$	0.9395	$y=53.875e^{-0.021x}$	0.7171
355	$y=228.17e^{-0.057x}$	0.9779	$y=105.96e^{-0.029x}$	0.9132	$y=55.157e^{-0.027x}$	0.7631
577	$y=221.45e^{-0.043x}$	0.9179	$y=89.15e^{-0.021x}$	0.8865	$y=26.552e^{-0.008x}$	0.9460
800	$y=178.16e^{-0.027x}$	0.6884	$y=104.49e^{-0.026x}$	0.8264	$y=28.933e^{-0.008x}$	0.9425

表4 ^{60}Co 活度浓度在风砂土中垂直分布的回归方程

时间/d	土壤层(0~2 cm)		土壤层(>2~10 cm)		土壤层(>10~30 cm)	
	回归方程	R^2	回归方程	R^2	回归方程	R^2
175	$y=370.95e^{-0.085x}$	0.9614	$y=73.133e^{-0.027x}$	0.9375	$y=62.833e^{-0.016x}$	0.9261
355	$y=289.27e^{-0.072x}$	0.9949	$y=82.487e^{-0.019x}$	0.9463	$y=65.696e^{-0.017x}$	0.8844
577	$y=246.26e^{-0.039x}$	0.9463	$y=138.75e^{-0.025x}$	0.9415	$y=47.347e^{-0.015x}$	0.9175
800	$y=208.07e^{-0.045x}$	0.8572	$y=95.083e^{-0.021x}$	0.9121	$y=64.416e^{-0.017x}$	0.9276

放射性核素在土壤中的迁移过程非常复杂,相关模型较多,如指数模型、对数模型、正太分布模型等,图6为对数拟合曲线。由图6可知,不论是棕壤土还是风砂土,对数回归方程的拟合系数 R^2 为91%左右。比较图5和图6可知,不论是棕壤土还

是风砂土中 ^{60}Co 的迁移,2种方法的拟合度都比较好,但指数回归方程中拟合系数 R^2 较对数回归方程更大,说明指数回归方程较对数回归方程更符合 ^{60}Co 在棕壤土和风砂土中的迁移,回归分析发现,滞留于表层土壤中的 ^{60}Co 按单指数规律衰减。

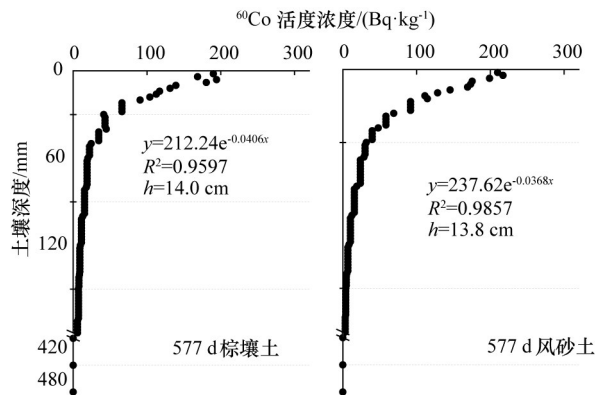


图5 棕壤土和风砂土 ^{60}Co 活度浓度随土壤深度的指数拟合曲线

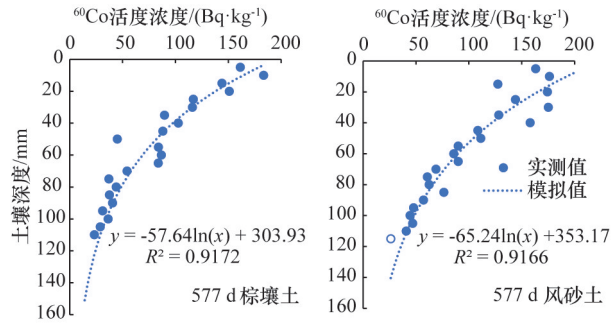


图6 棕壤土和风砂土 ^{60}Co 活度浓度随土壤深度的对数拟合曲线

3.5 影响 ^{60}Co 在土壤中迁移的因素

随着淋溶实验时间的增加,风砂土中 ^{60}Co 迁移量比棕壤土中的大,说明 ^{60}Co 的迁移与土壤的砂粒含量、pH值、有机质、阳离子交换量及土壤中电荷等因素有关。 ^{60}Co (II形式)可通过离子交换、表面配合、静电吸附和表面沉淀等方式吸附在黏土矿物

