

$^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比法判定人工放射性核素来源探讨

雷震, 金玉仁, 甘宗煜, 田自宁, 申茂泉, 何希

(西北核技术研究所, 陕西 西安 710024)

摘要: 活度比的方法通常被用于进行年代学测量, 但用来判定放射性核素的来源并不多见。本工作通过比较相关区域 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 的活度比, 分析判断汇水区人工放射性核素的来源。结果表明: 该汇水区人工放射性核素主要来源于 B 区。用 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比法判定人工放射性核素的迁移来源比较简单、直接。

关键词: 活度比; 放射性; $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比法

中图分类号: TL942.1 文献标志码: A 文章编号: 1000-6931 (2010) S0-0579-04

Determining Origin of Artificial Radionuclide by Using $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ Activity Ratio Method

LEI Zhen, JIN Yu-ren, GAN Zong-yu, TIAN Zi-ning, SHEN Mao-quan, HE Xi

(Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China)

Abstract: The activity ratio method is usually applied on chronology measurement, but rarely used to determine the origin of radionuclide. The $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ activity ratios of the relevant regions were compared to analyze the source of the artificial radionuclide at the catchments. The research result shows that the artificial radionuclide of the catchments mainly comes from B zone. The $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio method is easy and effective to determine the source of the artificial radionuclide.

Key words: activity ratio; radioactivity; $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio method

活度比 (如 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ^[1]、 $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ ^[2]、 $^{210}\text{Pb}/^{220}\text{Ra}$ ^[3]、 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ ^[4]、 $^{228}\text{Ra}/^{232}\text{Th}$ ^[4]等) 多用于地球化学、地质年代学中进行时间测量。另外, 文献[5]采用分析 $^{135}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$ 活度比的方法对核试验进行核查, 文献[6]利用 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 活度比来表征全球沉降, 但用 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比方法来判定人工放射性核素的迁移来源在国内外文献中尚不多见。

在实际工作中, 需要判定 1 个毗邻 A、B 两个区域的某戈壁汇水区人工放射性核素的来

源。本工作使用 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比方法判定 ^{241}Am 、 ^{137}Cs 的来源。

1 实验方法

某汇水区毗邻 A、B 两个区域, 位于 A 区东约 24 km、B 区西南约 20 km 处, 且与 B 区有 1 条河道相连。除全球沉降外, 该汇水区人工放射性核素的主要来源有可能是 A 区、B 区或 A 区和 B 区。

为了判定该汇水区人工放射性核素的迁

移来源,在该汇水区、A区、B区、河道等区域用剖面法采集土壤样品,取样布点图示于图1。在汇水区采集了2组分层样品,分别是HS1、HS2;在A区采集了3组样品,分别是A1~A3;在B区采集了5组样品,分别是B1~B5;在A区和汇水区的中间地段采集了1组样品,为AHS;在河道采集了7组样品,分别是HD1~HD7。HD1~HD7样品的取样地点距离汇水区分别为2、4、6、9、12、15、18 km。HD7样品的取样地点靠近B区域;HD1样品的取样地点靠近汇水区。HD6样品的取样处河道最宽,约为1 km,落差很小,地势平坦;其他河道样品的取样地点河道较窄,约为150 m。样品过8目筛(进行过筛修正),烘干温度为110 °C,烘干时间为5 h,样品盒规格为 $\phi 75 \text{ mm} \times 25 \text{ mm}$ 。

使用HPGe γ 谱仪对土壤样品进行测量,该 γ 谱仪在122 keV处的FWHM为0.69 keV;在1332.5 keV处的FWHM为1.70 keV。分别测量每个样品的59.5、662 keV γ 能峰计数率,得到样品的 ^{241}Am 、 ^{137}Cs 的比活度,从而得到样品的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比。

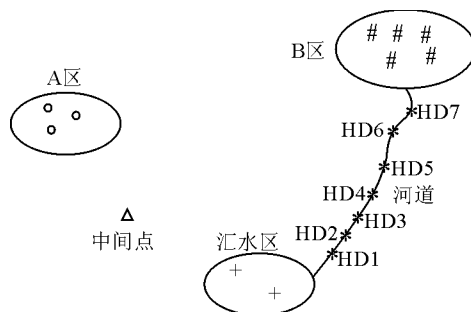


图1 取样布点

Fig. 1 Sampling locations

2 结果与讨论

2.1 样品测量结果

采集到的样品总共为18组,经 γ 谱仪测量后得到 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比测量结果(表1)。

