

氚水在模拟水生-陆生生态系统中的迁移与分布

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, 310029)

王辅俊 黄丹 胡秉民

(华东师范大学数学系)

(浙江农业大学基础课部)

Q142.6

A

摘要 利用同位素示踪技术研究了进入水体的HTO向陆地的迁移。结果表明:1. 进入水体的HTO将向系统各组分转移, 池水中的HTO单调地减少, 底泥及水生生物中的HTO浓度皆在经历某一最大值后平缓地下降;2. HTO中的氚以自由水氚和结合态氚存在于水生动植物和底泥中;3. HTO还明显地向毗邻的陆地和作物迁移, 在一个半月期间, 陆地系统中的总氚约占水体的24%。

关键词: 氚水, 放射生态学, 水生生态系, 陆地生态系, 浓缩系数。

氚水(HTO)是压水堆核电站的主要放射性液态流出物。它的迁移性较强, 进入环境的HTO参加自然水的循环, 进入生物体后参加体内水的代谢, HTO中的氚将与组织中的氢交换, 从而产生内照射, 因而它已日益成为放射生态学研究中的关注对象; 目前, 有关它在农业生态系, 尤其是作物中行为的研究报道不多。

本文阐述了水体中的HTO对水生生物及与其毗邻陆地的影响, 为全面评价它在农业生态环境中的行为提供了依据。

1 材料与方法

试验在 $1 \times 1 \times 0.6 \text{ m}^3$ 的水泥池内进行(2只重复), 池内用一块 $1 \times 100 \times 50 \text{ cm}^3$ 带孔的硬塑板均分为二, 其中一半填土作陆地生态系统, 另一半作水生生态系。在隔板 $90 \times 40 \text{ cm}^2$ 范围内, 每 $2 \times 1.5 \text{ cm}^2$ 打孔($\Phi 12$)一只, 以使陆地与水体相通。

每块陆地装320.0kg杭州华家池砂壤土, 土层厚约50cm(土壤主要理化参数为: 有机质1.9%, pH6.0, 粘粒 $< 0.001 \text{ mm}$ 12.5%), 种植玉米(*Zea mays*)3株, 间种青菜(*Brassica chinensis*)5棵; 水生生态系装入25.0kg同种风干土作底泥, 灌水100.0kg(水深约20cm), 放养罗非鱼(*Tilapia mossambica*)25尾(每尾重约8g), 螺蛳(*Bellamya purificata*)60枚(每枚重约3g), 水葫芦(*Eichhornia crassipes*)20棵, 约660g。所用HTO为中国原子能研究院提供, 浓度为 $3.7 \times 10^8 \text{ Bq/ml}$, 使用前稀释成 $3.7 \times 10^5 \text{ Bq/ml}$ 。

于玉米抽穗期向水体一次性引入上稀释液24.5ml, 合池水中HTO原始浓度约90.5Bq/g水; 水生系统采样在HTO引入后0.25、1.3、7、14、21、28和42d进行; 取底泥适量, 稍经沥滤后装入50ml梨形瓶中; 取鱼2尾、螺蛳4枚、水葫芦2棵, 皆经水冲洗、用吸水纸吸去表面水、剪碎后装入50ml梨形瓶中, 所有装入梨形瓶的样品在称量后皆及时用磨口塞塞紧。陆地生态系只一次性采样、分析与测定。

已作的研究表明^[1,2], HTO中的氚存在于生物体的自由水中, 并因光合作用或与组织中的

氢交换而以结合态氚存在;土壤中 HTO 的氚存在于吸湿性水和结晶水中。自由水氚和吸湿性水氚可用蒸馏法获取,而结合态氚、结晶水氚则采用燃烧法得到。两种方法的回收率均在 85% 以上^[3]。