表面^[27-28]。在实验pH值范围内主要方式为表面配合和静电吸附,pH值增大,吸附量就增强,具体如图7所示。风砂土的pH值整体较棕壤土大,吸附 ^{60}Co 量也较棕壤土大。SOC含有大量功能团,如腐殖酸,具有很强的Co离子络合能力,富含有机质土壤具有较强吸附。在低pH值条件下,腐殖酸对

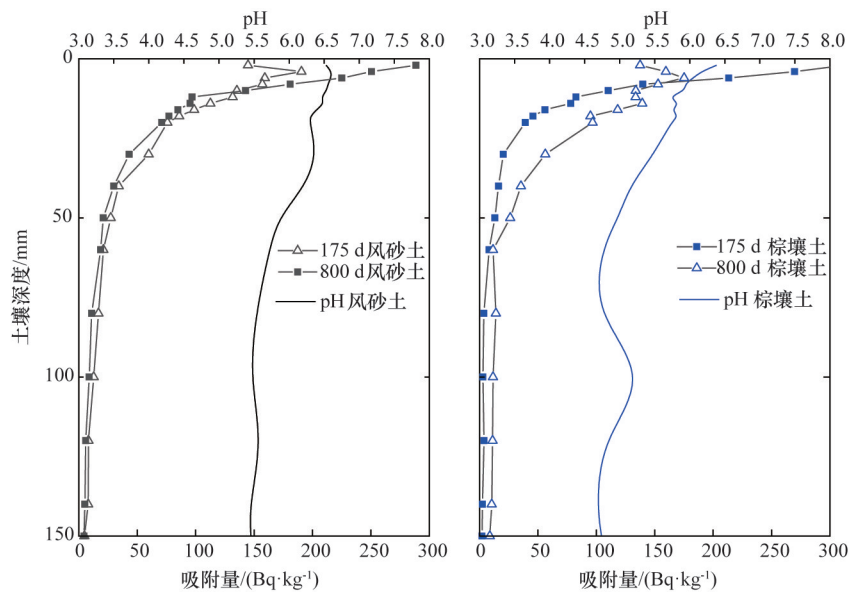


图7 pH值对 ^{60}Co 在棕壤土和风砂土中的吸附影响

Co(II)在黏土矿物的吸附有明显的增强作用;在高pH值条件下,腐殖酸的存在对Co(II)在黏土矿物上的吸附具有很强的抑制作用^[29]。在腐殖酸的大分子结构中,有大量的羧基、羟基等含氧功能基团,所以腐殖酸十分容易与Co(II)离子形成配合物。在低pH值的条件下,腐殖酸带负电荷,容易吸附在黏土矿物表面,在实验pH范围内,腐殖酸等有机质吸附在矿物表面后形成新的表面配合物从而很好地促进了Co(II)吸附^[30],具体如图8所示。棕壤土SOC含量大于风砂土,在土壤表层吸附了大量的

Co(II),导致其向下迁移的深度和量较少。可见,土壤含水量、pH值、土壤电荷、SOC含量、土壤颗粒表面积以及 K_d 等多因素综合作用的结果决定了土壤对⁶⁰Co的吸附能力强弱。棕壤土属于黏性土壤,具有较高的EC和土壤颗粒表面积,因而土壤电荷也较风砂土电荷高,加上较大的SOC,决定了他们对⁶⁰Co有较强的吸附能力;而风砂土的吸附能力相对较弱。随着淋溶时间的延长,⁶⁰Co在土壤中的垂直分布变化不明显(土层深度大于10 cm),表明⁶⁰Co一旦被土壤吸附,则不容易被解析。

