柴达木盆地盐湖环境中 超铀元素的分布特征^{*}

韩凤清 黄麒 梁青生 刘建华 刘书田*

(中国科学院盐湖研究所 西宁 810008)
 [†](中国原子能科学研究院 北京 102413)

提要 1993 年采用α 谱仪和大面积屏栅电离室对柴达木盆地盐湖水、地下水、河水以及地 表和两个钻孔沉积物中的 U, Pu 和 Am 进行了测定。结果表明、各类水样中²³⁹Pu(含²⁴⁰Pu,下 同)的平均含量高出表层海水约 1 000倍,其²³⁹Pu/²³⁸U的活度比在 0.001-0.530 之间;两钻孔 沉积物中²³⁹Pu 的平均值分别为 4.9 ± 0.8mBq/g和 2.4 ± 0.5mBq/g,²³⁹Pu/²³⁸U的活度比为 0.141 和 0.088,由此探讨了 U, Pu 和 Am 的分布特征、²³⁹Pu/²³⁸U比值的变化规律以及沉积物和 水中 Pu 的来源。

关键词 超铀元素 分布特征 Pu的成因 柴达木盆地 学科分类号 P597

超铀元素,尤其是 U, Pu 和 Am 为半衰期较长和放射性强度很高的元素,其对人类放射性危害极大,因此国际卫生和环境保护组织对超铀元素的研究是非常重视的。此外, Pu 是研究海洋与湖泊的沉积过程、水体演化和混合作用很好的示踪元素。

目前对海洋(Masanobu, 1987)、海洋潮间带沉积物(Morris *et al*, 1996)、人体(Taylor, 1995)、湖泊(Joshi, 1995)、树轮(Garrec, 1995)和空气(Kolb, 1996)中超铀元素的分布及其分析化学方法(Holm *et al*, 1979; Robert *et al*, 1982)做了比较详细的研究,而对大陆盐湖中超铀元素的研究很少。

近年来作者对柴达木盆地各种水体、地表和钻孔湖相沉积物中 U, Pu 和 Am 等重放射 性同位素的分布特征及其来源进行了系统研究,这对探索自然界核反应形成的同位素的 分布与变化以及了解核试验对高原湖盆的污染程度均具有重要的意义。

1 研究方法

1.1 样品来源

盐湖卤水样取自察尔汗、大柴旦和尕斯库勒等盐湖;河水样取自格尔木河、香日德河、 鱼卡河和阿拉尔河;地下水取自尕斯库勒和昆特依盐湖区地下淡水;钻孔沉积物取自尕斯 库勒盐湖 ZK2605 孔和昆特依盐湖 ZK3208 孔;大柴旦温泉沟包括水样和碳酸盐泉华样 品。以上样品的取样位置见图 1。

^{*} 国家自然科学基金资助项目,49070136号。韩凤清,男,出生于1963年8月,副研究员,Fax:0086-0971-6146002 收稿日期:1997-05-09,收修改稿日期:1998-02-25





Fig.1 Distribution of salt lakes and sampling locations in Qaidam Basin
1. 盐湖; 2. 干盐湖; 3. 取样点; 4. 山区。 I. 察尔汗盐湖; I. 大柴达木盐湖; II. 马海盐湖;
IV. 昆特依盐湖; V. 查汗斯拉图盐湖; VI. 尕斯库勒盐湖

1.2 试剂和仪器设备

所用的化学试剂均为优级纯,所用的标准溶液和示踪剂由英国放射化学中心和美国 南加州大学提供。测定超铀元素放射性活度的仪器有:1)带 1024 道分析器的四路α谱仪; 2)大面积屏栅电离室。

1.3 样品的预处理和核素的分离与纯化

105℃烘干,在600℃下灰化60min,取样30g加示踪剂,用浓HNO₃+HF+HClO₄分解;石膏和碳酸盐取样25g加示踪剂后用稀HCl分解;石盐取样1000g,用去离子水溶解, 弃去水不溶物后加示踪剂;水样加示踪剂后用Fe(OH),共沉淀法富集超铀元素。

元素的分离和纯化按 Robert 等(1982)和 Holm 等(1979)的流程进行。按上述文献中步骤进行严格细致的操作,一般都能满足用萃取点滴法制备α薄源的纯度要求。