上述所有测样皆在 LKB-1217 液闪仪上测定氚活度。测定的相对标准差控制在 5% 以内。

2 结果与讨论

2.1 HTO 在水生生态系中的迁移动态 所得结果列于表 1。

2.1.1 进入池水的 HTO 较迅速地迁移至系统其它组分;HTO 中的氚以自由水氚及结合态氚形式存在于底泥及水生动植物中,结合氚的存在表明 HTO 中的氚与生物体中氢发生了交换。

表 1 HTO 在水生生态系中的分配动态(Bq/(g 鲜样)或(g 湿土))

Table 1 The distributive dynamic of HTO in the aquatic ecosystem(Bq/g fresh sample or g wet soil)

时间	Time	(d)	0.25	1	3	7	14	21	28	42
池水	Water		87.5	82.4	70.3	66.9	57.5	51.2	47.0	35.9
底泥 Bottom mud	吸湿性水氚 Tritium of hygroscopic water		19.2	20.5	19.5	28.7	18.0	21.6	18.1	13.5
	结晶水氚 Tritium of crystalline water		1.57	1.42	1.49	1.57	1.72	1.70	2.34	2.15
	总 氚 Total tritium		20.8	21.9	21.0	30.3	19.7	23.3	19.4	15.6
鱼 Fish	自由水氚 Tritium of free water		35.4	37.4	35.6	37.2	31.9	26.9	29.2	19.1
	结合态氚 Combined tritium		3.17	2.64	2.57	4.63	3.43	4.70	5.51	7.00
	总 氚 Total tritium		38.6	40.0	38.2	41.8	35.3	31.6	34.7	26.1
螺蛳 Snail	自由水氚 Tritium of free water		12.0	23.3	19.4	17.8	8.93	16.8	19.8	11.9
	结合态氚 Combined tritium		4.71	7.12	6.08	7.38	8.96	11.4	11.5	12.9
	总 氚 Total tritium		16.7	30.4	25.5	25.2	17.9	28.2	31.3	24.8
水葫芦 Water hyacinth	自由水氚 Tritium of free water		17.3	14.6	11.0	25.7	27.7	16.1	21.6	17.4
	结合态氚 Combined tritium		4.41	3.07	4.30	2.98	0.61	3.51	3.84	2.94
	总 氚 Total tritium		21.7	17.7	15.7	28.7	28.3	19.6	25.2	20.3

2.1.2 整个地说,自由水氚(吸湿性水氚)的浓度比结合态氚(结晶水氚)浓度高,只有螺蛳至 14d 后才接近甚至超过自由水氚。

2.1.3 自由水氚或吸湿性水氚基本上皆经历某一最大值后开始下降。比如底泥从开始的 0 (HTO 系由池水引入)至第 7d 的 28.7Bq/g 湿土、鱼至第 7d 的 37.2Bq/g 鲜样、水葫芦至第 7d 的 25.7Bq/g 鲜样,而螺蛳在 1d 内便达 23.3Bq/g 鲜样;结合态氚除了水葫芦外,基本上皆呈增加趋势。

2.1.4 就总氚而言,池水中的氚单调减少,但始终高于系统的其它组分,而鱼、螺蛳、水葫芦和底泥的总氚呈现出与自由水氚类似的规律性,即在经历某一最大值后下降,且其达最大值时间除螺蛳外,余皆与自由水氚一致。水生动植物及底泥中总氚浓度大小顺序是:鱼>螺蛳>水葫芦≈底泥。水葫芦中 HTO 浓度偏低可能与其生理状态有关,它通过根部吸收水(HTO)至水面上部,而鱼和螺蛳则皆为底栖生物。

