

高等教育试用教材

核环境学基础

宋妙发 主编
强亦忠 主审
陈 式

原子能出版社

X125

高等教育试用教材

核环境学基础

主编 宋妙发 强亦忠 主审 陈 式

编者 张锦由 张永兴
朱南康 高宏成
孙占学 袁光钰

原子能出版社

北 京

图书在版编目(CIP)数据

核环境学基础/宋妙发,强亦忠主编. —北京:原子能出版社,1999.12

高等教育试用教材

ISBN 7-5022-2127-1

I. 核… II. ①宋…②强… III. 辐射环境-环境保护-高等教育-教材 IV. X21

中国版本图书馆 CIP 数据核字(1999)第 53854 号

内 容 简 介

本书全面系统地论述了环境中天然与人工辐射的来源、分布及其监测方法,放射性核素在环境中的迁移、转化和蓄积行为,公众受照途径、剂量估算及健康危害评价,辐射防护、核安全及辐射环境管理标准、体系和控制措施。

本书可作为高等学校核技术与核工程、环境工程专业的教材,也可供放射医学、生态学、辐射防护、环境保护、核安全等领域的专业人员、管理干部及高校有关专业的师生阅读参考。

原子能出版社出版发行

责任编辑:谭俊

社址:北京市海淀区阜成路 43 号 邮政编码:100037

原子能出版社印刷厂印刷 新华书店经销

开本:787×1092mm 1/16 印张 20.75 字数 512 千字

1999 年 12 月北京第 1 版 1999 年 12 月北京第 1 次印刷

印数:1—1000

定价:17.00 元

前 言

核电的迅速发展和放射性同位素的广泛应用,给人类带来了巨大的利益,展示了美好的前景,但也不可避免地伴有一定的危害,导致放射性物质释入或可能释入环境,使人类面临环境被放射性物质污染的严峻局面,其造成或可能造成的辐射照射对环境、生态及人类健康的潜在危害已引起人们极大的关注。辐射防护、核安全及辐射环境管理的基本目标在于既要允许某些可能造成辐射照射的人类活动(实践)得以进行,又要对受到或可能受到辐射照射的个人、群体和他们的后代乃至全人类提供必要的保护。

核环境学的研究对象是环境中天然与人工辐射的来源、分布及其监测方法,放射性核素在环境中的迁移、转化和蓄积行为,公众受照途径、剂量估算及健康危害的评价,辐射防护、核安全与辐射环境管理标准、体系及控制措施。建立和发展核环境学这门新兴学科,培养这一领域内的研究和管理专门人才,具有重要的科学价值和深远的社会意义。

本书的选题是 1996 年 6 月在北京召开的全国高等学校核科学与工程技术类专业教材工作会议上确定的,由苏州医学院牵头,与华东地质学院共同组织编写,列入中国核工业总公司“九五”部级重点教材出版计划。

本书由宋妙发和强亦忠任主编,张锦由、朱南康、孙占学参与编写。其中第 1 章及 4·1、5·1 两节由强亦忠执笔,第 3 章 3·6 节由朱南康执笔,其余各节由张锦由执笔,第 6 章由孙占学执笔,其余章节由宋妙发执笔。主编对全书进行了统稿,并对其他编者编写的部分内容作了必要的增删和修改。

本书由中国辐射防护研究院陈式研究员主审,中国原子能科学研究院张永兴研究员、北京大学高宏成教授、清华大学袁光钰教授审校。

本书于 1999 年 4 月经审稿会审定。主审和审校提出了许多指导性意见,仔细审阅了全部书稿,提出了许多指导性意见,提供了丰富的参考资料;本书选题的确定、大纲审定会及审稿会的组织,得到了中国核工业总公司王占元、陈竹舟、严洁廉等局长及赵强处长的大力支持。毕德才、乐俊楚、王文海等先生对编写大纲提出了许多修改意见。编写过程中得到谷存礼、李士骏、冯定华、杨永生、符荣初、李伟林等先生热情帮助;全国核科学与工程技术教材委员会主任委员、北京大学技术物理系主任王祥云教授对本书的出版给予了极大的关注和支持,在此一并致以衷心的感谢。

国内外有关环境放射性及辐射环境管理的文献和专门出版物很多,但这一领域内的专著还不多见,编写一本适用于高等学校核技术与核工程专业的教材是核事业发展和人才培养的需要,也是我们多年的夙愿。本书涉及内容广泛,取材较新,但编者水平有限,书中谬误疏漏之处肯定不少,恳请读者不吝指正。

编 者

1999 年 8 月于苏州医学院

目 录

第 1 章 绪论	(1)
1.1 关于环境的若干基本概念	(1)
1.1.1 环境	(1)
1.1.2 环境物质	(2)
1.1.3 生态	(2)
1.1.4 环境的污染与保护	(4)
1.2 核能与环境	(5)
1.2.1 能源需求与危机	(5)
1.2.2 核能的前景	(5)
1.2.3 核能对环境的影响	(6)
1.3 核环境学概述	(7)
1.3.1 核环境学的产生和发展	(7)
1.3.2 核环境学的定义和内容	(9)
1.3.3 核环境学的特点	(9)
参考文献	(10)
第一篇 环境辐射及其监测	(12)
第 2 章 环境辐射源	(12)
2.1 天然辐射源	(12)
2.1.1 宇宙辐射	(12)
2.1.2 陆地辐射	(15)
2.1.3 氡	(18)
2.1.4 矿物的开采和应用	(20)
2.2 人工辐射源	(22)
2.2.1 核试验	(22)
2.2.2 核武器制造	(23)
2.2.3 核能生产	(24)
2.2.4 放射性同位素的生产 and 应用	(29)
2.2.5 核事故	(30)
参考文献	(33)

第 3 章 环境辐射监测方法和技术	(34)
3.1 环境辐射监测	(34)
3.1.1 环境辐射监测的目的与特点	(34)
3.1.2 环境辐射监测方案的制定	(35)
3.1.3 环境辐射监测仪器	(38)
3.2 流出物监测	(43)
3.2.1 流出物监测的目的	(43)
3.2.2 流出物监测的设计	(43)
3.2.3 流出物采样和测量技术	(45)
3.3 环境辐射就地监测技术	(46)
3.3.1 就地监测前的准备	(46)
3.3.2 监测网点的布设	(47)
3.3.3 地表 γ 辐射剂量的测量	(47)
3.3.4 就地 γ 能谱测量	(48)
3.3.5 氡及其子体与析出率的测量	(49)
3.4 环境样品的采集和前处理	(54)
3.4.1 环境样品的采集	(54)
3.4.2 环境样品的前处理	(58)
3.4.3 环境样品的化学分离	(60)
3.5 环境样品的室内物理测量	(60)
3.5.1 总放射性活度测量	(60)
3.5.2 α 能谱分析	(63)
3.5.3 γ 能谱分析	(64)
3.6 环境样品的放射化学分析	(65)
3.6.1 天然放射性核素的放射化学分析	(65)
3.6.2 裂变产物核素的放射化学分析	(73)
3.6.3 超铀元素的放射化学分析	(77)
3.6.4 氚的测定	(81)
3.7 放射性测量数据的处理	(82)
3.7.1 数理统计基础知识	(82)
3.7.2 实验误差	(85)
3.7.3 数据的处理	(87)
3.7.4 检测下限	(88)
3.7.5 监测结果的正确表达	(90)
3.8 环境监测质量保证	(91)
3.8.1 质量保证及其方法	(91)
3.8.2 环境监测中的不确定度及其来源	(92)
3.8.3 环境监测质量控制	(93)