1.4 α 薄源制备及测量

将已纯化好的含 U, Pu 和 Am 的溶液蒸干,用稀硝酸溶解,转入离心管中,用稀氨水调 溶液的 pH, U溶液为 3.5, Am 为 4; Pu 为 1mol / L 的 HNO₃, 然后分别加 0.5mol / L 的 TTA-二甲苯溶液萃取,有机相与水相体积之比为 2 / 3, 萃取 5min 取有机相点到不锈钢片上, 灼 烧成α薄源,供多道α谱仪测定核素的放射性活度。测定时间: U 源为 2 000min, Pu 和 Am 源为 3 000min以上, 视源的强弱而定。

1.5 大面积屏栅电离室测定超铀元素

为保证研究结果的可靠性,还采用大面积屏栅电离室对盐湖沉积物中的超铀元素进行了测定,该方法与夏益华等(1985)的测定方法大体一致。

2 研究结果

ZK2605 和 ZK3208 孔沉积物、各类水体及大柴旦温泉沟石灰华中超铀元素的测试结 果列在表 1,2,3 中。表 1 括号中的数据是用大面积屏栅电离室测定的,它与多道α 谱仪测

521

| | | | | | |
 | | 海
 | | 洋
 | | 与 | | 湖 | | 沼 | | |

 | | | | | | | 29 ³ | 告 |
|-------------------|---|--|--|---|--
--	--
--|---
--|---|--|---------------|--|---------------|-------------------
--
---|--|---|--|---|--|---
---|--|
| В | | 0.260 | 0.085 | (0.120) | (0.058) | 0.040
 | 0.092 | (0.061)
 | (0.110) | 0.050
 | (0.076) | 0.150 | 0.071 | 0.097 | (0.102) | 0.065 | (0.110) | (0.130) | 0.096

 | (0.022) | 0.035 | 0.024 | | | 0.088 | 0.60 | |
| A | | 0.23 | | (0.08) | (0.05) | 0.12
 | | (0.02)
 | (0.05) |
 | (0.02) | 0.04 | | | (0.03) | | (0.04) | (0.03) |

 | (0.01) | 0.06 | | | | 0.04 | 1.46 | |
| ²¹⁸ Pu | | 0.68 | | (0:30) | (0.20) | 0.20
 | | (60.0)
 | (0:30) |
 | (0.05) | 0.20 | | | (0.13) | | (0.23) | (0.13) |

 | (0.10) | 0.10 | | | | 0.13 | 1.23 | |
| ²³⁹ Pu | | 2.9 ± 0.5 | 0.067 ± 0.020 | (3.7 ± 0.6) | (4.1 ± 0.8) | 1.7 ± 0.4
 | 0.012 ± 0.003 | (3.9 ± 0.9)
 | (5.8 ± 0.8) | 0.040 ± 0.010
 | (2.2 ± 0.4) | 5.6±0.7 | 0.024 ± 0.006 | 0.031 ± 0.008 | (4.8 ± 0.8) | 0.030 ± 0.008 | (5.2 ± 1.3) | (4. 8±1.2) | 2.6±0.5

 | (0.92 ± 0.3) | 1.6 ± 0.4 | 0.60 ± 0.2 | | | 2.4 ± 0.5 | 0.88 | |
| 2 ³⁴ U | | 11.3±1.1 | 0.79 ± 0.09 | (32±4) | (71±9) | 42 ± 3
 | 0.13 ± 0.02 | (64±8)
 | (51±6) | 0.81 ± 0.12
 | (29±3) | 37±2 | 0.34 ± 0.04 | 0.38 ± 0.08 | (47±2) | 0.46 ± 0.07 | (48±5) | (38±4) | 27±2

 | (41±5) | 45±5 | 25 ± 1.5 | | | 29±3 | 0.77 | |
| 坮柱 | | 熱砂 | 石盐 | 粘土 | 希土 | 粘土
 | 石盐 | 希土
 | 格土 | 石盐
 | 希士 | 粘土 | 石盐 | 石盐 | 石膏 | 石盐 | 希土 | 粘土 | 粘土

