

放射性钴在模拟水稻田中的迁移模型

孙志明¹, 陈传群¹, 王寿祥¹, 王继延²

(1. 浙江大学原子核农业科学研究所, 杭州 310029; 2. 华东师范大学数学系, 上海 200062)

摘要:研究了放射性钴(⁶⁰Co)在模拟水稻田中的迁移、消长的动力学模型。结果表明,水稻田表水中⁶⁰Co 浓度随时间延长单调降低;水稻植株中⁶⁰Co 浓度在经历一最大值后下降,其各部位中⁶⁰Co 浓度大小顺序是:稻根>稻草>稻壳>糙米;各处理土壤中⁶⁰Co 浓度随距表层深度按单项指数衰减,不同处理的土壤中⁶⁰Co 的平均浓度则与时间负相关。⁶⁰Co 在田表水、土壤、水稻植株中浓度的大小顺序是:水稻植株>土壤>田表水。

关键词:钴-60;水稻;浓集系数;迁移模型

A transference model of radioactive cobalt in simulated paddy

SUN Zhi-Ming¹, CHEN Chuan-Qun¹, WANG Shou-Xiang¹, WANG Ji-Yan² (1. *Institute of Nuclear Agricultural Sciences, Zhejiang University, Hangzhou, 310029, China*; 2. *Department of Mathematics, East China Teacher's University, Shanghai, 200062, China*)

Abstract: The dynamic model of transference, accumulation and disappearance of active cobalt in the simulated paddy were studied. The results showed that concentration of ⁶⁰Co in paddy water was decreased monotonously with time. The concentration of ⁶⁰Co in rice plant was increased to peak a period and then declined, and the magnitude of concentration was: root>straw>husk>brown rice. The concentration of ⁶⁰Co in the soil for identical treatments presents an individual exponential declining with depth of soil; The average concentration of ⁶⁰Co in the soil for different treatments presents declining with time. The magnitude of concentration of ⁶⁰Co in the each parts was: rice>soil>water.

Key words: cobalt-60; rice; concentration factor; transference

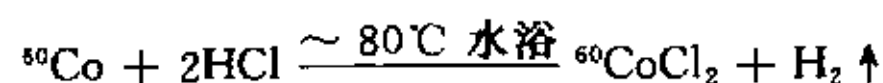
文章编号: 1000-0933(2001)05-0938-04 中图分类号: S152, X591 文献标识码: A

由于核电站反应堆中子的作用,反应堆中结构材料铁(⁵⁹Fe)、镍(⁵⁸Ni)分别生成了放射性⁶⁰Co、⁵⁸Co,但⁶⁰Co具有更为重要的毒理学意义。本研究采取模拟污染物的核素示踪技术研究了⁶⁰Co进入田水后,在田水-土壤-水稻中的迁移和积累动态,以为评价其对环境可能产生的影响提供依据。

1 材料与方法

1.1 ⁶⁰Co 的转化与配制

所用示踪剂⁶⁰Co 为铝壳包装的 $\phi 1\text{mm} \times 2\text{mm}$ 的钴粒(点源),由中国原子能研究院提供,出厂时(1996-10-29)比活度为 $3.19 \times 10^7 \text{Bq/mg}$ 。使用前转化为⁶⁰CoCl₂。方法是,加入适量稀盐酸,于 $\sim 80^\circ\text{C}$ 水浴中加热,待其缓慢溶解后转移至 100ml 容量瓶中,用水定容;使用时稀释成比活度为 $3.25 \times 10^5 \text{Bq/ml}$ 的工作母液,其反应式如下:



1.2 试验方法

采用 $\phi 25 \times 25\text{cm}$ 塑料盆钵。内装事先拌入基肥 $2.7\text{g}(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 $32\text{gKH}_2\text{PO}_4$ 风干的杭州华家池小粉土

基金项目:国家自然科学基金(39570149)资助项目

收稿日期:1999-03-22;修订日期:2000-04-10

作者简介:孙志明(1960~)男,山东海阳人,实验师,从事核素示踪和辐射应用研究。

8.0kg,其理化参数请见文献[1]。灌水(表面水约1500ml)。每盆种植水稻(品种:加育293)3丛,每丛5株。于插秧后1、3、6、11、20、29、38、47、56、65和74d,一次性由表水引入等量的 $^{60}\text{CoCl}_2$ 水液($3.25 \times 10^5 \text{Bq}$),各3只重复。最后一次引入距收获1d。于是 ^{60}Co 引入时间距收获天数相应为74、65、56、47、38、29、20、11、6、3和1d。

于水稻成熟时一次性收获、取样。取样次序是,取田表水适量;收割水稻地上部,分草、稻谷;用半筒式取土器,每盆取3只土柱,然后约每3cm纵向分割,计7段;最后取出稻根,用水洗净。稻谷烘干后脱壳分谷壳和糙米。

