

放射性铈在模拟水生生态系统中的行为

王寿祥 钟伟良[✓] 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)

A

摘要 研究 ^{141}Ce 在水-底泥-水生动植物系统中的迁移和消长动态, 结果表明, 系统各组分中 ^{141}Ce 浓度与时间关系由多项指数描述。其中池水中的 ^{141}Ce 浓度随时间延长单调地降低; 底泥中 ^{141}Ce 浓度随时间延长增加; 水生动植物中 ^{141}Ce 浓度则各自在经历某一最大值后逐渐降低。水生动植物对 ^{141}Ce 皆有一定的富集能力, 其大小次序依次为: 金鱼藻>>螺蛳>鱼, 而鱼体中的 ^{141}Ce 主要集中于内脏, 螺壳与螺肉中 ^{141}Ce 浓度无显著差异。

关键词: 放射性铈, 放射生态学, 示踪动力学, 水生生态系统, 数学模型, 浓集系数。

BEHAVIOR OF RADIOACTIVE CERIU IN A
SIMULATED AQUATIC ECOSYSTEMWang Shouxian Zhong Weiliang Chen Chuanqun
Zhang Yongxi Sun Zhiming

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

Abstract The dynamics of transport, accumulation and disappearance of ^{141}Ce in pond water silt-aquatics system were studied. The results showed that the relation between the concentration of ^{141}Ce in each compartment and the time could be described by multi-component exponential laws. The concentration of ^{141}Ce in pond water decreased monotonously with time, but the concentration of ^{141}Ce in silt would increase with time. The concentration of ^{141}Ce in the aquatics increased to their maxima then decreased slowly. ^{141}Ce could be concentrated by the aquatics to a certain degree, and the magnitude of their concentration factors was: hornwort>> snail> fish. The uptake of ^{141}Ce by fish was mainly in the viscera, whereas its concentration showed little differences in the shell and flesh of snail.

Key words: ^{141}Ce , radiocology, aquatic, ecosystem, tracer kinetics, concentration factor.

浙江省自然科学基金项目。

* 现在华南农业大学生物物理教研室工作。

收稿日期: 1995-08-08, 修改稿收到日期: 1996-02-02。

放射性铈(^{144}Ce 、 ^{141}Ce)是重要的核裂变产物,其生物学毒性较高,进入人体后主要在肝脏和骨骼中积累,从而产生损伤。所以在放射生态学研究,放射性铈与放射性锶、铯、碘一样成为研究者的关注对象。

本研究采用模拟污染物的同位素示踪技术研究了 ^{141}Ce 进入水体后的输运和消长的动态过程,并通过示踪动力学的分室模型建立了其行为规律的数学模型,为评价其对水体的影响提供科学资料 and 理论依据。

1 材料与方法

试验在 $1\times 1\times 0.6\text{ m}^3$ 的内衬塑板的水泥池内进行(两次重复),每池装 50.0 kg 风干的杭州华家池小粉土(其理化参数为:有机质 1.9% , $\text{pH } 6.0$ (水浸)、 5.5 (盐浸),交换性总酸 0.5 mmol/kg 干土,交换性钙 59 mmol/kg 干土,交换性镁 7.5 mmol/kg 干土, $<0.001\text{ mm}$ 粘粒为 12.5%),灌水 250.0 kg ,待水基本澄清后(约 2 d),每池放养莫桑比克罗非鱼(*Tilapia mossambica*)40尾(每尾重约 5 g),螺蛳(梨形环棱螺 *Bellamya purificata*)100枚(每枚重约 2 g),金鱼藻(*Ceratophyllum demersum*) 200 g 。驯养 10 d 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 $8.22\times 10^3\text{ cpm/ml}$ (1994-09-23,下同)的 $^{141}\text{Ce}(\text{NO}_3)_3$ 溶液 250.0 ml ,合池水中 ^{141}Ce 初始浓度为 822.0 cpm/ml 。