3·8·4 环境监测质量评价	(95)
参考文献	(96)

第二篇 放射性物质在环境中的行为 (98)

第4章 放射性物质在大气中的行为 (98)

4·1 放射性物质在大气中的化学行为.....	(98)
4·1·1 大气的化学组成	(98)
4·1·2 大气中的一般化学过程.....	(99)
4·1·3 放射性物质在大气中的化学行为	(101)
4·2 放射性物质在大气中的运输和弥散	(102)
4·2·1 大气边界层的温度场和风场	(102)
4·2·2 湍流扩散的基本理论	(105)
4·2·3 点源弥散的高斯模式	(107)
4·2·4 高斯模式中各项参数值的选定.....	(112)
4·2·5 特殊条件下的弥散计算	(119)
4·2·6 复杂地形对大气弥散的影响	(122)
4·3 放射性物质在大气中的沉积和再悬浮	(124)
4·3·1 放射性物质的沉积	(124)
4·3·2 地面沉积物的再悬浮	(127)
4·3·3 烟羽浓度耗减的修正	(127)
参考文献.....	(130)

第5章 放射性物质在地面水体中的行为..... (131)

5·1 放射性物质在地面水体中的化学行为	(131)
5·1·1 地面水体的分类和组成	(131)
5·1·2 放射性物质在地面水体中的化学形态	(132)
5·1·3 放射性物质在地面水体中的化学反应	(133)
5·2 放射性物质在地面水体中的运输、弥散和迁移.....	(136)
5·2·1 放射性物质在河流中的运输和弥散	(136)
5·2·2 放射性物质在其它水体中的运输和弥散	(141)
5·2·3 底质污染及其对水体污染的调节作用	(145)
参考文献.....	(146)

第6章 放射性物质在岩石、土壤和地下水中的行为 (147)

6·1 岩石、土壤和地下水系统.....	(147)
----------------------	-------

6·1·1	岩石	(147)
6·1·2	土壤	(148)
6·1·3	地下水	(150)
6·2	放射性物质在岩石、土壤和地下水中的物理、化学与生物学行为	(155)
6·2·1	放射性物质在岩石中的行为	(155)
6·2·2	放射性物质在土壤中的物理化学行为及其影响因素	(157)
6·2·3	放射性物质在地下水中的物理、化学及生物学行为	(159)
6·3	放射性物质在包气带及饱水带地下水中的迁移	(162)
6·3·1	地下水中物质迁移的基本理论	(162)
6·3·2	地下水中污染物的迁移方程	(167)
6·3·3	地下水中污染物浓度的计算	(168)
6·3·4	地下水中污染物迁移参数的确定	(171)
	参考文献	(172)
第7章	放射性物质通过生物链向人的转移	(174)
7·1	放射性物质的生物链转移	(174)
7·1·1	生物链转移的基本途径	(174)
7·1·2	放射性物质在生物体内的蓄积和平衡	(175)
7·1·3	影响放射性核素生物链转移及蓄积的因素	(176)
7·1·4	放射性核素食入量的估算	(180)
7·2	放射性物质的水生物链转移	(181)
7·2·1	水生物对放射性物质的吸收机制	(182)
7·2·2	水生物对放射性物质的蓄积	(182)
7·2·3	水生物体内放射性核素浓度的估算	(187)
7·3	放射性物质的陆地生物链转移	(188)
7·3·1	通过农作物的转移	(188)
7·3·2	通过动物类食品的转移	(198)
	参考文献	(201)
第三篇	辐射环境管理	(202)
第8章	辐射防护、核安全和辐射环境管理	(202)
8·1	辐射防护中使用的量	(202)
8·1·1	放射性活度 A	(202)
8·1·2	吸收剂量 D	(202)
8·1·3	器官剂量 D_T	(203)
8·1·4	辐射权重因子 W_R 和器官当量剂量 H_T	(203)

8·1·5	组织权重因子 W_T 和全身有效剂量 E	(203)
8·1·6	待积当量剂量 $H_T(\tau)$ 和待积有效剂量 $E(\tau)$	(204)
8·1·7	剂量负担 $H_{C,T}$ 和 E_c	(205)
8·1·8	外照射监测中采用的当量剂量	(205)
8·1·9	集体当量剂量 S_T 和集体有效剂量 S_E	(206)
8·2	辐射防护的生物学基础	(206)
8·2·1	电离辐射的生物效应及危害估计	(206)
8·2·2	辐射危险及其可接受水平	(211)
8·3	辐射防护和核安全体系	(213)
8·3·1	辐射照射类型	(213)
8·3·2	照射源项、途径、剂量和效应	(213)
8·3·3	辐射防护的目标	(214)
8·3·4	实践的辐射防护体系	(214)
8·3·5	干预的辐射防护体系	(214)
8·3·6	排除和豁免	(215)
8·3·7	潜在照射的防护——核安全	(215)
8·4	辐射防护和核安全基本原则	(215)
8·4·1	实践的防护原则	(215)
8·4·2	干预的防护原则	(217)
8·4·3	潜在照射防护及核安全基本原则	(218)
8·5	辐射环境管理体系和标准	(219)
8·5·1	ISO 14000 环境管理体系	(219)
8·5·2	辐射环境管理的目标和原则	(222)
8·5·3	管理体系和审管控制	(224)
8·5·4	辐射环境管理标准	(225)
参考文献	(232)

第9章 辐射环境影响评价方法..... (234)

9·1	概述	(234)
9·1·1	环境影响评价概论	(234)
9·1·2	辐射环境影响评价概论	(237)
9·2	环境辐射剂量的估算与评价	(243)
9·2·1	环境辐射剂量估算的整体模式	(243)
9·2·2	常规释放所致公众受照剂量的估算	(246)
9·2·3	事故释放所致公众受照剂量的估算	(254)
9·2·4	公众受照剂量的评价	(258)
9·3	辐射环境的健康危害评价和风险评价	(260)
9·3·1	辐射环境的健康危害评价	(260)

9.3.2 辐射环境风险评价	(262)
9.4 评价模式不确定度的估计	(267)
9.4.1 不确定度分析范围的确定	(267)
9.4.2 模式的可靠性检验	(268)
9.4.3 参数的不确定度分析	(270)
参考文献	(273)

第 10 章 放射性废物管理和核设施退役

(275)

10.1 放射性废物管理的目标和原则	(275)
10.1.1 放射性废物的分类和特点	(275)
10.1.2 放射性废物管理的目标和原则	(278)
10.1.3 放射性废物管理的基本步骤	(279)
10.2 放射性废水的管理	(281)
10.2.1 中、低放射性废水的净化处理	(281)
10.2.2 低放射性废水的排放	(285)
10.2.3 放射性废液的贮存	(286)
10.2.4 放射性废物的固化或固定	(287)
10.3 气载放射性废物的管理	(288)
10.3.1 气载放射性污染物的分类	(288)
10.3.2 粉尘与气溶胶的分离	(288)
10.3.3 碘同位素和放射性气体的去除	(289)
10.3.4 气载废物排放的控制管理	(290)
10.4 固体放射性废物的管理	(290)
10.4.1 固体放射性废物的去污和处理	(290)
10.4.2 固体放射性废物的包装、贮存和运输	(291)
10.4.3 固体放射性废物的处置	(291)
10.5 核设施退役	(292)
10.5.1 核设施的运行和退役	(292)
10.5.2 核设施退役过程	(293)
10.5.3 核设施退役的环境管理	(295)
参考文献	(297)