经过上述初步处理后,田表水采用挥发法,土壤采用干粉法,水稻各部位采用灰化法(在马弗炉中于 $\sim 800^\circ\text{C}$ 灰化8h),分别测定各样品中 ^{60}Co 活度。所有测样均3只重复。测定的相对标准差不大于10%。

2 结果与分析

2.1 ^{60}Co 在水-土壤-水稻系统各组分中的消长动态

^{60}Co 进入田表水后,便被土壤强烈吸附^[2],水稻植株主要通过根部从土壤中吸收 ^{60}Co ,然后运转至地上部。 ^{60}Co 在系统各组分中浓度的动态变化如表1所示。土壤中 ^{60}Co 浓度系指整盆土壤的平均浓度。时间表示 ^{60}Co 引入距收获的天数(下同)。

表1 模拟水稻田各组分中 ^{60}Co 浓度的动态变化

Table 1 The dynamic change of ^{60}Co in the different parts of simulated paddy

时间 Time(d)	1	3	6	11	20	29	38	47	56	65	74
田表水 Water (Bq/g)	1.49	1.02	1.06	1.25	0.35	0.23	0.34	0.31	0.17	0.26	0.16
土壤 Soil (Bq/g dry sample)	44.6	29.7	44.0	32.9	33.4	53.6	37.7	32.1	19.4	20.4	16.5
水稻植株 Rice (Bq/g dry sample)	55.4	39.0	54.1	48.0	113.1	193.3	179.5	291.1	261.6	510.1	490.3

测定结果表明, ^{60}Co 在系统各组分的浓度大小顺序是:水稻植株(干样) $>$ 土壤(干土) $>$ 田表水。但由于土壤质量(8.0kg/盆)远大于水稻植株($\sim 100\text{g}$ /盆干样),故进入水稻田中的 ^{60}Co 主要滞留于土壤;而就水稻各部位而言, ^{60}Co 浓度大小为:根 $>$ 稻草 $>$ 稻壳 $>$ 糙米(表2)。由于作物主要通过根部从土壤中吸收 ^{60}Co ,因此一般是地下部 ^{60}Co 浓度远大于地上部^[3],本研究结果与此一致。其次,相对于水稻的其它部位,糙米中 ^{60}Co 的浓度较低,但在 $t < 11\text{d}$ 食用才是安全的^[4], $t > 11\text{d}$,则需经历一定的安全等待期才可食用。

表2 水稻各部位中 ^{60}Co 浓度(Bq/g干样)的动态变化

Table 2 The dynamic change of concentration of ^{60}Co in the different parts of rice(Bq/g dry sample)

时间 Time(d)	1	3	6	11	20	29	38	47	56	65	74
稻根 Root	387.0	515.2	658.7	540.6	750.9	1154.6	923.7	1659.9	1853.0	2904.2	2874.8
稻草 Straw	64.4	30.4	52.9	51.5	169.4	280.8	252.9	456.6	374.0	722.6	677.1
稻壳 Husk	1.16	0.64	0.25	0.36	0.79	1.16	0.85	1.69	3.47	2.77	3.39
糙米 Brown rice	0.03	0.08	0.10	0.10	0.50	0.60	0.51	1.19	2.12	1.72	1.62

其次,随着距收获时间的延长,田表水中 ^{60}Co 浓度急速地下降;土壤中的 ^{60}Co 浓度也基本上呈下降趋势。这是由于 ^{60}Co 在土壤中较易被吸附、固定或螯合。被吸附的 ^{60}Co 由交换态和非交换态组成,由于土壤处于淹水状态,加之土壤呈酸性(pH6.0),故除了水溶性钴之外,交换态钴及有机螯合物可能发生浸提和溶解作用,使得钴有向下垂直迁移的趋向,也使得水稻根部能不断地从土壤中吸收钴而运转至其它部位。实际上,本研究 ^{60}Co 系由田水引入,若是因某种因素(比如核事故) ^{60}Co 进入土壤,则它在水稻各部位中的积累要低得多^[5]。就是说进入水体的 ^{60}Co 的潜在危害要比滞留于土壤中的危害大得多。这里应说明,由于试验