2.1.5 HTO 在水生生态系统中的迁移、分配和消长规律,可运用池水-底泥-鱼-螺蛳-水葫芦开放(因 HTO 蒸发将向系统外散失)5 分室模型原理寻求。若以 q_i 、 C_i 、 m_i ($i=1,2,3,4,5$) 表示池水、底泥、鱼、螺蛳及水葫芦中 HTO 的量、浓度和质量,并略去一些次要因素(图 1):则各分室中 HTO 量对时间的变化率为:

$$\frac{dq_1}{dt} = -pq_1$$

$$\frac{dq_2}{dt} = k_{12}q_1 - k_{24}q_2$$

$$\frac{dq_3}{dt} = k_{13}q_1$$

$$\frac{dq_4}{dt} = k_{14}q_1 + k_{24}q_2$$

$$\frac{dq_5}{dt} = k_{15}q_1 - k_5q_5$$

由于 HTO 系由池水引入,故 $q_j=0$ ($j=2, 3, 4, 5$), 而 $C_{1,0}=90.5\text{Bq/g 水}$, 并注意到 $q_1 = m_1 C_1$, 解上方程组得各分室中氚浓度随时间变化的数学模式为:

$$C_1 = C_{1,0}e^{-\lambda t},$$

$$C_2 = \frac{C_{1,0}m_1k_{12}}{m_2(p-k_{24})}(e^{-\lambda t} - e^{-pt}),$$

$$C_3 = \frac{C_{1,0}m_1k_{13}}{m_3p}(1 - e^{-pt}),$$

$$C_4 = \frac{C_{1,0}m_1}{m_4}[A - Be^{-\lambda t} - (A-B)e^{-pt}],$$

$$C_5 = \frac{C_{1,0}m_1k_{15}}{m_5(p-k_5)}(e^{-\lambda t} - e^{-pt})$$

式中 $p=k_1+k_{12}+k_{13}+k_{14}+k_{15}$, $A=\frac{k_{12}+k_{14}}{p}$; $B=\frac{k_{12}}{p-k_{24}}$; k_{ij} 为 HTO 由 i 分室向 j 分室转移的速率常数。运用表 1 的数据,在计算机上拟合得: $p=2.5 \times 10^{-2}\text{d}^{-1}$; $k_1=2.7 \times 10^{-5}\text{d}^{-1}$; $k_{12}=2.0 \times 10^{-2}\text{d}^{-1}$; $k_{13}=6.0 \times 10^{-5}\text{d}^{-1}$; $k_{14}=2.9 \times 10^{-5}\text{d}^{-1}$; $k_{15}=2.0 \times 10^{-3}\text{d}^{-1}$; $k_{24}=0.2\text{d}^{-1}$; $k_5=0.6\text{d}^{-1}$ 。因而得:

$$C_1 = 90.5e^{-0.025t},$$

$$C_2 = 10.3(e^{-0.025t} - e^{-0.2t})\frac{m_1}{m_2},$$

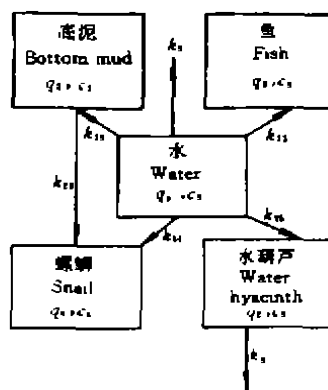


图 1 开放五分室

Fig. 1 The open five compartments

$$C_3 = 0.22(1 - e^{-0.025t}) \frac{m_1}{m_3},$$

$$C_4 = 90.5[0.81(1 - e^{-0.025t}) + 0.11(e^{-0.2t} - e^{-0.025t})] \frac{m_1}{m_4},$$

$$C_5 = 0.31(e^{-0.025t} - e^{-0.6t}) \frac{m_1}{m_5}$$

表 2 水生生态系各组分质量比值与时间关系

Table 2 The relationship between mass ratio and time vs each compartment in the aquatic ecosystem

t, d	0.25	1	3	7	14	21	28	42
m_1/m_2	7	6	5	4	4	4	4	4
m_1/m_3	500	520	520	500	500	400	300	200
m_1/m_4	556							
m_1/m_5	150	150	120	120	120	120	130	140