第 11 章 核事故应急

(298)

11.1 核事故与核应急	(298)
11.1.1 国际核事件分级制	(298)
11.1.2 核应急和应急状态	(299)
11.1.3 核应急管理的方针和政策	(300)

11·2	干预原则和防护措施	(301)
11·2·1	干预和干预原则	(301)
11·2·2	事故分期和照射途径	(301)
11·2·3	应急防护措施	(302)
11·2·4	干预水平和导出干预水平	(305)
11·2·5	应急照射的控制	(308)
11·3	应急组织、计划和准备	(308)
11·3·1	应急组织与指挥	(308)
11·3·2	应急计划	(309)
11·3·3	应急准备	(313)
11·4	应急环境辐射监测	(313)
11·4·1	应急监测的目的	(313)
11·4·2	早期应急监测	(313)
11·4·3	中后期应急监测	(314)
11·4·4	个人应急监测	(315)
11·5	事故后果的预测评价和干预决策	(315)
11·5·1	预测评价的目的和要求	(315)
11·5·2	影响事故后果的基本因素	(315)
11·5·3	事故剂量预测和干预决策	(316)
11·6	事故后期的环境恢复	(316)
11·6·1	应急状态的终止	(316)
11·6·2	事故后期的环境恢复	(317)
11·6·3	区域环境去污	(317)
11·6·4	放射性废物的运输和处置	(319)
	参考文献	(319)

第 1 章 绪 论

放射性物质是一种不断衰变、放出射线的特殊物质,它在地球形成之时就已经存在了。因此,地球上生命的孕育、进化、繁衍是在放射性辐射即电离辐射的参与下进行的。但是,自 20 世纪以来,特别是四五十年代,随着人类活动的扩展和科学技术的进步,环境中放射性物质的种类和数量也逐渐增加。对人类来说,放射性物质既是一种前景广阔的有用物质,又是一种潜在的有害物质,因而引起了人们的普遍关注,已成为核科学和环境科学研究的重要对象,并形成了一些新的学科分支,核环境学就是其中之一。

1.1 关于环境的若干基本概念

核环境学涉及许多环境科学的知识,因此,有必要对其中某些基本概念作一些简单介绍。

1.1.1 环境

1.1.1.1 环境的定义

不同的研究领域及其研究者对环境的定义或理解各不相同。广义地讲,环境是相对于中心事物而言的背景。在环境科学中,环境是指以人类为主体的外部世界,其主要指地球表面与人类发生相互作用的各个自然要素及其总体,它包括地球表层的陆地、海洋和大气层。这是人类和其它一些生物赖以生存和发展的物质基础,也是人类开发和利用的对象。

1.1.1.2 环境的分类

环境是一个多层次、多结构的复杂系统,可按不同的方法分类。环境按空间范围可分为居室环境、厂房环境、村落环境、城市环境、区域环境、全球环境等。环境的空间范围随着人类认识能力和活动范围的开拓而扩展,现在甚至把影响人类的宇宙因素也包括在内,称为宇宙环境。环境按组成要素可分为大气环境、水环境、土壤环境、岩石环境等。地质学中把环境分为大气圈、水圈、土壤-岩石圈,而地球上凡有生物生存的地方又统称为生物圈,它包括从大气圈对流层顶部到地壳风化层和成岩层底部。环境还可从生态学角度分为陆生环境、水生环境等。

1.1.1.3 环境的基本特性

作为以人类为主体的客观物质体系,环境具有如下四个基本特性:

(1) 整体性 环境的各个组成部分和要素之间构成了一个有机整体。在不同的环境空间中,大气、水体、土壤、植被等自然环境物质有着相对确定的分布及相互作用的关系,从而具有特定的结构。通过相对稳定的物质和能量流动网络和彼此关联的动态变化规律,环境在不同时刻呈现不同的状态,这种整体性使环境成为一个系统,故又称为环境系统。

(2) 区域性 环境的不同层次或不同空间的地域,其结构形态、组织状况、能量与物质流动的规模和途径、稳定程度等都具有相对的特殊性,从而显示出区域的特征。

(3) 变动性 环境在自然和人类活动的共同作用下,其内部结构和外在状态始终处于

不断变化的过程中。其中,人类的活动可以促进环境定向发展,也可能导致环境退化。

(4) 修复性 一个环境系统在一定的条件下和一定的时间内,表现为平衡状态。当受到自然或人类活动的影响而打破平衡时,就会引起环境结构和状态的改变。只要这种改变不超过一定的限度,环境系统具有一种自动调节功能,可使这些改变逐渐消失,其结构和状态恢复原来的面貌,即当出现改变环境平衡状态的条件时,平衡会向减弱这种改变的方向移动,这就是环境的修复性。但是,当这种改变超过一定限度时,改变就成为不可逆转的了。

1.1.2 环境物质

1.1.2.1 环境物质的定义

环境物质是指环境中存在的具有一定环境活性,并对生命物质可能产生各种直接或间接影响的物质。例如,水体及其所含的各种化学物质,大气及其所含的各种组分等。

环境物质可由自然因素或人类活动而释入环境,并在环境中发生迁移、转化和积聚,从而对人类健康、生态平衡或环境质量产生影响。

1.1.2.2 环境物质的种类

通常,按存在形态的不同,可把环境物质分为大气、水、岩石、土壤和生物等几个大类;还可按对人类、生态和环境影响的不同,分为有害物质和无害物质两大类。

环境有害物质是指对人类健康、生态平衡或环境质量产生不利影响的各种环境物质。但是,有害与无害是相对的、发展的和变化的,随着数量和存在状态的改变,有害物质和无害物质之间可能发生相互转化。例如,硒是人体必需的一种微量元素,但环境硒含量过低或过高均对人体健康有害;又如,汞是有害毒物质,但由于土壤中的无机汞不易被植物吸收,因此对人体危害相对较小,而有机汞则相反,对人体危害很大。

环境有害物质剂量与人体健康效应之间的关系呈现三种类型:

①直线型,即人体健康效应与剂量呈正比关系;

②饱和型,即人体健康效应随剂量增加而增大,达到一定程度后,基本上不再随剂量而变化;

③S曲线型,即人体健康效应随剂量增加开始变化不明显,当剂量增加到一定程度后变化显著,而后随剂量增加又基本不变。大多数环境有害物质的剂量-效应关系呈S曲线型。

1.1.2.3 环境有害物质的综合效应

当两种或两种以上的环境有害物质共同作用时,可出现四种不同的综合效应:

①协同效应,即总的环境效应大于单个有害物质的环境效应之和;

②叠加效应,即总的环境效应等于单个有害物质的环境效应之和;

③独立效应,即各个有害物质的环境效应互不影响;