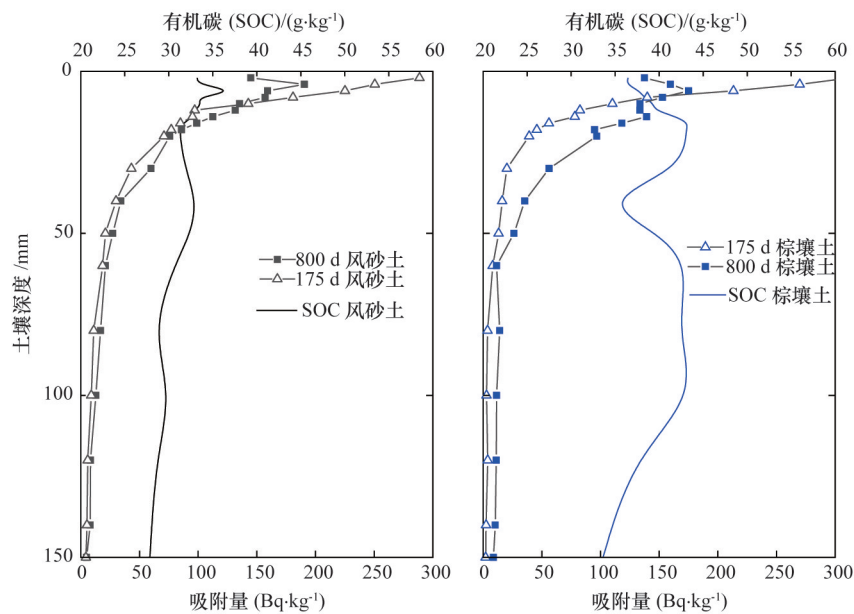


图8 SOC对⁶⁰Co在棕壤土和风砂土的吸附影响

3.6 ⁶⁰Co迁移对地下水的影响

本实验在2018年2月1日进行了第五次采样(实验第1096天),此次采样仅有1个原状土柱,土壤类型为风砂土。土壤剖面放射性核素结果显示,表层0~2 mm土壤中⁶⁰Co比活度为137 Bq·kg⁻¹,比第800天土壤表层核素活度浓度下降超过20%。⁶⁰Co在土壤中的迁移深度均小于30 cm,且在此深度核素含量偏低。因此,尽管实验长达3年,但是放射性核素还是主要分布在表层0~5 cm。由于土壤黏粒矿物对放射性核素的强烈吸附,核素迁移速率随着时间增加而减小。根据溶质对流弥散方程计算的核素迁移速率,研究区域土壤中放射性核素

迁移速率0.18~0.27 cm·a⁻¹,研究区域地下水位平均深度约10 m,由于地表土壤对⁶⁰Co有较强的吸附作用,沉积到地面的核素被土壤吸附,在降雨的作用下,向下迁移的距离很小(迁移距离小于人为活动和自然变化的幅度),短期内很难迁移到地下水中,不会进入地下水对地下水造成影响。由于地表土壤侵蚀,吸附了核素的土壤由于侵蚀搬运作用下向低洼地带运移,有部分核素会随土壤颗粒经多次搬运进入地表水体,但量很小。因此,核事故散落的⁶⁰Co主要集中在土壤表层,土壤的修复及治理应主要针对表层部分。

4 结论

放射性核素⁶⁰Co在棕壤土和风砂土中垂直迁移为一维对流弥散方程,棕壤土和风砂土对⁶⁰Co有较强的吸附能力,原状土柱中下半部分和淋溶水中均没有检测到放射性⁶⁰Co。

通过喷淋进入包气带的放射性核素⁶⁰Co,在不考虑土壤大孔隙和土壤翻耕下,放射性核素在土壤中的迁移一般在表层0~5 cm。棕壤土的吸附能力大于风砂土,175 d后大约85%的⁶⁰Co集中在表层0~5 cm,800 d后大约76%的⁶⁰Co集中在表层0~5 cm;对于风砂土,175 d后大约80%,800 d后大约73%的⁶⁰Co集中在表层0~5 cm。回归分析发现,滞留于表层土壤中的⁶⁰Co按单指数规律衰减。随着土柱淋溶实验时间的推移,放射性核素⁶⁰Co在棕壤土和风砂土中迁移的深度增加,但呈现先急剧减小,后逐渐放缓的趋势。核事故发生后,散落⁶⁰Co主要集中在土壤表层,对地下水影响较小,土壤的修复及治理应针对表层部分。