是在露天下进行的,因雨水等关系,致田表水常有溢出,而致 ^{60}Co 在系统中有所损失,这也是随时间延长,土壤中 ^{60}Co 的平均浓度下降的又一原因。

2.2 ^{60}Co 在土壤中的垂直分布

各处理的土壤中 ^{60}Co 浓度(Bq/g 干土)按深度分布的测定结果列于表 3。

表 3 ^{60}Co 在土壤中的垂直分布及其与时间相关性

Table 3 The vertical distribution of ^{60}Co in the soil as a function of time

时间 Time(d)	深度 Depth(cm)							回归方程 Regressive equation
	0~3	3~6	6~9	9~12	12~15	15~18	18~21	
1	256.4	36.8	7.3	2.2	2.1	1.0	6.7	$101.4e^{-0.2287x}$
3	152.6	40.5	5.0	1.7	1.8	2.9	3.1	$74.3e^{-0.2122x}$
6	262.4	29.9	5.4	5.1	1.0	1.6	2.5	$117.2e^{-0.2535x}$
11	200.0	19.2	4.9	2.0	0.7	1.2	2.4	$74.9e^{-0.2447x}$
20	180.5	27.3	10.5	7.7	3.1	1.1	3.6	$114.4e^{-0.2288x}$
29	312.6	28.2	8.1	5.7	3.7	5.4	11.2	$86.2e^{-0.1655x}$
38	211.0	27.1	9.4	4.7	2.6	5.9	3.1	$95.0e^{-0.2004x}$
47	173.3	15.5	8.7	4.2	6.4	11.7	5.2	$53.6e^{-0.1344x}$
56	97.8	15.2	8.6	5.6	2.7	2.0	3.8	$53.8e^{-0.1761x}$
65	76.6	17.3	13.2	24.4	2.8	3.0	5.6	$59.7e^{-0.1522x}$
74	89.1	11.6	6.4	3.6	2.0	1.5	1.3	$48.2e^{-0.2023x}$

由表 3 可见,对同一处理,土壤中 ^{60}Co 的浓度随深度急速地降低。回归分析表明,土壤中 ^{60}Co 浓度随表层深度 x 呈单项指数负相关,相关系数在 $-0.6952 \sim -0.9302$ 之间,它们在 $\alpha=0.10 \sim 0.01$ 水平上显著。各回归方程一并列于表 3 右侧。

应该指出,大多数处理的底层土壤中 ^{60}Co 浓度有升高的趋势,这主要是由于在淹水条件下,上层土壤中的 ^{60}Co 不断向下迁移、积累的缘故。

2.3 水稻对 ^{60}Co 的浓集作用

表 1 已经表明,相对于田表水和土壤,水稻植株对土壤中钴的浓集作用与 ^{60}Co 引入距收获时间成正相关,其浓集系数 $^{[4]}K_s$ 由 1d 的 1.24 至 74d 的 29.72,与其相应的糙米对土壤中钴的浓集系数则为 7×10^{-4} 和 0.1。至于对田表水中的 K_w 值,水稻植株由 1d 的 37.2 至 74d 的 3064.4,糙米则相应为 0.02 和 10.1;实际上,本试验条件下,当 $t > 20\text{d}$ 后,糙米的 K_w 值皆大于 1。

2.4 ^{60}Co 在水-土壤-水稻中的迁移模型

^{60}Co 在水-土壤-水稻系统中迁移、输运的动态过程可用封闭三分室模型原理描述。通常认为,示踪剂(^{60}Co)的迁移服从一级速率过程,当作一定简化,便得各分室(如图)中 ^{60}Co 量对时间的变化率相应为:

$$\frac{dq_1}{dt} = -(k_{12} + k_{13})q_1 + k_{21}q_2$$

$$\frac{dq_2}{dt} = k_{12}q_1 - (k_{21} + k_{23})q_2$$

$$\frac{dq_3}{dt} = k_{13}q_1 + k_{23}q_2$$

式中 k_{ij} 表示 ^{60}Co 由第 i 分室向第 j 分室转移的速率,可视为常数。利用初始条件 $t=0, q_1=q_{1,0}, q_2, q_3=0$, 以及 $q_{1,0} = \sum q_i = \text{常数}; q_i = m_i C_i$, 此处 m_i 为第 i 分室的质量,视作常数, C_i 为第 i 分室中 ^{60}Co 的浓度。解上微分方程组得:

$$C_1 = \frac{C_{1,0}}{\beta - \alpha} [(\gamma - \alpha)e^{-\alpha} - (\gamma - \beta)e^{-\beta}]$$

$$C_2 = \frac{m_1 C_{1,0} k_{12}}{m_2 (\beta - \alpha)} [e^{-\alpha} - e^{-\beta}]$$

$$C_3 = \frac{m_1 C_{1,0}}{m_3} \left(1 - \frac{k_{13} - \beta}{\alpha - \beta} e^{-\alpha t} + \frac{k_{13} - \alpha}{\alpha - \beta} e^{-\beta t} \right)$$