④拮抗效应,即总的环境效应小于任何单个有害物质单独的环境效应。

环境有害物质的剂量-效应关系和综合效应对环境质量评价有着重要的意义。

1.1.3 生态

1.1.3.1 生态的含义

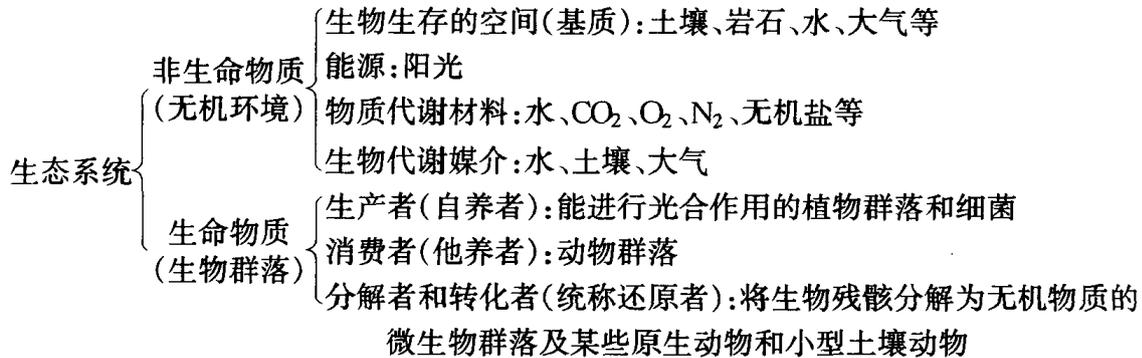
每一种生物或其群落都有自身的生存条件,它与其它生物、生物群落及周围环境有着错综复杂的联系,相互之间通过各种方式进行能量和物质的交换。所谓生态,就是指生物在其

生存环境中所处的状态以及它们与环境之间的相互关系。因此,生态不仅包括大气、水、土壤等非生命物质环境(即无机环境),也包括各种生物组成的生命物质环境(即生物群落)。

1.1.3.2 生态系统

生态系统是指生物群落与无机环境在一定空间范围内进行能量和物质的交换以及相互作用、相互制约所构成的统一整体。

生态系统形形色色,大小各异。池塘、村落、河流、草原、森林都是生态系统。一个复杂的大生态系统可以包含许多小的生态系统,整个生物圈则是最大的生态系统。一个生态系统的组成大致如下:



生态系统各个组分之间的相互关系如图 1.1 所示,它们既相互作用,又相互制约,不断进行能量的流动和物质的交换及循环。生物的重要组成成分如碳、氢、氧、氮、磷及其它生命元素,都通过生态系统进行循环。

1.1.3.3 食物链和食物网

食物链是生态系统中以食物营养为纽带联系起来的生物之间食与被食的连锁关系。

食物链可按不同方法进行分类。按食与被食的特性可分为捕食性食物链、寄生性食物链和碎食性食物链;按生态系统的特性可分为陆生食物链和水生食物链等。

食物链的每一个环节叫做营养级。绿色植物为第一营养级;食草动物为一级消费者,属第二营养级;以一级消费者为食物的食肉动物为二级消费者,属第三营养级;以二级消费者为食物的动物为三级消费者,属第四营养级,依此类推。通常,一个食物链由 4~5 个营养级组成,如最典型的水生食物链为:水—浮游植物—鱼—食鱼动物。

食物链只是简单描述生物间食与被食的关系,实际上多数动物的食物来源不是单一的,因此食物链之间会相互交叉联接,构成错综复杂的网状关系,称为食物网。在环境辐射效应研究时,应特别注意放射性核素在食物链或食物网迁移过程中的富集情况。

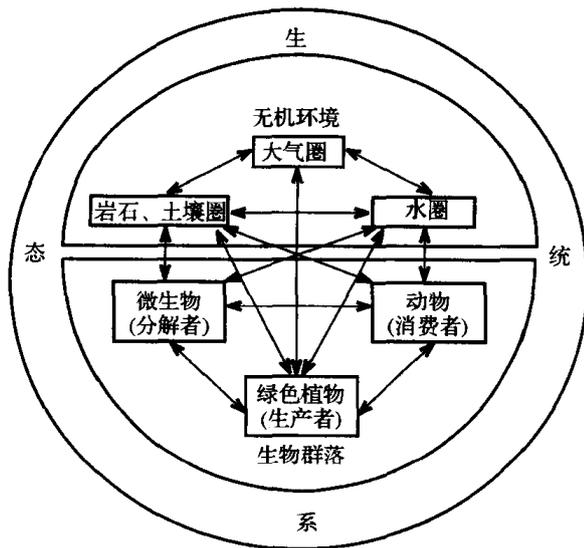


图 1.1 生态系统各组分之间的相互关系

1.1.4 环境的污染与保护

1.1.4.1 环境污染

环境污染是指有害物质进入环境,经过扩散、迁移、转化和积聚,引起环境系统结构和功能的改变,导致环境质量下降,对人类或其它生物的正常生存和发展产生不利影响,这种现象就是环境污染。引起环境污染的物质或因子称为环境污染物或环境污染因子,它按形态有气、液、固及热、声、辐射等不同种类。向环境排放污染物或对环境产生有害影响的场所、设备和装置等,称为环境污染源。

环境污染按其涉及的环境要素可分为大气污染、水污染、土壤污染等;按污染范围可分为局地污染、区域污染及全球性污染等;按污染物的性质可分为化学污染、物理污染、生物污染等;按污染产生的原因可分为生产性污染和生活性污染等。

1.1.4.2 环境自净

所谓环境自净,实际上就是环境的修复性,是指环境受污染后,在自然条件下,在有限的时间内,污染物浓度或总量降低到不产生危害的程度。环境自净按其机理可分为:

(1) 物理自净 通过扩散、混合、稀释、淋洗、挥发、沉降、吸附等物理作用,使环境中的污染物得以净化的过程,称为物理自净。物理自净的能力除与污染物的物理性质(如粒度、相对密度、形态、表面活性等因素)有关外,还取决于环境的物理条件(如温度、气流、降水及地理条件等)。

(2) 化学自净 通过污染物与环境物质或不同污染物之间的化学反应(如氧化、还原、化合、分解、络合、离子交换、化学吸附等),使环境中的污染物得以净化的过程,称为化学自净。化学自净能力除取决于污染物的化学性质和化学形态外,还与环境物质的酸碱度、氧化还原电位、温度和化学组成等因素有关。

(3) 生物自净 通过自然界中的生物对环境污染物的吸收、降解、转化、富集等作用,使之得以净化的过程,称为生物自净。生物自净能力除与污染物有关外,主要取决于生物的种类、环境温度和供氧状况等。

某一环境自净能力的大小是估计该环境可容纳和消解污染物(废物)最大负荷量的重要因素。

1.1.4.3 环境保护

环境保护系指人类为解决现实的或潜在的环境问题,维持自身生存和发展而进行的各种具体实践活动的总称。

自 20 世纪 50 年代以来,由于工农业的迅速发展和对自然资源的盲目开发,使环境遭到了严重污染和破坏,环境质量急剧下降,生态平衡严重失调,环境问题已成为危及人类健康,制约经济发展和文明进程的全球性问题。世界各国纷纷采取科学技术、行政管理、司法、经济、宣传、教育等各种环境保护措施,努力防治环境污染,合理利用自然资源,逐步重建人类与环境之间的依赖关系,促进社会与环境的协调发展。