 | 粘土 | 希土 | 希土 | | | 平均值 | 异系数 | |
| 祭度
(m) | ZK3208 | 0.2 | 22.8 | 23.7 | 79.8 | 91.6
 | 96.2 | 98.4
 | 134.8 | 147.6
 | 183.2 | 198.6 | 236.6 | 250.4 | 276.6 | 300.1 | 320.2 | 336.5 | 365.4

 | 386.3 | 412.2 | 458.4 | | | | ŧX | |
| В | | 0.910 | (0.040) | 0.180 | (0110) | 0.130
 | (0.062) | 0.089
 | (0.110) | 0.095
 | (0.110) | 0.076 | (0.129) | 0.077 | (0.074) | 0.054 | (0.120) | 0.105 | (0.220)

 | 0.120 | (0.130) | 0.071 | (0110) | 0.110 | 0.141 | 1.22 | |
| × | | 0.20 | (0.03) | 0.07 | (0.07) | 0.10
 | (0.05) | 0.08
 | (0.08) | 0.06
 | (0.03) | 0.05 | (0.03) | 0.05 | (0.08) | 0.10 | (0.07) | 0.09 | (0.03)

 | 0.03 | (0.07) | 0.09 | (0.04) | 0.03 | 0.07 | 0.54 | |
| ²³⁸ Pu | | 0.78 | (0.15) | 0.25 | (0:30) | 0.20
 | (0.20) | 0:30
 | (0.29) | 0.30
 | (0.19) | 0.30 | (0.10) | 0.20 | (0.37) | 0.20 | (0.35) | 0.20 | (0.13)

 | 0.12 | (0.38) | 0.18 | (0.72) | 0.30 | 0.28 | 0.61 | 活度比 |
| ²³⁹ Pu | | 3.9 ± 0.8 | (5.0±1.2) | 3.8 ± 0.7 | (4.3±0.7) | 2.1±0.5
 | (3.7±0.9) | 3.9 ± 0.9
 | (3.8±0.6) | 5.2±0.9
 | (6.0±0.8) | 6.7±1.1 | (4.0±0.9) | 4.1 ±0.7 | (4.5±0.8) | 2.1 ± 0.4 | (4.9 ± 1.0) | 2.3 ± 0.4 | (3.9 ± 0.8)

 | 3.5±0.6 | (5.6±0.9) | 2.0 ± 0.5 | (18.±1.7) | 9.5±1.2 | 4.9 ± 0.8 | 0.67 | 的 ²³⁹ Pu/ ²³⁸ U的 |
| U*r2 | | 4 .3±0.7 | (115±12) | 21±1.2 | (40±4) | 16±1.1
 | (60±8) | 44±5
 | (35±4) | 55±8
 | (55±6) | 88±8 | (31±4) | 53±6 | (61±7) | 39 ± 3 | (42±5) | 22±1.5 | (18±2)

 | 29±2 | (42±4) | 28 ± 2 | (171±20) | 85±9 | 50±5.4 | 0.73 | 表 ²³⁸ Pu/ ²³⁹ Pu |
| ₩
¥ | | 物砂 | 粘土 | 格士 | 有青 | 石膏
 | 看書 | 石膏
 | 淤泥 | 石膏
 | 石膏 | 粘
士 | 中段 | 中砂 | 中砂 | 中砂 | 乾砂 | 物砂 | 税砂

 | 教政 | 物砂 | 物砂 | 物砂 | 粉砂 | 9 値 | 系数 | IB分别代 |
| 梁度
(m) | ZK2605 | 22.3 | 50.5 | 79.1 | 100.6 | 122.9
 | 147.8 | 168.4
 | 204.0 | 233.5
 | 261.0 | 288.1 | 319.5 | 348.3 | 389.6 | 408.7 | 445.1 | 485.7 | 516.6