取样分别在 ^{141}Ce 引入后 1 h 、 6 h 、 1 d 、 3 d 、 6 d 、 11 d 、 16 d 、 21 d 、 26 d 和 35 d 进行。每次直接吸取水样 1.00 ml (3次重复),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 $<0.6\text{ mm}$),然后称取 200.0 mg 平铺于测样皿。取金鱼藻适量,用清水冲洗后吸去表面水,称鲜重后于马福炉大约 600°C 下焚烧 8 h 。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、腮、骨(头)和内脏,螺蛳分壳和肉,采取与金鱼藻相似的方法处理。金鱼藻、鱼和螺蛳灰化后各称取 100.0 mg 平铺于测样皿,均设3只重复。各样品均在G-M计数装置上测定 ^{141}Ce 活度,测定误差控制在 5% 以内。

2 结果分析与讨论

2.1 ^{141}Ce 在模拟水生生态系统各组分中的分配

测定结果如表1所示。鱼和螺蛳体内的浓度系由 $C=\Sigma m_i C_i/\Sigma m_i$ 折算而得。此处 m_i 、 C_i 分别为各组分的质量和 ^{141}Ce 浓度。

表1 模拟水生生态系中 ^{141}Ce 的分配动态

Table 1 The distribution dynamic of ^{141}Ce in the simulated aquatic ecosystem

时间 x Time	水 Water cpm/g	底泥 Silt cpm/g dry soil	鱼 Fish cpm/g fresh sample	金鱼藻 Hornwort cpm/g fresh sample	螺蛳 Snail cpm/g fresh sample
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	8509.3	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

由表1可见,水中 ^{141}Ce 浓度随时间延长急速地降低,引入后仅 1 h ,便由初始的 822.0 cpm/ml 降为 446.5 cpm/ml ,至 6 h 后则降为 185.6 cpm/ml ,为初始浓度的 22.5% ,随着时间的推移,池水中 ^{141}Ce 的浓度越来越低,3 d后基本趋于平衡。其原因可能有以下几方面。 $^{141}\text{Ce}(\text{NO}_3)_3$ 进入水体后以 $^{141}\text{Ce}^{3+}$ 状态

存在,水解生成 $^{141}\text{Ce}(\text{OH})_3$ 沉淀,并且它还与水体中悬浮微粒发生凝聚沉淀作用,从而使 ^{141}Ce 进入底泥或为金鱼藻的羽毛状枝叶所吸附;其次,底泥中部分阴离子,如 CO_3^{2-} 、 H_2PO_4^- 等可释放到水中,与 $^{141}\text{Ce}^{3+}$ 形成沉淀物 $^{141}\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3$ 、 $^{141}\text{CePO}_4$ 。随着底泥及水生动植物对池水中 ^{141}Ce 的逐渐富集,池水中 ^{141}Ce 浓度便继续下降。但与此同时,由于解吸、溶出作用,池水中 ^{141}Ce 浓度逐渐趋于平衡。

底泥中 ^{141}Ce 浓度则随时间延长而增大,约在第11天达到平衡。这是由于底泥对 ^{141}Ce 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^[1],而且因被表层底泥吸附的 ^{141}Ce 可以向深层迁移,从而减少了溶出和解吸的机会。

^{141}Ce 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 ^{141}Ce 发生积累,而由于解吸、排泄等作用,又使鱼体各组织、器官中 ^{141}Ce 浓度降低。鱼体各部位中 ^{141}Ce 浓度随时间变化情况列于表2。

前已述及, ^{141}Ce 进入系统后,首先为池水中悬浮颗粒所吸附,并发生凝聚沉降,这些凝聚物部分被鱼的体表所吸附,或在鱼的呼吸、摄食过程中为鱼鳃所滞留。因此,当 ^{141}Ce 进入系统后,鱼鳞和鱼鳃中 ^{141}Ce 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 ^{141}Ce 浓度下降很快,加之铯(^{141}Ce)并非生物必需的营养元素,即缺乏生物功能^[2],故在鱼的游动和生长过程中,鱼鳞与鳃中吸附的大部分 ^{141}Ce 又重新释放或分配,只有小部分被其真正吸收固定。