致谢:实验过程中得到中国农业科学院农业环境与可持续发展研究所李勇研究员、龚道枝研究员、刘文祥博士、于寒青博士等的大力支持。

参考文献(References)

- [1] Shinonaga T, Schimmack W, Gerzabek M H. Vertical migration of ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs and ²²⁶Ra in agricultural soils as observed in lysimeters under crop rotation[J]. Environ. Radioact., 2005, 79: 93-106.
- [2] 邵敏, 蔡志强, 赵希岳, 等. 放射性核素⁶⁰Co在土壤中的中吸附和解吸的动力学研究[J]. 江苏工业学院学报, 2006, 18(3): 11-15.
- [3] 刘媛媛, 魏强林, 高柏, 等. 放射性核素在不同介质中的迁移规律研究现状及进展[J]. 有色金属(冶炼部分) 2018, (6): 76-82.
- [4] 马腾, 王焰新. 放射性核素在地下介质中迁移机理与模型研究[J]. 地质科学情报, 2000, 19(2): 78.
- [5] 赵希岳, 樊国华, 蔡志强, 等. 放射性核素⁶⁰Co在土壤中的淋溶和迁移分布[J]. 中国环境科学, 2010, 30(8): 1118-1222.
- [6] 曾文淇. 铀尾矿中放射性核素的迁移研究[J]. 江西化工, 2017(6): 42-45.
- [7] Kagan M. L, Kadatsky B. V. Depth migration of Chernobyl originated Cs and Sr in soil of Belarus[J]. Environ. Radioact, 1996, 33(1): 27-19.
- [8] Bondarkov M D, Zheltonozhsky V A, Zheltonozhskaya M V, et al. Vertical migration of radionuclides in the vicinity of the Chernobyl Confinement Shelter[J]. Health Phys, 2011, 101: 362-367.
- [9] Koarashi J, Atarashi-Andoh M, Matsunaga T, et al. Factors affecting vertical distribution of Fukushima accident-derived radiocesium in soil under different land-use conditions[J]. SciTotal Environ, 2012(431): 392-401.
- [10] Konoplev A, Golosov V, Wakiyama Y, et al. Natural attenuation of Fukushima-derived radiocesium in soils due to its vertical and lateral migration[J]. Environ Radioact, 2018(186): 23-33.
- [11] 李书绅, 王志明, 郭择德, 等. 核素在非饱和黄土中迁移研究[M]. 北京: 原子能出版社, 2003.
- [12] 郭择德, 王志明, 李书绅, 等. 黄土包气带中放射性核素迁移的现场试验[J]. 辐射防护, 2000, 20(1): 21-31.
- [13] 王志明, 安永峰. ⁸⁵Sr在非饱和黄土中的迁移特征[J]. 原子能科学技术, 2004, 38(1): 29-34.
- [14] 上海核工程研究设计院. 国核压水堆示范工程大型先进压水堆CAP1400环境影响报告书(选址阶段)[R]. 上海: 上海核工程研究设计院, 2013.
- [15] Arapis G, Petrayev E, Shagalova E, et al. Effective migration velocity of ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr as a function of the type of soils in Belarus [J]. Environ. Radioact, 1997, 34: 171-185.
- [16] Jagercikova M, Cornu S, Le Bas C, et al. Vertical distributions of ¹³⁷Cs in soils: A meta-analysis [J]. Journal of Soils and Sediments, 2015, 15(1): 81-95.
- [17] 范拴喜. 土壤重金属污染与控制[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2011.
- [18] Dane H J, Topp G C, Methods of soil analysis: Part 4 physical methods[M]. Madison, Wisconsin (USA): Soil Science Society of America, Inc., 2002.
- [19] Chappell A. Dispersing sandy soil for the measurement of particle size distributions using optical laser diffraction[J]. Catena, 1998, 31: 271-281.
- [20] 于寒青, 李勇, 张琼, 等. 土壤分层采样装置: ZL 201621345491.4[P]. 2016.
- [21] 陈文静. 河北平原土壤矿物学特征及环境意义[D]. 石家庄: 河北地质大学, 2018.