1.2 核能与环境

1.2.1 能源需求与危机

能源是人类社会的生命线,是满足人类基本需求,支持和促进经济发展,不断提高生活水平的重要因素。随着人类文明程度的不断提高,全世界能源消耗持续上升,石油、煤、天然气等化石燃料的使用量已增长到了空前的水平。但地球上的化石燃料是有限的,表 1.1 列出了能源的贮量和年生产量,由这些估计推算,目前全球化石燃料中石油只够用 30 多年,天然气 50~60 年,煤 200 余年,全球能源正面临着化石燃料枯竭的危机。

表 1.1 世界能源贮量和年生产量(10^9 吨石油当量)

石油		天然气		煤		水力发电	核电
储量	年生产量	储量	年生产量	储量	年生产量	年生产量	年生产量
96	2.7	90	1.6	496	2.2	0.5	0.34

能源的生产和利用带来了严重的环境问题,化石燃料的燃烧向环境排放大量的 CO_2 、 SO_2 、 NO_x 、烟尘、重金属、苯并芘等毒物(见表 1.2),已造成了酸雨、温室效应、臭氧层破坏等严重的环境问题,能源正面临着环境问题的挑战。

表 1.2 1GW 电站的废物排放量^①($\text{t}\cdot\text{a}^{-1}$)

	石油 ^②	煤 ^③	木柴	天然气
气载排放				
CO_2	5×10^6	7×10^6	5.7×10^6	3.5×10^6
CO	700	1.2×10^3	1.5×10^4	200
碳氢化合物	500	350	1.5×10^4	30
NO_x	2.1×10^4	1.9×10^4	1.5×10^4	2×10^4
烟尘	20	1.6×10^3	200	300
SO_x ^④	1×10^4	1.2×10^4	1.7×10^3	15
重金属	10	50	70	0
固体废物				
除尘器捕集的灰 ^⑤	2×10^3	2.3×10^5	1.7×10^4	0
脱硫产物	3.6×10^5	4.4×10^5	-	0

①取自瑞典能源委员会和美国核管理委员会的数据;②3%硫,无灰;③3%硫,10%灰;④燃油、燃煤装置的脱硫效率为 90%;⑤除尘器的除尘效率为 99%。

此外,石油、煤是重要的化工原料,作为燃料使用是对资源的极大浪费。因此,目前全球的当务之急是寻求解决能源、环境和经济这个“三维难题”的有效途径。

1.2.2 核能的前景

自 1954 年前苏联第一座试验性核电站建成以来,核电事业虽然几经反复和曲折,但始

终在向前发展着。即使发生了1986年4月震惊世界的前苏联切尔诺贝利核电站事故,世界核电生产仍呈现增长的势头(表1.3)。据国际原子能机构(IAEA)1997年的统计,全世界核电的发电量为22764.9亿kW·h,占总发电量的17%,比1958年全世界总发电量还多19.1%,有3个国家的核电比例已超过60%(其中立陶宛为81.5%,法国已超过78%),有6个国家接近或超过40%。

表 1.3 世界核电增长情况和前景预测^①

	1984	1986	1988	1990	1997	2000
运行堆数(台)	345	397	417	424	437	
总装机容量(GW)	219.7	273.8	296.9	324.5	352.2	497~646

① 见 IAEA 各年的新闻公报。

近十几年来,核电一直受到反核运动的冲击。1979年美国三里岛核电厂事故和1986年前苏联切尔诺贝利核电厂事故的发生,在全球范围内掀起了两次声势很大的反核浪潮,但核电并未被摧垮,这充分说明了其强大的生命力和科学的必然性。

核电是一种安全的能源,它发生事故的概率和危险性均比石油、煤、交通等行业的小,在迄今最严重的切尔诺贝利核电厂事故中,也仅造成31人死亡,远比不上一次大的煤矿事故或化学毒物污染事故。核电是一种清洁的能源,它几乎不产生CO₂、NO_x、SO₂等有害气体,因而对改善当前日趋严重的环境问题具有重大意义。因化石燃料燃烧,全球每年排放CO₂约50亿吨(按碳计),而核电的发展已使CO₂的排放量减少了10%。在法国,从1980年到1987年,核电增加2倍多,CO₂排放量减少了2/3,对改善法国的环境状况起了良好的作用,与污染严重的英国(燃煤发电占70%)形成鲜明的对比。此外,核电还是一种经济的能源,成本可与煤电、油电相竞争。目前,核电是唯一已经成熟而且最有希望替代化石燃料,解决能源危机的一种能源。

1.2.3 核能对环境的影响

目前,核电的发展还存在很大的阻力,核电的安全性及可能造成的放射性污染问题仍是公众怀疑和关注的焦点。毋庸讳言,核电生产和其它能源一样,也存在环境问题,除热污染、占用土地、普通污染物的排放等问题外,放射性流出物排放对环境特别是人类健康可能造成的影响是公众最为关注的问题。具体来说,它包括核电厂在正常运行和事故情况下放射性核素的排放以及放射性废物最终处置的潜在环境污染问题。

图1.2所示为轻水反应堆核燃料循环,它包括铀矿石的开采、水冶、转化、铀同位素浓缩、元件制造、反应堆运行及乏燃料后处理等环节,其中每一环节都不同程度地向环境排放少量的放射性物质。这些放射性污染物可通过各种环境途径对人类造成危害,其中大多数放射性物质因其所含核素半衰期较短,或因其在环境中迁移速率较小,只可能造成局地或区域性影响,只有少数长寿命核素及在环境中迅速弥散的核素,才可能产生全球性影响。

但是核工业与其它工业最大的不同点在于它从创建开始就十分重视核安全和环境问题。核电厂从设计、建造到运行每个环节都制订了严格的控制标准,力求将危害降低至可合理达到的尽可能低的水平,并由各级核安全及辐射环境管理审管机构实行监督。尽管如此,

对内部组织的危害。此外,橡树岭和汉福特两个核研究机构也对各种人工放射性核素的环境影响开始了研究。所有这些研究工作对核环境学的发展都是具有开创意义的工作。20世纪50年代,闪烁计数器的出现使环境放射性测量技术有了新的飞跃。这10年间,环境放射性研究主要以美、苏等国在大气层中进行核武器试验所造成的环境污染为中心,对核试验放射性污染水平和环境天然辐射本底进行了大量的调查,建立了一系列环境放射性监测方法,促进了环境放射性分析和监测技术的发展。20世纪60年代,放射性沉降物(落下灰)进一步增加。与此同时,由于核工业的迅速发展,排入环境的放射性污染物也有所增加,促使人们加强了对环境放射性污染的监控。

但是,实践表明,环境放射性污染的控制只停留在污染监测和放射性废物治理上是远远不够的,更重要的是要探索放射性污染的产生及其在环境中的物理、化学和生物学行为,摸清放射性污染物在环境中的运动过程及其规律,才能有效地控制和消除放射性流出物排放对环境的污染,减轻和防治环境放射性对生态特别是对人类的危害。于是,不少核科学家开始运用生态学的观点研究核武器试验和核工业产生的放射性核素在环境中的迁移现象,着重研究了裂变产物在不同环境系统中的蓄积,不同环境系统间的转移以及各种生物群落、特别是人体对放射性污染物的摄取和蓄积问题。1955年,联合国成立了原子辐射效应科学委员会(UNSCEAR),专门研究电离辐射(包括环境放射性)对人的影响,迄今已出版了一系列权威性报告,引起了人们对核环境学这一领域的广泛关注,促进了对痕量物质环境行为的研究以及生物学、遗传学、环境化学、痕量元素代谢、微气象学、高层大气气象学、海洋学等许多学科的发展。由此还引起了人们对其它有毒化学物质(如杀虫剂、食品添加剂、化石燃料燃烧产物、痕量重金属等)污染的重视,带动了环境科学的发展,环境辐射的许多开创性研究也为一般环境污染的研究提供了有效的手段和方法。