实验值与按上 C_i 计算得的理论值有很大歧离。为此, 得对 C_i 作修正(第 1 次样无需修正, 第 2、3 次样只作小的修正)。考虑到这些因素, 系统内各有关组分质量比值列于表 2(m_1/m_i 只给出起始值)。经拟合, 修正后的 C_i 表达式为:

$$t = 0.25d: C_i = C_i;$$

$$t = 1, 3d: C_i = C_i e^{1.1t};$$

$$t > 3d: C_i^* = [0.73(1 - e^{-0.025t}) - 0.10(e^{-0.025t} - e^{-0.2t})] \frac{m_1}{m_i}$$

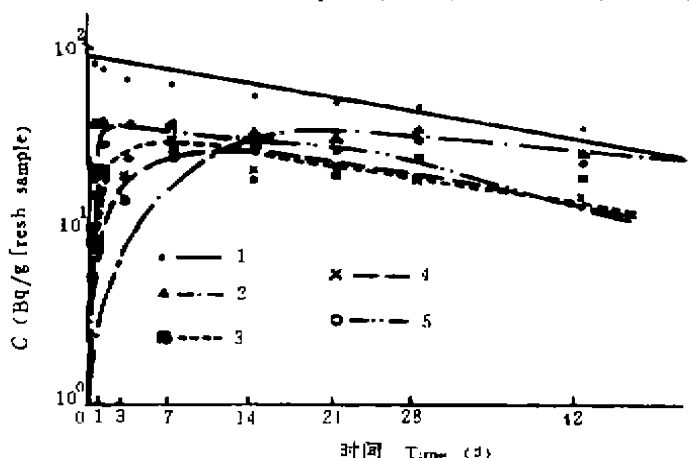


图 2 HTO 在水生生态系中的消长

Fig. 2 The accumulation and disappearance of HTO in the aquatic ecosystem

1—池水, Water; 2—鱼 Fis; 3—螺蛳 Snail; 4—底泥 Bottom mud;
5—水葫芦 Water hyacinth

HTO 在鱼、螺蛳体内分布的测定结果如表 3 所示。可见, 鱼体中除了内脏之外, 各组成部分中总氚浓度皆比较接近; 螺蛳情况类似。鱼内脏中 HTO 浓度最高, 主要是其生理活动的特点和含有较多水分之故。

根据系统各组分的质量数据可获得上述各式的完全数值解。其中池水的质量不变; 至于底泥, HTO 起始在表层, 然后逐渐向深层迁移, 直至在底泥中均匀分布; 鱼虽随取样而减少, 但其生长较明显; 水葫芦虽生长较快, 但每次取 2 棵, 量较大, 最后质量与起始质量相差无几; 关于螺蛳, 因其大量繁殖, 质量变化较大, 以至难以定量估计其质量变化, 使得

此处 m_1/m_i 以表 2 值代入。图 2 为水生生态系各组分中总氚浓度与时间关系曲线。

2.1.6 关于水生动植物对 HTO 的浓缩系数及其在鱼、螺蛳体内的分布。测定表明, 水生动植物对 HTO 的 CF 值基本上与时间成正相关(此处浓缩系数 CF 定义为水生动植物体内的氚浓度与同一时刻水中的氚浓度之比), 但皆小于 1。至试验结束时, 鱼为 0.73, 螺蛳为 0.69, 水葫芦为 0.56。水生动植物对 HTO 的 CF 值皆小于 1, 这是因为 HTO 进入环境之后总是存在于水环境之中。

2.2 HTO 在陆生生态系中的分布

测定表明,水体中 HTO 能够迁移至与其毗邻的陆地,并转移至陆生作物之中。表 4 给出了测定结果。

表 3 鱼、螺蛳体内的氚浓度(Bq/g 鲜样)
Table 3 The concentration of HTO in the fish and snail (Bq/g fresh sample)

项 目 Item	鱼 Fish				螺蛳 Snail		
	肉 Muscle	头、骨 Head/ skeleton	鳞 Scale	内脏 Viscera	鳃 Branchid	肉 Muscle	壳 Shell
自由水氚 Tritium of free water	17.8	16.8	20.9	27.7	22.3	16.5	4.62
结合态氚 Combined tritium	7.31	7.69	5.74	6.56	3.05	6.74	16.5
总 氚 Total tritium	25.1	24.5	26.6	34.3	25.4	23.2	21.1