2.2 汇水区的人工放射性核素来源

对汇水区样品的 ^{241}Am 、 ^{137}Cs 和全球沉降形成的 ^{241}Am 、 ^{137}Cs 、其它样品的 ^{241}Am 、 ^{137}Cs 进行分析比较,判定 ^{241}Am 、 ^{137}Cs 的来源,从而判定汇水区的人工放射性核素来源。

表1 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比测量结果

Table 1 Result of $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio

样品号	$^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$	活度比	活度比
	活度比	标准偏差	平均值
A1	1.291	0.191	1.502
A2	1.664		
A3	1.551		
B1	0.648	0.105	0.636
B2	0.607		
B3	0.737		
B4	0.691		
B5	0.498		
AHS	1.993		
HS1	0.061	0.019 8	0.047
HS2	0.033		
HD1	0.096 8		
HD2	0.093 1		
HD3	0.097 0		
HD4	0.262		
HD5	0.441		
HD6	0.607		
HD7	0.566		

1) 局部沉降和全球沉降

汇水区人工放射性核素的迁移来源有局部沉降和全球沉降两种。 ^{137}Cs 全球释放量约为948 PBq, ^{240}Pu 的全球释放量约为4.35 PBq, ^{239}Pu 的全球释放量约为6.52 PBq^[7],得到 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 活度比约为0.011 5,全球沉降的 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 活度比约为0.43^[6],从而可推算出全球沉降的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比约为0.005。汇水区样品 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比大约是全球沉降的10倍,远高于全球沉降的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比。可以判定,汇水区人工放射性核素的主要迁移来源是局部沉降,不是全球沉降。

2) A区和B区的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比分析

A区的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比平均值约为汇水区样品的30倍;B区的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比平均值约为汇水区样品的10倍;A区和汇水区的中间地段样品AHS的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比约为汇水区样品的40倍。

A区 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比和汇水区的差异远大于B区和汇水区的差异,AHS的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$

活度比和汇水区的差异最大，且 A 区和汇水区之间无河道相连，无处于汇水区的上风方向。初步判断，A 区不是汇水区人工放射性核素的主要迁移来源。

B 区 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比和汇水区的差异也较大，但 B 区和汇水区有河道相连，需分析河道段的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比分布，从而判定汇水区的人工放射性核素的来源。

3) 河道段的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比分析

河道样品 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比分布示于图 2。

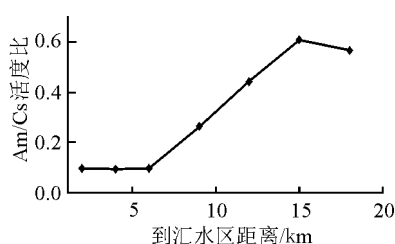


图 2 河道样品的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比分布

Fig. 2 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio distribution of riverway samples

由图 2 可知，距离 B 区由近至远的河道段， $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比先升高后降低，在距离汇水区 15 km 的河道段处， $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比达到最大，在靠近汇水区河道段处 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比最小。河道段样品 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比分布的总体趋势是距离 B 区越远的河道段 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比越小。形成河道段 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比分布的原因是：当含有核素的水流过土壤（岩石）时，发生复杂的物理化学过程，产生吸附、沉淀等过程^[8]。 ^{241}Am 、 ^{137}Cs 在河道中迁移的距离越长，吸附、沉淀越多，迁移到远端的 ^{241}Am 、 ^{137}Cs 越少。

B 区不同粒级的土壤样品对应的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比列于表 2。从表 2 可知，小颗粒土壤样品粒度越小， $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比越小，而小颗粒土壤更易迁移到远端，故远端的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比小；距离汇水区 15 km 的河道段处河道宽阔，地势平坦，大粒径的沙石更容易沉积，故此处的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比最高。

表 2 B 区不同粒级的土壤样品对应的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比

Table 2 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio with soil sample of different particles size classification in B zone