20世纪70年代,高放射性废物最终处置的安全性成为影响核电事业进一步发展的关键,迫使科学家们从放射性物质及环境物质的物理、化学特征出发,进一步探索放射性核素在环境中的行为,特别是放射性核素与环境物质之间的相互作用及其迁移规律和最终归宿。

国际放射防护委员会(ICRP)自1928年成立以来,先后发表了一系列出版物,其中特别重要的有第1号(1959年)、第9号(1966年)、第26号(1977年)和第60号(1990年)出版物。随着人们对低剂量率、小剂量长期照射条件下辐射生物效应机理的认识逐步深化,从随机性效应线性无阈的剂量-效应关系的假说出发,该委员会对拟议的和继续进行着的实践提出了以“实践正当性、防护最优化和个人剂量限制”三项原则为基础的辐射防护体系,并逐步予以完善,突出强调“在考虑了经济和社会因素之后把一切照射保持在可合理达到的尽可能低的水平”的要求,对潜在照射、干预等特殊照射条件也提出了相应的防护体系。1990年,有关的国际机构组建了机构间辐射安全委员会(IACRS),作为各机构间辐射安全事宜的磋商和合作论坛,标志着这一领域内的国际协调迈出了重要的一步。所有这一切,为核工业(特别是核燃料循环)系统和核设施辐射安全和辐射环境管理的系统化、规范化、标准化提供了坚实的基础。

总之,核环境学就是在这种背景下逐步形成和发展的。

我国历来高度重视核科学技术在现代化建设中的重要作用,对核安全和环境放射性污染防治给予了特别的关注。早在20世纪60年代,就广泛开展了环境放射性监测工作,建立了初步的、非常实用的核安全和环境监测体系和机构,有效地保护了核事业从业人员、周围

环境和公众,使之免受或少受核辐射损伤的危害,促进了我国核事业的发展。

随着我国核事业和科学技术的发展,核环境学也日益得到重视,有了长足的进步。专门从事辐射防护和核环境学研究的机构不断增多和充实,研究领域不断扩展,研究队伍不断壮大,研究水平不断提高。许多科研院所、高等学校和各级环境辐射监测站及卫生防疫站在环境辐射监测、环境放射化学、放射生态学、辐射环境影响评价、辐射环境管理等方面已经作了大量卓有成效的工作。可以预期,我国科技工作者通过不懈的努力,核环境学领域的学术水平将不断提高,在不远的将来可望接近或达到世界先进水平。

1.3.2 核环境学的定义和内容

核环境学是一门 20 世纪 50 年代才逐步兴起的新学科,对其作全面、完整、系统地论述的专著还很少见,目前大量的散见于各种期刊、学术报告或有关著作中的零星论述,只有少量个别专题和领域有比较系统的论述。因此,当前要准确、全面、完整地阐释核环境学的定义和研究范畴还存在一定的难度。

我们认为,核环境学是以研究环境中各类天然和人工电离辐射的来源,它们在环境中的分布、迁移和转化,环境辐射对环境、生态和人体健康的影响及其评价和控制为主要内容的一门新兴学科,是由核科学和环境科学相互交织、渗透、融合而形成的一门边缘学科。

从这一定义出发,我们通过进一步的分析、研究、归纳和综合,认为核环境学的主要内容大致可以包括如下几个方面。

(1) 环境辐射源 各种类型的环境辐射(包括天然与人工电离辐射)的来源、分布及其对公众所导致的内、外照射剂量水平。

(2) 环境辐射监测 环境放射性物质的分析方法和环境辐射的监测方法。

(3) 放射性物质在环境中的行为 放射性物质在环境中存在的物理和化学形态,环境中各种物理、化学和生物过程导致放射性核素在大气、水体和岩石-土壤环境中的弥散、迁移、转化、蓄积及最终归宿,放射性物质通过生物链向人的转移,电离辐射对生态系统的影响。这一领域涉及内容非常广泛,又可归纳为环境放射化学、放射生态学等多门分支学科。

(4) 辐射环境管理 辐射危害、危险和风险的估计,辐射防护的原则、体系和标准,辐射环境管理标准体系,辐射环境影响评价,放射性流出物排放的控制,放射性废物管理及核设施退役、核事故应急等有关的辐射环境管理问题。

(5) 环境放射性污染的防治 研究如何防止和减少放射性物质对环境的污染,以及一旦放射性物质进入环境而造成污染时,如何采用物理、化学及生物学方法减轻和消除污染,最大限度地减少其对人体健康和生态的危害。

(6) 应用核环境学 运用环境中存在的天然放射性核素进行科学研究或达到实用目的的,如环境放射性探测在探矿、地震预测、地球化学、宇宙化学等领域中的应用,放射性同位素测龄法在环境科学、考古学、地学等领域中的应用;运用放射性同位素示踪技术研究非放射性污染物在环境中的化学行为和迁移规律等。

根据专业的需要,本教材主要介绍前 4 个方面的内容。

1.3.3 核环境学的特点

核环境学并非核科学和环境科学两门学科的简单叠加、复合、扩大或延伸,它具有与核

科学和环境科学不尽相同的一些特点。

① 核环境学研究的对象体系范围很大。它可以是一个水域(如江、河、湖、海的某一个区域)的单一生态系统,也可以是包括大气、土壤、岩层、水域的一个庞大、综合的生态系统。对于具有全球影响的污染源(如核武器试验及严重的核事故等),其研究对象可以是涉及整个生物圈的全球性生态系统。

② 核环境学研究的环境放射性物质的浓度比通常核科学(如放射化学)和环境科学(如环境化学)研究的物质浓度低得多(表 1.4)。这给核环境学研究带来许多难题。因此,环境辐射监测从监测项目、采样点的布设、采样方法、分析程序、测量手段直至数据处理,均不同于一般的放射性分析和测量。

③ 核环境学研究对象的影响因素复杂。因为放射性物质一旦进入环境,其物理、化学行为和迁移规律除与其本身的物理、化学状态及性质有关外,还取决于环境。而环境的影响因素极其复杂,这就使放射性核素在环境中的状态和行为与一般核科学(如放射化学)研究中的情况有较大不同,且环境体系大,可参与化学反应的物质多,相互之间的作用错综复杂,并处于不断变化和运动之中,难以把握,人们对其认识还有待于不断深化。

表 1.4 北大西洋表层海水中几种放射性核素的平均浓度

核素	^{90}Sr	^{137}Cs	^3H	^{14}C	^{239}Pu
浓度($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$)	4.81×10^{-3}	7.77×10^{-3}	1.78	7.4×10^{-4}	$(1.11\sim 4.44)\times 10^{-2}$
($\text{fg}\cdot\text{L}^{-1}$)	0.944	2.43	4.97	4.49	4.84~19.4