 | 550.5 | 6.169 | 634.6 | 667.4 | 692.2 | 平 井 | 变异灵 | 注: A和 |
| | 凝度 岩性 ^{21%} U ^{21%} Pu ^{21%} Pu ^{21%} Pu A B 探度 岩性 ^{21%} U ^{21%} Pu A B (m) | 深度 岩性 ²¹⁸ U ²¹⁹ Pu ²¹⁹ Pu ²¹⁹ Pu A B 深度 岩性 ²¹⁴ U ²¹⁹ Pu A B
(m) ZK2605 ZK3208 | 深度 岩性 ²¹⁸ U ²¹⁹ Pu ²¹⁹ Pu ²¹⁹ Pu ²¹⁹ Pu ²¹⁸ Pu ²¹⁸ Pu ²¹⁶ Pu ²¹⁶ Pu ^A B
(m) 岩性 ²¹⁸ U ²¹⁹ Pu ²¹⁶ Pu ^A B
ZK2605
22.3 粉砂 4.3±0.7 3.9±0.8 0.78 0.20 0.910 0.2 粉砂 11.3±1.1 2.9±0.5 0.68 0.23 0.260 | 深度
(m) (m) ²³⁸Pu ²³⁹Pu ²³⁸Pu ²³⁸Pu ²³⁹Pu ²³⁰Pu ²³⁹Pu ²³⁹Pu ²³⁹Pu ²³⁹Pu ²³⁹Pu ²³⁹Pu ²³⁰Pu ²³⁹Pu ²³⁰Pu ²³⁰Pu ²³⁰Pu ²³⁰Pu ²³¹Pu ²³⁹Pu ²³¹Pu ²³⁹Pu ²³⁰Pu ²³⁰⁰Pu ²³¹Pu ²³¹Pu | 深度
(m) 岩性 ²¹⁸ U ²¹⁸ Pu ²¹⁸ Pu ²¹⁸ Pu ²¹⁸ Pu ²¹⁸ Pu ^A B
(m) 岩性 ²¹⁸ Pu ²¹⁸ Pu ^A B
(m) ²¹⁸ Pu ²¹⁸ Pu ^A B
(m) ²¹⁸ Pu ²¹⁸ Pu ^A B
(m) ²¹⁸ Pu ²¹⁸ Pu ²¹⁸ Pu ²¹⁸ Pu ²¹⁸ Pu ²¹⁸ Pu ²¹⁹ Pu ²¹⁹ Pu ²¹⁹ Pu ²¹⁹ Pu ²¹⁹ Pu ²¹¹ Pu | 聚度 活性 ²¹⁸ U ²¹⁸ Pu ²¹⁹ Pu ²¹⁸ Pu ²¹⁹ Pu ²¹⁰ Pu ²¹¹ Pu ²¹⁰ Pu ²¹¹ Pu ²¹ | 聚度 活性 ²¹⁸ 比 ²¹⁸ 比 ²¹⁸ Pu ²¹⁹ Pu ²¹⁹ Pu ²¹⁹ Pu ²¹⁹ Pu ²¹⁶ Pu ² | 陳度 活性 ²¹⁸ U ²¹⁹ Pu ²¹⁶ Pu ²¹ | 深度 岩性 ²¹⁸ U ²¹⁹ Pu ²¹⁸ Pu ²¹⁹ Pu ²¹¹ Pu ²¹¹¹ Pu ²¹¹ P | 深度 活性 ²¹⁸ U ²¹⁹ Pu | 凝度凝焦 28 U 29 Pu 28 Pu 28 Pu 28 Pu 28 Pu 29 Pu 28 Pu | 深度 光性 ²³ U ²³ Pu | 深度 深度 深度 「川 ¹³⁹ Pu ¹³⁹ Pu ^{218}Pu | 戦援 ¹³ U ¹³ Pu ¹ | | 一般性 ³¹ U ³¹ Pu ³¹ Pu ³¹ Pu ³¹ Pu A B (m) ³¹ Pu ³¹ Pu ³¹ Pu ³¹ Pu ³¹ Pu ³¹ Pu A B ZX2605 X | | | \overline{WR} \overline{H} 30 <t< td=""><td>WE 3^{-1}L $3^{$</td><td>W/II 13H 113H 1^{114}H 1^{113}H 1^{114}H 1^{113}H 1^{113}H 1^{113}H 1^{113}H 1^{113}H 1^{113}H 1^{113}H 1^{113}H</td><td>KE 10 11 $^$</td><td>\overline{WR} 11 <</td><td>WR 3 3</td><td>\overline{WR} \overline{T} \overline{T}</td><td>WE 3 M_1 3 M_1</td><td></td></t<> | WE 3^{-1} L $3^{$ | W/II 13 H 113 H 1^{114} H 1^{113} H 1^{114} H 1^{113} H | KE 10 11 $^$ | \overline{WR} 11 < | WR 3 | \overline{WR} \overline{T} | WE 3 M_1 | |