粒径/mm	$^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比				
	samp01	samp02	samp03	samp04	samp05
<0.002	0.2	0.1	0.1	0.1	0.1
0.002~0.005	0.3	0.2	0.1	0.1	0.1
0.005~0.01	0.3	0.3	0.2	0.1	0.1
0.010~0.015	0.3	0.4	0.2	0.1	0.1
0.015~0.05	0.4	0.6	0.3	0.1	0.1
0.05~0.1	0.5	0.6	0.4	0.1	0.1
0.1~0.25	0.6	0.8	0.5	0.2	0.4
0.25~0.5	0.7	0.9	0.6	0.6	0.7
0.5~1	0.7	0.9	0.8	0.5	0.6
1~2	0.7	0.9	0.9	0.5	0.6
2~5	0.7	0.9	0.9	0.3	
5~10	0.6	0.9	0.7		
10~20	0.6	1.5	0.7		
>20	0.6	1.6	0.6		

注：“samp”系列样品为砂土形态，粒度分级后分别测量其 ^{241}Am 和 ^{137}Cs 的比活度得到 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比

用秩和检验法判断靠近 B 区河道段的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比和 B 区的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度

比有无显著性差异（表 3），分析靠近 B 区河道段的人工放射性核素是否来源于 B 区。

假设靠近 B 区河道段和 B 区的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比两组数据无显著性差异, 统计量 $T=2+3.5=5.5$; 查秩和检验表, 得到 T 的下限 (显著性水平 $\alpha=5\%$) $T_{\alpha}'=3$, 上限 $T_{\alpha}''=13$, $T_{\alpha}'<T<T_{\alpha}''$, 认为假设成立, 靠近 B 区河道段和 B 区的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比两组数据无显著性差异, 认定靠近 B 区河道段的人工放射性核素来源于 B 区。

表 3 两组数据的秩

秩	B 区的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 比	靠近 B 区河道段的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 比
1	0.498	
2		0.566
3, 4	0.607	0.607
5	0.648	
6	0.691	
7	0.737	

注: 数据 0.607 为两组数据均有, 排在 3、4 两个序位, 其秩为 $(3+4)/2=3.5$

靠近汇水区河道段 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比和汇水区的最为接近, 但是用秩和检验法判断, 靠近汇水区河道段的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比和汇水区的存在显著性差异。根据河道段 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比分布的总体趋势, 取样地点没有足够靠近汇水区是存在上述显著性差异的原因, 足够靠近汇水区河道段的 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比和汇水区的应该没有显著性差异。因此, 认定汇水区的人工放射性核素来源于靠近汇水区的河道段。

以上分析表明: B 区的人工放射性核素经过该河道搬运, 最终沉积在汇水区。

3 结论

在本研究工作中, 采用比较和分析相关区

域活度比 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比的方法, 从而判断汇水区人工放射性核素的来源。 $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ 活度比法用来判定人工放射性核素的迁移来源是简单可行的。

参考文献:

- [1] MIYAKE Y, SUGIMURA Y, MAYEDA M. The uranium content and the activity ratio $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ in marine organisms and sea water in the Western North Pacific[J]. Journal of the Oceanographical Society of Japan, 1970, 26: 123-129.
- [2] LI Yuanhui, FEELY H W, SANTSCHI P. ^{228}Th - ^{228}Ra radioactive disequilibrium in the New York bight and its implications for coastal pollution[J]. Earth and Planetary Science Letters, 1979, 42: 13-26.
- [3] ZWANENBURG C S E K C T, SMITH J N. $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ determination of longevity in redfish[J]. Can J Fish Aquat Sci, 1990, 47: 163-165.
- [4] SANTOS R N, MARQUES L S. $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ and $^{228}\text{Ra}/^{232}\text{Th}$ activity ratios of cameroon volcanic line: Investigation of secular radioactive disequilibrium in the ^{238}U and ^{232}Th decay series[C] // IV South American Symposium on Isotope Geology. [S. l.]: [s. n.], 2002: 675-678.
- [5] ZHANG Hui. Off-site air sampling analysis and northkorean nuclear test[C] // Institute for Nuclear Materials Management 48th Annual Meeting. [S. l.]: [s. n.], 2007: 1-7.
- [6] 李书绅, 王志明. 核素在非饱和黄土中迁移研究[M]. 北京: 原子能出版社, 2003.
- [7] SYARBAINI S Y. Global fall out of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in the environment of serpong atomic energy research establishment[J]. Kembali ke journal, 2000, 26: 61-71.
- [8] 任天山, 程建平. 环境与辐射[M]. 北京: 原子能出版社, 2007.