④ 放射性核素的辐射危害与一般污染物的化学毒性在本质上具有根本性的差异。许多化学污染物,特别是有机污染物,可通过化学处理或自然界本身的反应过程使其变成无毒物质。如苯(C_6H_6)是有毒的,但通过氧化反应,生成 CO_2 和 H_2O ,其毒性即可消除。而辐射是放射性核素的原子核本身所固有的特性,任何人为及自然过程都无法使其消除,目前唯一的办法是任其随时间的推移而自行衰变。因此,长寿命放射性核素的辐射危害将存在几十年甚至几十万年的时间。此外,许多放射性核素的辐射危害比其稳定同位素的化学毒性大得多,因此其在环境中的浓度限制也更为严格。例如,放射性同位素 ^{210}Pb 的导出空气浓度(DAC)如换算为质量浓度,比空气中稳定性铅的最大容许浓度要低十万倍以上。

⑤ 核环境学综合性强,涉及的知识领域广。它不仅与原子核物理、放射化学、环境科学、土壤学、大气科学、海洋学、地球化学、生物学、生态学等学科直接有关,而且还涉及气象学、水文学、地质学、地理学、放射生物学、放射卫生学等有关知识。因此,核环境学是一门综合性很强的边缘科学。

参 考 文 献

- 1 《环境科学大辞典》编辑委员会. 环境科学大辞典. 北京:中国环境科学出版社,1991
- 2 《中国大百科全书环境科学卷》编辑委员会. 中国大百科全书环境科学卷. 北京:中国大百科全书出版社,1982
- 3 强亦忠等主编. 简明放射化学教程. 北京:原子能出版社,1989
- 4 杨维荣等. 环境化学. 北京:人民教育出版社,1980
- 5 刘静宜等. 环境化学. 北京:中国环境科学出版社,1987

- 6 H. 雷默特著. 生态学. 庄吉珊译. 北京:科学出版社,1988
- 7 United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR). 1993 年向联合国大会提交的报告和科学附件,电离辐射源与效应. 中国核工业总公司安防环保卫生局,中国辐射防护学会译. 北京:原子能出版社,1995
- 8 International Commission on Radiological Protection. 国际放射防护委员会 1990 年建议书,Publication 60. 李德平等译. 北京:原子能出版社,1993
- 9 International Atomic Energy Agency 等. 国际电离辐射防护和辐射源安全的基本安全标准,Safety Series No. 115. 维也纳:国际原子能机构,1997
- 10 G.G. 艾科尔兹著. 核动力的环境问题. 李国鼎等译. 北京:原子能出版社,1985
- 11 E.E. 埃-欣纳威等著. 核能与环境. 杨启烈等译. 北京:原子能出版社,1987
- 12 俞誉福编著. 环境放射性概论. 上海:复旦大学出版社,1993
- 13 F.W. 魏切尔等著. 放射生态学——核能与环境,第一卷. 俞誉福等译. 北京:原子能出版社,1988
- 14 G.R. 肖邦等著. 核化学(理论与应用). 仲吉译. 北京:原子能出版社,1988
- 15 M.Eisenbud. Environmental Radioactivity From Natural, Industry Sources, 3rd Edition. Orlando: Academic Press,1987
- 16 强亦忠. 关于环境放射化学的若干问题. 核技术,1984,7(5):68
- 17 强亦忠. 对环境放射化学学科体系的探讨. 大学化学,1994,9(1):16
- 18 强亦忠. 中国におりみ环境放射化学の研究. 放射线科学,1992,34(4):127
- 19 岩仓哲男等编. 环境モニタリソグの今日の意味. 东京:实业公报社,1991
- 20 万国江. 环境质量的地球化学原理. 北京:中国环境科学出版社,1986

第一篇 环境辐射及其监测

第 2 章 环境辐射源

地球上每一个人都受到各种天然辐射和人工辐射的照射。其中,来自天然辐射源的电离辐射称为天然辐射;来自人工辐射源的电离辐射称为人工辐射。对人类群体造成照射的各种天然及人工辐射源称为环境辐射源。

2.1 天然辐射源

天然辐射来源于宇宙辐射、陆地辐射、氡和矿物开采所致的辐射。

2.1.1 宇宙辐射

2.1.1.1 宇宙射线

宇宙空间充满着由各种来源、各种能量的粒子所产生的辐射。宇宙射线造成的辐射按其来源可分为捕获粒子辐射、银河宇宙辐射和太阳粒子辐射三类。

(1) 捕获粒子辐射 绕地球运行的电子和质子被地球磁场捕集而形成了捕获粒子辐射,它在赤道上空高度为 1.2~8 个地球半径(地球的平均半径为 6371.2km)的空间范围内形成两个辐射带。距赤道地平面 2.8 个地球半径内的空间范围称为内辐射带,主要由能量为几到几百 MeV 的质子构成,其注量率峰值约在 50MeV 处(相应的最大注量率约为 4×10^4 粒子 \cdot cm $^{-2}\cdot$ s $^{-1}$,发生于赤道上空约 1.5 个地球半径的高度上)。此外,内辐射带中还存在着能量为 100~400keV 的低能电子。赤道上空 2.8 个地球半径以外称为外辐射带,主要是高能电子和少量 α 粒子,此外还存在一些能量为 0.1~5MeV 的低能质子。

一般情况下,内外辐射带内的捕获粒子辐射在地平面上不产生任何辐射剂量,在低地球轨道的载人飞行中,捕获质子对空中旅行者造成的辐射危害比电子更甚。

(2) 银河宇宙辐射 银河宇宙射线产生于太阳系外,其主要成分是高能质子,能谱宽达 $1 \sim 10^{14}$ MeV,在 300MeV 处存在一峰值。此外,还有约 10% 的 ^4He 离子及少量原子序数 ≥ 3 的重粒子、电子、光子和中微子。

银河宇宙射线的起源仍不很清楚,一般认为其产生是恒星耀斑、超新星爆炸、脉冲星加速或银河彗核爆炸的结果。宇宙射线在太阳系中的平均滞留时间约 2 亿年,其能谱受太阳活动引起的太阳系内磁场变化的影响,太阳弱活动期间强度最大,强活动期间强度则明显减弱。

初级宇宙射线(主要是质子)从空间进入地球大气层后,其中的高能粒子可与空气中的氮、氧、氩等原子核发生反应,除产生 ^3H 、 ^7Be 、 ^{14}C 、 ^{22}Na 等宇生放射性核素外,还产生中子、质子、 μ 介子、 π 介子和 κ 介子等一系列次级粒子。表 2.1 所示为一些较重要的宇宙射线粒子的特性。

表 2.1 大气层中某些宇宙射线粒子的特性^[1]

类型	名称	能量(MeV)	平均寿命(s)	主要衰变方式
	强		子	
核子	质子(p)	938.2	稳定	稳定
	中子(n)	939.5	1.01×10^3	$p + e + \gamma_e$
介子	π 介子(π^\pm)	139.6	2.55×10^{-8}	$\mu + \gamma_\mu$
	(π^0)	134.9	1.78×10^{-10}	$\gamma + \gamma$
	K 介子(K^\pm)	493.7	1.23×10^{-8}	
	(K_1)	497.7	0.91×10^{-10}	$\mu + \gamma_\mu$
	(K_2)	497.7	5.7×10^{-8}	$\pi + \pi$
	轻		子	
	μ 子(μ^\pm)	105.6	2.2×10^{-6}	$e^\pm + \gamma_e + \gamma_\mu$
	电子(e^\pm)	0.511	稳定	稳定
	中微子(γ_e)	0	稳定	稳定
	(γ_μ)	0	稳定	稳定
	光		子	
	光子(γ)	0	稳定	稳定