鱼内脏中 ^{141}Ce 浓度增高极快,试验开始后1h即已达最大值,为池水初始浓度的45倍,并始终居鱼体各部分中 ^{141}Ce 浓度之首,随后开始下降。这主要是由于因摄食的凝聚物被鱼的胃肠道所阻留,而在短时间内 ^{141}Ce 的排泄极为有限,并且,对连续摄取铯的生物(鱼)来说,胃肠道便是关键器官^[2],但鱼的胃肠道对 ^{141}Ce 的吸收毕竟是很低的,因此,随着时间的延续,胃肠道中的 ^{141}Ce 被排出体外,内脏中 ^{141}Ce 浓度也就随之降低。鱼体各部分中 ^{141}Ce 浓度的差异是很大的,其大小次序为:内脏>鳃>鳞>骨、头>肉。

表2 鱼体各部分中 ^{141}Ce 浓度与时间关系(cpm/g鲜重)

Table 2 Concentration of ^{141}Ce in different parts of fish as a function of time (cpm/g fresh sample)

时间(d) Time	1/24	6/24	1	3	6	11	16	21	26	35
鳞 Scale	974.9	490.4	611.5	345.2	110.6	163.6	173.5	74.9	91.7	17.1
鳃 Gill	1620.8	1500.4	392.6	341.4	85.8	92.4	85.5	78.3	31.0	48.9
内脏 Viscera	37264.5	35193.3	22769.4	17464.9	9778.4	4242.9	2989.0	1790.3	2374.3	633.9
肉 Flesh	278.9	332.7	295.0	44.8	21.1	43.8	6.9	38.8	7.6	9.3
骨、头 Skeleton and head	739.3	348.1	371.0	150.0	45.0	86.5	50.4	63.6	13.3	14.6

表1的数据还表明,金鱼藻对 ^{141}Ce 有较强的吸附、吸收能力。在 ^{141}Ce 引入池水仅1d,其吸附 ^{141}Ce 的量就达到最大值;随着时间的延长,金鱼藻中 ^{141}Ce 含量开始下降。这是由于系统刚引入 ^{141}Ce 时,其与水中悬浮颗粒发生凝聚和络合沉淀作用;含 ^{141}Ce 的凝聚物被具有巨大比表面积的金鱼藻羽毛状枝叶所吸附,部分被吸收。其余被吸附于表面的 ^{141}Ce 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 ^{141}Ce 的浓度下降,并趋平衡。

螺蛳中 ^{141}Ce 浓度随时间变化的状况与其它水生动植物相似。但是, ^{141}Ce 由池水引入后仅6h,螺壳和螺肉中的 ^{141}Ce 浓度即已达最大值(表3)。随后由于释放、生理排泄等原因,其浓度逐渐下降。但螺壳中 ^{141}Ce 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;螺体的头部是螺蛳摄食、爬行等活动的重要器官,所以摄入的 ^{141}Ce 首先在头部积累。但由于代谢作用,头部的 ^{141}Ce 又逐渐向肠胃内脏转移,而肠胃对 ^{141}Ce 的吸收率是很低的,因此,螺肉中 ^{141}Ce 浓度趋于稳定时与其最大值相差很大,仅为其3%左右。

表 3 螺体各部分中¹⁴¹Ce 浓度与时间关系(cpm/g 鲜样)Table 3 Concentration of ¹⁴¹Ce in different parts of snails as a function of time, (cpm/g, fresh sample)

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

总之, ¹⁴¹Ce 在水生生态系统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; ¹⁴¹Ce 进入水环境后, 将被水生动植物吸收、富集而影响其利用价值, 这应引起注意。

2.2 ¹⁴¹Ce 在模拟水生生态系统中的迁移模型

¹⁴¹Ce 在所论系统中的迁移模型可用池水-底泥-鱼-金鱼藻-螺蛳 5 分室模型原理求得。由于在模拟试验条件下, ¹⁴¹Ce 不会挥发和散失, 故所论系统是封闭的; 其次, 该 5 个分室中, ¹⁴¹Ce 量对时间的变化率是由 5 个总共含 20 个转移系数的微分方程构成的方程组, 欲求得各转移系数值相当困难, 但若忽略一些次要过程(图 1), 则问题将大为简化, 此时各分室中¹⁴¹Ce 量 q_i 对时间的变化率分别为:

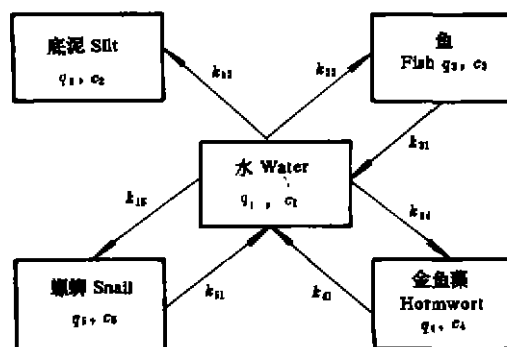


图 1 封闭 5 分室模型

Fig. 1 A closed five-compartment model

$$\frac{dq_1}{dt} = - \sum_{i=2}^5 k_{1i} q_1 + k_{21} q_2 + k_{31} q_3 + k_{41} q_4 + k_{51} q_5, \quad \frac{dq_2}{dt} = k_{12} q_1,$$

$$\frac{dq_3}{dt} = k_{13} q_1 - k_{31} q_3, \quad \frac{dq_4}{dt} = k_{14} q_1 - k_{41} q_4, \quad \frac{dq_5}{dt} = k_{15} q_1 - k_{51} q_5$$

利用初始条件 $t=0, C_{1,0} \neq 0, C_{i,0}=0 (i=2, 3, 4, 5)$, 和 $C_i = q_i/m_i$, 此处 C_i, q_i, m_i 分别为第 i 分室中¹⁴¹Ce 的浓度、活度及质量, 解得:

$$C_1 = C_{1,0} (Ae^{-a_1 t} + Be^{-a_2 t} + Ce^{-a_3 t} + De^{-a_4 t})$$

$$C_2 = \frac{C_{1,0} m_1}{m_2} (1 - \frac{k_{12} A}{a_1} e^{-a_1 t} - \frac{k_{12} B}{a_2} e^{-a_2 t} - \frac{k_{12} C}{a_3} e^{-a_3 t} - \frac{k_{12} D}{a_4} e^{-a_4 t})$$

$$C_3 = \frac{C_{1,0} m_1 k_{13}}{m_3} (\frac{A}{k_{31} - a_1} e^{-a_1 t} + \frac{B}{k_{31} - a_2} e^{-a_2 t} + \frac{C}{k_{31} - a_3} e^{-a_3 t} + \frac{D}{k_{31} - a_4} e^{-a_4 t})$$

$$C_4 = \frac{C_{1,0} m_1 k_{14}}{m_4} (\frac{A}{k_{41} - a_1} e^{-a_1 t} + \frac{B}{k_{41} - a_2} e^{-a_2 t} + \frac{C}{k_{41} - a_3} e^{-a_3 t} + \frac{D}{k_{41} - a_4} e^{-a_4 t})$$

$$C_5 = \frac{C_{1,0} m_1 k_{15}}{m_5} (\frac{A}{k_{51} - a_1} e^{-a_1 t} + \frac{B}{k_{51} - a_2} e^{-a_2 t} + \frac{C}{k_{51} - a_3} e^{-a_3 t} + \frac{D}{k_{51} - a_4} e^{-a_4 t})$$

这里:

$$A = \frac{(k_{31} - a_1)(k_{41} - a_3)(k_{51} - a_1)}{(a_3 - a_1)(a_3 - a_1)(a_4 - a_1)} \quad B = \frac{(k_{31} - a_2)(k_{41} - a_2)(k_{51} - a_2)}{(a_1 - a_2)(a_3 - a_2)(a_4 - a_2)}$$

$$C = \frac{(k_{31} - a_3)(k_{41} - a_3)(k_{51} - a_3)}{(a_1 - a_3)(a_2 - a_3)(a_4 - a_3)} \quad D = \frac{(k_{31} - a_4)(k_{41} - a_4)(k_{51} - a_4)}{(a_1 - a_4)(a_3 - a_4)(a_3 - a_4)}$$