- [22] 叶正丰, 张俊民, 过兴度. 山东省棕壤和褐土的粘土矿物[J]. 山东大学学报(自然科学版), 1986(3): 118-126.
- [23] 李书绅, 王志明, 王金生, 等. ^{60}Co , ^{85}Sr , ^{134}Cs 在非饱和黄土中迁移特征研究[J]. 环境科学学报, 2002, 22(5): 614-619.
- [24] 徐建华, 赵昱龙, 杜良, 等. 典型放射性核素在某极低放填埋场特定场址的迁移预测[J]. 核化学与放射化学, 2015, 37(2): 105-109.
- [25] Bossew P, Kirchner G. Modelling the vertical distribution of radionuclides in soil. Part 1: The convection-dispersion equation revisited[J]. Environ. Radioact, 2004, 73(2): 127-150.
- [26] Konoplev A, Golosov V, Wakiyama Y, et al. Natural attenuation of Fukushima-derived radiocesium in soils due to its vertical and lateral migration[J]. Environ. Radioact, 2017: 1-11.
- [27] 梁洪祥, 姚献东. 环境因素对蛭石吸附重金属钴离子的影响及机理[J]. 化学试剂, 2013, 35(6): 551-554.
- [28] Xu D, Shao D, Chen C, et al. Effect of PH and fulvic acid on sorption and complexation of cobalt onto bare and FA bound MX-80 bentonite[J]. Radiochimica Acta, 2006, 94(2): 97-102.
- [29] Yang S, Li J, Shao D, et al. Adsorption of Ni (II) on oxidized multi-walled carbon nanotubes: Effect of contact time, pH, foreign ions and PAA[J]. Journal of Hazardous Materials, 2009, 166(1): 109-116.
- [30] Tewari P H, Lee W. Adsorption of Co (II) at the oxide-water interface[J]. Journal of Colloid & Interface Science, 1975, 52(1): 77-88.

Leaching and vertical transfer of radionuclide ^{60}Co in soils around Nuclear Power Plant

ZHANG Qiong, CHEN Lu, WANG Bo, YE Yuanlv*

Nuclear and Radiation Safety Center, MEE, Beijing 100082, China

Abstract The soils surrounding coastal nuclear power plant are currently mainly brown soil and aeolian sandy soil in China. Previous research focused on the characteristics of ^{137}Cs and ^{89}Sr in different soils, and details of ^{60}Co in brown soil and aeolian sandy soil are still inadequate. This study deals with an experiment to determine the vertical migration of ^{60}Co in brown soil and aeolian sandy soil. The soils around Shidaowan Nuclear Power Plant are studied by using undisturbed soil column methods and isotope tracer technology to identify the factors influencing the migration depths in soil. The results show that with the increase of the number of leaching tests the migration of ^{60}Co in aeolian sand soil is greater than that in brown soil, but the difference gradually decreases with the progress of spray test; that the content of ^{60}Co in leaching water is very little and cannot be detected due to the strong adsorption by soil; and that after three years of undisturbed soil column experiment, 72.36~85.26% of ^{60}Co mainly is retarded in the range of 0~5 cm in both soil surfaces. It is proved that ^{60}Co is difficult to migrate to groundwater in a short period. The distribution of specific activity of ^{60}Co in soil is an individual exponential declining with the depth of soil. The study provides technical support for post-accident environmental impact assessment and post-accident soil treatment in future.

Keywords radionuclide ^{60}Co ; brown soil; aeolian sandy soil; soil column leaching test; migration and distribution ●



(责任编辑 祝叶华)