式中

$$\alpha = \frac{1}{2} [\gamma + k_{13} + k_{12} - \sqrt{(k_{13} + k_{12} - \gamma)^2 + 4k_{12}k_{21}}],$$

$$\beta = \frac{1}{2} [\gamma + k_{13} + k_{12} + \sqrt{(k_{13} + k_{12} - \gamma)^2 + 4k_{12}k_{21}}],$$

$$\gamma = k_{23} + k_{21}$$

利用表 1 的数据和初始条件 $C_{1,0} = 216.7 \text{ Bq/g}$ 水以及系统各组分的质量 $m_1 = 1500 \text{ g}$, $m_2 = 8000.0 \text{ g}$, $m_3 = 800 \sim 120 \text{ g}$ (干重), 取 $m_3 = 100 \text{ g}$ (干重), 经计算机拟合得 $k_{12} = 5.2981 \text{ d}^{-1}$, $k_{13} = 0.0302 \text{ d}^{-1}$, $k_{21} = 0.0101 \text{ d}^{-1}$, $k_{23} = 0.0017 \text{ d}^{-1}$, 于是便得各分室中 ^{60}Co 浓度随时间变化的数学模式为:

$$\text{田表水 } C_1 = 40.61(0.0100e^{-0.001753t} + 5.3266e^{-5.3384t})$$

$$\text{土 壤 } C_2 = 40.3(e^{-0.001753t} - e^{-5.3384t})$$

$$\text{水 稻 } C_3 = 3250.5(1 - 0.9947e^{-0.001753t} - 0.0053e^{-5.3384t})$$

3 讨论

上述模型较好地描述了 ^{60}Co 在水稻田中的行为归趋。除了田表水之外, 理论值与实验值误差大多在 30% 以内; 由于本试验系在露天网室中进行, 进入梅雨季节 ($t > 29 \text{ d}$) 后雨水较多, 几次盆水溢出, 致使 ^{60}Co 浓度值明显低于理论值。

4 主要结论

4.1 进入田水中的 ^{60}Co 将在整个系统中发生迁移和分配。系统各组分中 ^{60}Co 浓度与时间关系由多项指数描述, 其中田表水中 ^{60}Co 浓度单调降低, 土壤、水稻植株中的 ^{60}Co 浓度均在经历最大值后下降。

4.2 田表水中 ^{60}Co 浓度远低于土壤和水稻植株; 系统中的 ^{60}Co 主要为土壤所积累, 并主要积累于土壤表层。

4.3 水稻植株对土壤和水中的 ^{60}Co 均有一定的浓集作用; 而糙米中 ^{60}Co 浓度远低于土壤, 但糙米能浓集水中的 ^{60}Co 。

参考文献

- [1] 陈传群, 钟伟良, 王寿祥, 等. 放射性铯在模拟水稻田中的行为. 核技术, 1997, 20(1): 56.
- [2] 冯永红, 陈传群, 王寿祥, 等. ^{60}Co 在土壤、矿物质中的吸附及在菜豆-土壤系统中的迁移. 中国核科技报告, CNIC-01238, 北京: 原子能出版社, 1998. 5~6.
- [3] 王 云, 魏复盛. 土壤环境元素化学, 北京: 环境科学出版社, 1995. 78.
- [4] 中华人民共和国国家标准总局. 国家标准, 食品中放射性物质限制量标准, GB54-81. 1982: 257.
- [5] Алексихин Р М, Буфагин О И, Маликов В Г и др. Радиэкология Орошаемого Земледелия, с. 117, Энергоатомиздат, Москва, 1985.
- [6] 魏切尔 F W, 舒尔茨 V. 俞普福, 唐静娟, 茅云译著. 放射生态学, 第一卷. 北京: 原子能出版社, 1988. 282.

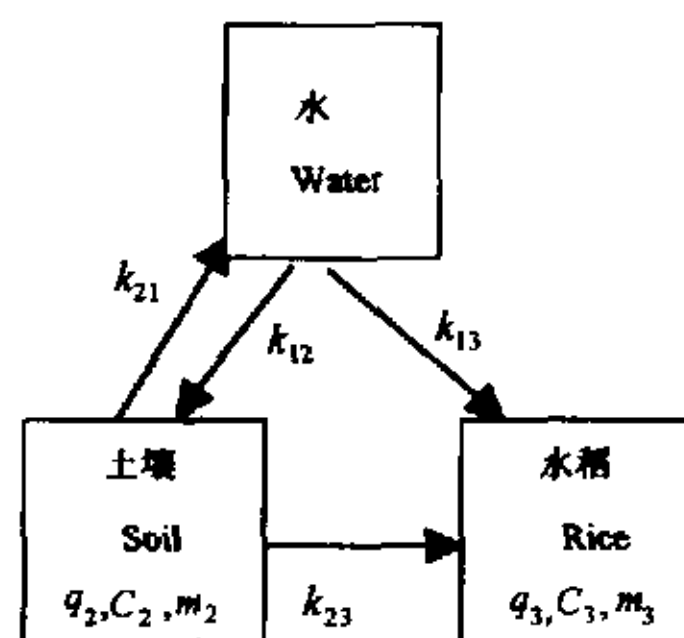


图 1 封闭三分室

Fig. 1 A closed three-compartment model