而 a_1, a_2, a_3 及 a_4 为与转移系数有关的常数。

根据表 1 的数据, 并利用初始条件 $C_{1,0} = 822.0$ cpm/ml 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 ^{141}Ce 浓度随时间变化的数学模式分别为:

$$C_1 = 822.0(0.046 e^{-0.115t} - 0.085 e^{-2.105t} - 2.84 e^{-3.650t} - 3.70 e^{-4.550t});$$

$$C_2 = 6632.3(1 - 0.838 e^{-0.115t} - 0.084 e^{-2.105t} + 1.625 e^{-3.650t} - 1.703 e^{-4.550t});$$

$$C_3 = 3607.9 e^{-0.115t} - 8623.7 e^{-2.105t} + 103484.2 e^{-3.650t} - 98468.4 e^{-4.550t};$$

$$C_4 = 21495.5 e^{-0.115t} - 50855.2 e^{-2.105t} + 614456.2 e^{-3.650t} - 585096.5 e^{-4.550t};$$

$$C_5 = 2663.0 e^{-0.115t} - 6724.1 e^{-2.105t} + 79024.8 e^{-3.650t} - 74963.6 e^{-4.550t}$$

其中各转移系数(速率常数)为(d^{-1}):

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

由上述各数学模式即可计算出任一时刻系统各组分中 ^{141}Ce 的浓度,并可给出预测;此值与实验值比较,平均相对偏差30%左右,这主要是由于实验分析测量等过程中存在一定的误差,以及在建模过程中略去了一些次要过程。

2.3 水生生物对 ^{141}Ce 的浓集系数CF

水生生物对 ^{141}Ce 的富集能力可用浓集系数(或富集系数)CF来表示。其定义为:水生系统的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。实验结果见表4。

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叶具有巨大的比表面积有关。至于鱼和螺蛳,在6d前,鱼的CF值大于螺蛳的CF值,但之后,则相反;究其原因,前面有关 ^{141}Ce 在它们体内消长特点的分析讨论中已做了介绍。

3 主要结论

3.1 放射性铯进入水体后将在系统各组分间发生迁移、消长和分配。各组分中 ^{141}Ce 浓度与时间关系由多项指数描述,其中水中 ^{141}Ce 浓度随时间单调降低,而底泥基本上呈增高趋势;但随时间的延长,这种降低或增高逐渐趋缓。水生动植物中 ^{141}Ce 浓度则皆在经历某一最大值后逐渐降低。

表4 水生生物对 ^{141}Ce 的CF值与时间的关系
Table 4 CF Values of ^{141}Ce by aquatic organisms as a function of time

时间(d) Time	1/24	6/24	1	3	6	11	16	21	26	35
金鱼藻 Hornwort	39.4	116.0	521.2	405.5	589.7	957.2	989.8	158.7	273.0	1445.9
鱼 Fish	13.8	49.0	54.5	56.8	82.6	99.1	97.3	21.4	26.0	120.6
螺蛳 Snail	9.7	37.1	54.5	37.2	58.9	117.6	253.4	36.6	26.6	492.9

3.2 水体中 ^{141}Ce 的行为不仅与物理、化学因素有关,而且与生物因素有密切关系。在本研究条件下,具有巨大比表面积的金鱼藻能较强烈地富集 ^{141}Ce ,经一定时间之后,螺蛳的富集能力也较强。

参 考 文 献

- 1 冉 勇,刘 铮.土壤和氯化物对稀土元素的专性吸附及其机理.科学通报,1992,18:1708
- 2 [美]魏切尔F W.舒尔茨V著.俞普福等译.放射生态学(第一卷).北京:原子能出版社,1988.246~247
- 3 [美]魏切尔F W.舒尔茨V著.卜石等译.放射生态学(第二卷).北京:原子能出版社,1991.96~156
- 4 王寿祥,黄 丹,胡秉民等.核农学中的若干示踪动力学分室模型.生物数学学报,1992,7(4):79~82