© 1994-2013 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cr

定的结果在误差范围内是一致的,表明测定结果是可信的。

表2 大柴旦温泉沟石灰华中U和Pu的含量(mBq/g)

140.2	Content (InDq/g) of O	and i'u ni uaverune ne	an riot spring Guily,	Ducurdun
 岩性	²³⁸ U	²³⁹ Pu	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu/ ²³⁸ U
 石灰华	18±0.9	5.0±0.7	0.30	0.28
石灰华	22 ± 1.1	5.4 ± 0.7	0.20	0.25
石灰华	56 ± 2.8	15.0 ± 2.0	0.50	0.27
石灰华	21 ± 1.3	14.0 ± 2.0	0.40	0.67
平均值	29 ± 2.0	9.9 ± 2.0	0.35	0.34

Tab.2 Content (mBq/g) of U and Pu in travertine from Hot-spring Gully, Dacaidan

表3 柴达木各水体中U, Th, Am, Pu的含量(mBq/L)

fab.3	Content	(mBa/L)	of	U.	Th.	Am	and	Pu	in	Qaidam	Basin's	water
-------	---------	---------	----	----	-----	----	-----	----	----	--------	---------	-------

地点	水型	²³⁸ U	²³² Th	²³⁹ Pu	²⁴¹ Am	²³⁹ Pu/ ²³⁸ U
察尔汗	溶洞水	5.8±0.5		3.1±0.3	1.4±0.2	0.534
察尔汗	盐湖水	458 ± 23		5.7±0.5	0.27 ± 0.1	0.012
察尔汗	老卤水	490±25	0.72 ± 0.11	16.7±1.5	0.92 ± 0.2	0.034
尕斯库勒	盐湖水	5380 ± 270	1.20 ± 0.15	4.6 ± 0.5	4.5 ± 0.6	0.001
尕斯库勒	盐湖水	4080 ± 204	0.35±0.10	9.1 ± 0.8	3.2 ± 0.5	0.002
大柴旦	盐湖水	3110 ± 150	0.40 ± 0.09	3.0 ± 0.3	2.4 ± 0.4	0.001
小柴旦	盐湖水	672 ± 40	0.23 ± 0.07	9.6 ± 0.8	3.1±0.4	0.014
平均	值	2028±101	0.58 ± 0.11	7.4±0.6	2.26 ± 0.27	0.085
香日德	河 水	529 ± 26	43±5	19.7±2		0.037
冷湖镇	井 水	573 ± 28	3.0 ± 0.4	2.1 ± 0.3		0.004
阿拉尔	河 水	806±31		9.2±0.9		0.011
尕斯库勒	井 水	302 ± 21		7.6 ± 0.6		0.025
鱼卡	河 水	158±13		6.5 ± 0.6		0.041
大柴旦	温泉水	74±7		6.7 ± 0.6		0.091
格尔木	河 水	498 ± 24		3.5±0.4		0.007
平均	值	420±25		7.9±0.8		0.031

2.1 柴达木盆地超铀元素的分布特征

2.1.1 柴达木盆地各类水体中超铀元素的分布特征 从表 3 中可见,盐湖卤水中的 Th 含量在 0.23—1.20mBq/L之间,平均为 0.58 ± 0.11mBq/L;²³⁸U含量在 5.8—5 380mBq/ L之间变化,平均为 2 028 ± 101mBq/L;²³⁹Pu含量在 3.0—16.7mBq/L之间,平均值为 7.4 ± 0.6mBq/L;²⁴¹Am 的含量在 0.27—4.5mBq/L之间,平均为 2.26 ± 0.27mBq/L; ²³⁹Pu/²³⁸U的活度比在 0.001—0.53 之间,变化很大。

淡水中 U含量在 74—806mBq/L之间,平均为 420 ± 25mBq/L; ²³⁹Pu 含量在 2.1— 19.7mBq/L之间,平均为 7.9 ± 0.8mBq/L; ²³⁹Pu/²³⁸U活度比平均值为 0.031; ²⁴¹Am 含量 低于检测限。Masanobu(1987)对西太平洋和东印度洋表层海水中的²³⁹Pu 进行了测定,其 值在 4—7(×10⁻³)mBq/L之间,而日本海表层水的²³⁹Pu 在 10—34(×10⁻³)mBq/L之 间,可见柴达木盆地各类水体中的²³⁹Pu 含量比大洋表层海水高出 1 000倍左右。