表 4 HTO 在陆地生态中的分布(Bq/g 鲜样)
Table 4 The distribution of HTO in the ecosystem for dry land (Bq/g fresh sample)

作 物 Crop plants		自由水氚 Tritium of free water	结合态氚 Combined tritium	总 氚 Total tritium	土壤层次 Soil layers (cm)	吸湿性水氚 Tritium of hygroscopic water	结晶水氚 Tritium of crystalline water	总氚 Total tritium
青 菜 Green vegetables	地上部 Part of overground	9.81	1.65	11.5	0—5	0.71	1.33	2.0
					5—10	0.70	1.41	2.1
	根 Root	5.96	1.90	7.9	10—15	0.81	1.60	2.4
玉 米 Maize	籽 Seed	4.75	5.74	10.5	15—20	0.77	1.46	2.2
					20—25	0.80	1.01	1.9
	芯 Pith	1.95	9.37	11.3	25—30	0.92	1.40	2.3
					30—35	0.54	1.42	2.0
	秸 Straw	2.16	5.57	7.7	35—40	0.88	1.52	2.4
	根 Root	1.66	5.89	7.6	40—45	0.33	1.27	2.1
					45—50	0.64	1.38	2.0

2.2.1 陆地作物中 HTO 浓度远高于土壤;对陆地作物来说,青菜中的 HTO 浓度比玉米高得多,这与它们对水的需求和青菜含有比玉米为多的水分有关;并且,青菜中的自由水氚浓度远高于结合态氚,而玉米则正好相反;至于土壤,HTO 浓度沿深度方向几乎均匀分布;吸湿性水氚平均浓度为 $0.76 \pm 0.11 \text{ Bq/g}$ 湿土,结晶水氚平均为 $2.14 \pm 0.18 \text{ Bq/g}$ 湿土。

2.2.2 利用表 4 的数据,并考虑各组分质量,使得由水体进入陆地系统的氚总量约占水生系统的 24%,HTO 的巨大迁移性由此足见一斑。

2.2.3 如果将陆地作物中 HTO 浓度与陆地土壤中 HTO 浓度(此处取总氚平均浓度)之比定义为 HTO 的转移系数(或浓缩系数),则各可食部分的 CF 值,青菜(地上部)为 5.4,玉米籽为 4.9。

参 考 文 献

- 1 Равинский Фя и др. Атомная энергия, 1987, 62: (4), 243—248
- 2 井上义和. 环境トツチウム研究の最近動向. 日本原子力学会志, 1989, 3(7), 793
- 3 孙志明等. 农业生态学研究氚水液内测样的制备. 核农学通报, 1993, 14(3)

TRANSFERENCE AND DISTRIBUTION OF TRITIUM WATER IN A SIMULATED AQUATIC-TERRESTRIAL ECOSYSTEM

Wang Shouxiang Chen Chuanqun Zhang Yongxi Sun Zhiming

(*Institute of Nuclear Agricultural Sciences, Zhejiang Agricultural University, Hangzhou, 310029*)

Wang Fujun

(*Department of Mathematics, East China Teachers University, Shanghai*)

Huang Dan Hu Bingmin

(*Division of Basic Courses, Zhejiang Agricultural University, Hangzhou*)

The isotope tracer techniques are applied to explore the transfer of HTO from water body to land. The results show that when HTO entered a water body, it would transfer to other compartments in the ecosystem, and HTO in the water phase showed a monotonous decrease with time. However the concentration of HTO in either sediment or aquatic life was increased to a peak in a period and then declined gently. Tritium of HTO present in sediment and aquatic life is in two forms, i. e., tritium in free water and bounded tritium. HTO was also significantly transferred to land soil and uptaken by crop plants. In one and half months, the land system had 24% of the total tritium in the aquatic system.

Key words: tritium water, radioecology, aquatic ecosystem, terrestrial ecosystem, concentration factor.