2.1.3 盐湖钻孔沉积物中超铀元素的分布特征 ZK2605 孔位于柴达木盆地西部尕斯 库勒盐湖干盐滩上,井深为 700.4m; ZK3208 孔位于柴达木盆地西北部昆特依干盐湖中心, 井深为 500.9m。

ZK2605 孔沉积物中²³⁸U, ²³⁹Pu, ²³⁸Pu, ²³⁹Pu/²³⁸U和²³⁸Pu/²³⁹Pu均值比 ZK3208 孔高1倍 左右,表明尕斯库勒盐湖人工核素和天然核素的放射性水平比昆特依盐湖要高;两钻孔中 ²³⁸U和²³⁹Pu的变异系数却差不多,表明其含量变化程度在不同盐湖是类似的; ZK2605 孔 ²³⁹Pu/²³⁸U的变异系数比 ZK3208 孔大1倍,而 ZK2605 孔²³⁸Pu/²³⁹Pu的变异系数比 ZK3208 孔小1倍,显示²³⁹Pu,²³⁸Pu和²³⁸U三核素成因在不同地区有较大的差异。ZK3208 孔石盐和粘土沉积物中²³⁹Pu和²³⁸U含量相差约100倍,但其²³⁹Pu/²³⁸U活度比是相近的,表 明昆特依盐湖石盐和粘土沉积物中²³⁹Pu 和²³⁸U的成因与来源是相同的。

ZK2605 孔²³⁹Pu / ²³⁸U 和²³⁸Pu / ²³⁹Pu 活度比最大值 0.910 和 0.20 均发现于地下 22.3m 处的碎屑物中,由此可见该区核试验污染已到达地表下 22m 左右。上述活度比最大值在 ZK3208 孔中出现于离地表 0.20m 粉砂中,显然昆特依盐湖区的核污染垂直深度和水平要 低于尕斯库勒盐湖区,这与尕斯库勒盐湖区周围有许多水源冲刷带人和地理上更靠近塔 里木盆地有关。

2.2 柴达木盆地超铀元素的来源

地表沉积物中 Pu 的来源共有 3 类: 天然核反应、人工核试验以及核事故。Seaberg (1948)最早发现天然核反应形成的 Pu, 紧接着 Levine 等 (1951)对自然界中的²³⁹Pu 进行了 研究。Davis 等 (1962)测出沥青铀矿中²³⁹Pu / ²³⁸U质量比为 2.8 ± 0.3 (×10⁻¹²); Myers 等 (1971)测得沥青铀矿中²³⁹Pu / ²³⁸U质量比为 3.11×10⁻¹²; 梁卓成 (1982)测出沥青铀矿的 ²³⁹Pu / ²³⁸U质量比的均值为 1.15×10⁻¹², 此值似稍低一些。Черпынцев等 (1968)对非铀矿 石中²³⁹Pu / ²³⁸U比值变化进行了研究: 近代火山岩铁锰矿物中的²³⁹Pu / ²³⁸U质量比平均值 为 1.8×10⁻⁶, 洋底锰结核为 5.5×10⁻⁸, 陨石中为 1.25×10⁻⁶。此文虽发表在核试验高 峰期 (1963—1965)后的 1968年, 但那时核试验形成的²³⁹Pu 仅污染了地表物质, 而洋底锰 结核和深部火山物质基本未受污染, 因此这个结果代表了非铀矿石中天然核反应形成的 ²³⁹Pu / ²³⁸U的比值。ZK2605 孔 50.5—682m 间²³⁹Pu / ²³⁸U的平均质量比为 5.2±1.2(×10⁻⁷), ZK3208 孔 22.8—454.3m 间²³⁹Pu / ²³⁸U的平均质量比为 4.4±1.3(×10⁻⁷); 两钻孔 平均值为 4.8×10⁻⁷, 这与Черпынцев等 (1968)的结果相似。

自然界中的²³⁹Pu 主要是通过²³⁸U的中子俘获形成的。天然核反应不仅能形成²³⁹Pu,而 且通过中子俘获能形成²³⁸Pu。从表层到地下 682m 的钻孔样品中都能探测到²³⁸Pu 的存在: 在 ZK2605 孔中²³⁸Pu / ²³⁹Pu 的活度比值为 0.053, ZK3208 孔为 0.035, 由此可见地球上确实 存在由天然核反应形成的²³⁸Pu。

525

在地球上有没有²⁴⁴Pu(半衰期为 7.6×10⁷a)存在是一个很有意义的问题。Levine 等 (1951)报道在独居石中发现有²⁴⁴Pu,并估计其含量为矿石的 1/(3.6×10¹¹);Hoffman 等 (1971)采用高灵敏度的质谱仪测定了氟碳铈镧矿中的²⁴⁴Pu,含量为 1.0×10^{-18} 。作者在实 验中也发现了²⁴⁴Pu 的 α 谱峰存在,表明地球的原始物质中很可能存在²⁴⁴Pu。

根据 Pu 在岩石、水体和沉积物中的垂直分布及其与 U, Am 等元素的关系,结合国内 外已发表的资料(Levine, 1951; Davis, 1962; Myers, 1971; 梁卓成, 1982; Чердынцев и. д., 1968),得出以下判别两种成因 Pu 的依据。

2.2.1 核试验形成的 Pu 在垂直分布中有一定的极限深度,它主要受地理环境、岩石和沉积物的性质、搬运 Pu 介质的动力等因素控制,其含量分布是不均匀的,往往有一高峰期 (即 1963 年核试验高峰期产物);天然核反应形成的 Pu,在同一类物质中的含量分布是比较均匀的。

核试验和核事故产生的 Pu 与样品中的²³⁸U含量没有相关性,因此²³⁹Pu/²³⁸U比值变化 很大且无规律;天然核反应形成的²³⁹Pu 与²³⁸U有很好的相关性,对于同一地区的同类物 质,²³⁹Pu/²³⁸U的比值近似于常数。

2.2.2 以核试验为主形成的²³⁹Pu 裂变产物与²⁴¹Am,⁹⁰Sr 和¹³⁷Cs 等同位素共生, 而天然核反 应形成²³⁹Pu 的样品中上述同位素含量均小于检测限。

根据柴达木盆地 Pu 的分布特征、²³⁹Pu 与²³⁸U 和²⁴¹Am 的相关性、沉积物的岩性、石盐 及石膏的成因与保存状况、卤水和地下水的运行以及 Pu 的地球化学特性,认为:该区各类 水体和地表沉积物中的 Pu 主要来源于核试验和核事故的产物,少量来源于天然核反应 和该盆地内岩石矿物的风化产物;距地表 22m 以下化学沉积物和碎屑沉积物中的²³⁹Pu 和 ²³⁸Pu 主要是天然核反应形成的产物。

3 结论

3.1 盆地中各水体和地表沉积物中²³⁸U,²³⁸Pu,²³⁹Pu 和²⁴¹Am 含量均很高,且²³⁹Pu/²³⁸U的 比值变化很大,²³⁸U和²³⁹Pu的相关性很差。根据前述研究得出的判别依据认为U主要来源 于地下水和盆地内岩石风化产物,²³⁸Pu,²³⁹Pu 和²⁴¹Am 主要是人工核试验的裂变产物。

3.2 两个钻孔 22m 以下的岩芯沉积物中,虽各沉积物的含量变化很大,但²³⁹Pu/²³⁸U的比 值变化很小,其平均质量比为 4.8 × 10⁻⁷,²⁴¹Am 含量在检测限以下。根据地层良好的封闭 性,石盐和石膏为原生矿物以及共生元素的相关性等特征,认为其中的 Pu 主要是天然核 反应以及岩石风化的产物,U的来源与水体是相同的。

3.3 天然核反应不仅能形成²³⁹Pu,而且能形成²³⁸Pu,同时在类似柴达木盆地具有数百万年 演化史的高原湖泊沉积物中可能赋存有²⁴⁴Pu。

参考文献

梁卓成 1982. 我国铀矿石中的²³⁹Pu. 科学通报, 27(2):98-101

夏益华 刘玉莲 杨大亭等,1985. 大面积α屏珊电离室的研制. 辐射与防护,5(3):176-183

Davis W D, 1962. Plutonium-239 in the nature. Geochim Cosmochim Acta, 26:681

Garrec J P, 1995. Plutonium in the tree ring of Japan and France. Appl Radi Isot, 46(11):1 271-1 278

Hoffman D C, Lawrence F G, Mewherter J L et al, 1971. Detection of plutonium-244 in nature. Nature, 234:132-134

Holm E, Ballestra S, Fukai R, 1979. A method for ion-exchange separation of low levels of americium in environmental materials. Talanta, 26:791-794

Joshi S R, 1995. Plutonium in the Lake Ontario. Appl Radi Isot, 46(11):1 231-1 238

Kolb W, 1996. Thorium, Uranium and Plutonium in surface air at Vardo. J Env Radioact, 31(1):1-6

Levine C A, Seaberg G T, 1951. The occurence of plutonium in nature. J Am Chem Soc, 73: 3 278-3 283

Masanobu Sakanoue, 1987. Transuranium nuclides in the environment. Radiochim Acta, 42:103-120

Morris K, Livens F R, 1996. The distribution of transuranic elements in sedimentary profiles from an intertidal area in West Cumbria, UK Radiochim Acta, 74:195---198

Myers W A, 1971. Plutonium-239 in the nature. Inorg Nud Chem, 33: 3 233-3 266

Robert F A, Alan P F, 1982. Determination of natural actinides and plutonium in marine particulate material. Anal Chem, 54:1142-1147

Seaberg G T, Perlman M L, 1948. Search for elements 93 and 94 in nature: Presence of 94²³⁹ in pitchblende. J Am Chem Soc, 70: 1571-1573

Taylor D M, 1995. Environmental plutonium in humans. Appl Radi Isot, 46(11):1 245-1 252

Чердынцеввв, зверевв ВЛ, Купцов ВМ идр, 1968. Плутонии-239 Вприроде. Геохимия, 4:395-401

DISTRIBUTION PATTERNS OF TRANSURANIUM IN SALT LAKE ENVIRONMENTS IN QAIDAM BASIN, NORTHWEST CHINA

HAN Feng-qing, HUANG Qi, LIANG Qing-sheng, LIU Jian-hua, LIU Shu-tian[†]

(Institute of Salt Lakes, The Chinese Academy of Sciences, Xining, 810008) [†](Institute of Atomic Energy of China, Beijing, 102413)

Abstract In 1993, U, Pu, Am contents were determined by alpha spectrometry and a large-area screen-grid chamber, for fresh waters (river, well, hot spring and underground waters), salt lake brines and sediments from Qaidam Basin, northwest China. The average contents of transuranium and their variations (represented by the data in parentheses) are as follows: 1) 238 U: 2028(5.8–5 380) mBq / L in brines, 420(74–806) mBq / L in fresh waters, 50(4.3–171) mBq / g in the sediments of Gasikule Salt Lake (SGSL) and 29(0.13–71) mBq / g in the sediments of Kunteyi Salt Lake (SKSL); 2) 239 Pu: 7.4(3.1–16.7) mBq / L in brines, 7.9 (2.1–19.7) mBq / L in fresh waters, 4.9(2.0–18.0) mBq / g in SGSL and 2.4(0.012–5.8) mBq / g in SKSL; 3) 239 Pu / 238 U average active ratios: 0.085(0.001–0.53) in brines, 0.031(0.004–0.091) in fresh waters, 0.141(0.040–0.91) in SGSL and 0.088(0.022–0.26) in SKSL; 4) 238 Pu: 0.35(0.20–0.50) mBq / g in travertine, 0.28(0.10–0.78) mBq / g in SGSK and 0.13(0.05–0.68) mBq / g in SKSL; and 5) 241 Am: 2.26(0.27–4.5) mBq / L in brines.

Pu in the various waters and salt lake's top layer sediments (within 22m from the bed) originates mainly from nuclear tests and accidents, on the contrary, Pu in salt lake's bottom layer sediment (22m below the bed) is mainly from nature nuclear reaction. U in the various waters and sediments is derived from chemical weathering of rocks and minerals around Qaidam Basin. Key words Transuraniums Distributional characteristics Origin of Pu Qaidam Basin Subject classification number X597