在上层大气中,初级宇宙射线通过高能反应(散裂反应)而产生次级质子,次级中子则是通过散裂反应和低能(p,n)反应所造成的中子蒸发而产生的。次级中子因弹性碰撞而失去能量,在热能化后被空气中¹⁴N 捕获而形成¹⁴C。质子和中子因电离或核碰撞而很快失去能量,在低层大气中其通量密度已大为衰减,仅占海平面处空气吸收剂量率的百分之几。

π 介子和 K 介子的寿命很短,在到达地平面之前就在大气层中衰变。除了在较低的大气层之外,电子是主要的电离源(来源于中性 π 介子衰变中产生的光子所产生的正负电子对和康普顿电子)。另一方面, μ 介子与空气中原子核相互作用的截面小,衰变前平均寿命为 2.2 μ s,可穿入低层大气,是海平面处宇宙射线中的主要成分。

(3) 太阳粒子辐射 太阳能持续产生能量非常低的粒子,在磁扰时则会发射更多的能量更高的粒子。太阳黑子出现存在着平均为 11a 的周期(太阳活动周期),期间有时会发生与太阳耀斑有关的大发射(又称为太阳爆发或太阳粒子事件),这时发出的粒子能量常为 1~100MeV 以至更高。在这一期间,太阳粒子的注量率可能超过银河粒子的注量率,但由于太阳粒子的能量较低,大部分不能穿过地球磁场,对大气层中的辐射照射贡献甚微。

(4) 宇宙射线的剂量估计 为估计宇宙射线对人造成的剂量,必须考虑高度、纬度和屏蔽的影响。

图 2.1 所示为在地磁北纬 50°处宇宙射线中直接电离成分和间接电离成分(中子)所致空气吸收剂量率随高度的变化。海平面上空气中宇宙射线的平均电离值约 2.1 离子对· $\text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$,空气中每形成 1 离子对所需能量为 33.85eV,相应的空气吸收剂量率为 $3.2 \times 10^{-8} \text{Gy} \cdot \text{h}^{-1}$ (主要来自 μ 介子的贡献)。在太阳活动最高峰期,海拔 10km 处电离成分所致空气吸收剂量率约减少 10%,海平面上变化程度则较小。

中子所致剂量率比电离成分低得多,但其随高度而增加更为明显,在海拔 10~20km 处达到峰值。在太阳活动最高峰期,海拔 10km 处中子所致空气吸收剂量率减少百分之几十,

海平面处变化程度亦较小。

宇宙射线中低能带电粒子穿越地球磁场达到大气层顶部的能力与纬度有关,两极地区到达大气层顶部的低能质子能量比赤道地区的大,因此,大气层中的电离强度也与纬度有关,而且,这一纬度效应还随高度增加而明显增大。

建筑物对宇宙射线中直接电离成分屏蔽效应的大小与建筑物的结构及材料有关,小型木结构房屋屏蔽因子为 0.96,混凝土建筑物为 0.42。关于建筑物对宇宙射线中中子成分屏蔽效应的资料至今还不多见。

为估计宇宙射线在地平面上产生的人口加权年有效剂量,需考虑有效剂量率及世界人口分布随高度的变化,现已提出用于估算宇宙射线中电离成分所致年有效剂量与高度之间的关系式:

$$\dot{E}_I(Z) = \dot{E}_I(0)[a_1 \exp(-\alpha_1 Z) + b_1 \exp(\beta_1 Z)] \quad (2.1)$$

式中,

$\dot{E}_I(Z)$ ——海拔 Z (km)处电离成分所致有效剂量率, $\mu\text{Sv}\cdot\text{a}^{-1}$;

$\dot{E}_I(0)$ ——海平面处电离成分所致有效剂量率, $\mu\text{Sv}\cdot\text{a}^{-1}$;

Z ——海拔高度, km;

$\alpha_1 = 0.21, \alpha_1 = 1.6\text{km}^{-1}, b_1 = 0.80, \beta_1 = 0.45\text{km}^{-1}, \dot{E}_I(0) = 240\mu\text{Sv}\cdot\text{a}^{-1}$, 系按平均室内居留因子 0.8 及相应的屏蔽因子估计的。

中子所致年有效剂量与高度的关系为

$$\dot{E}_N(Z) = \dot{E}_N(0) \exp(\alpha_N Z), Z < 2\text{km} \quad (2.2)$$

$$\dot{E}_N(Z) = \dot{E}_N(0)[b_N \exp(\beta_N Z)], Z > 2\text{km} \quad (2.3)$$

式中,

$\dot{E}_N(Z)$ ——海拔 Z (km)处中子所致有效剂量率, $\mu\text{Sv}\cdot\text{a}^{-1}$;

$\dot{E}_N(0)$ ——海平面处中子所致有效剂量率, $\mu\text{Sv}\cdot\text{a}^{-1}$;

$\alpha_N = 1.0\text{km}^{-1}, b_N = 2.0, \beta_N = 0.70\text{km}^{-1}, \dot{E}_N(0) = 30\mu\text{Sv}\cdot\text{a}^{-1}$, 估计时未考虑屏蔽效应。

根据一些简化的假设,分析世界人口按高度和都市化的分布,应用上述公式计算并将两部分相加,可求出集体有效剂量随高度的分布,据此求得宇宙射线所致全球人口平均年有效剂量为 $380\mu\text{Sv}$ (其中直接电离成分和中子的贡献分别为 $300\mu\text{Sv}$ 和 $80\mu\text{Sv}$);全球人口集体有效剂量为 $2 \times 10^6 \text{人}\cdot\text{Sv}\cdot\text{a}^{-1}$, 其中约 90% 在北半球,而 1/5 则归于中国。

2.1.1.2 宇生放射性核素

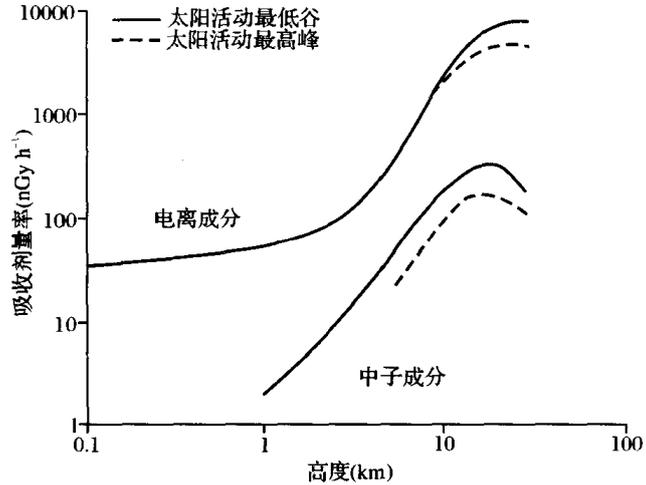


图 2.1 地磁北纬 50°处宇宙射线的电离和中子成分所致空气吸收剂量率随高度的变化^[1]

初级宇宙射线通过各种不同的核反应,在大气层、生物圈和岩石层中产生一系列放射性核素。就对人类照射的剂量贡献而言,主要的宇生放射性核素是 ^3H 、 ^7Be 、 ^{14}C 和 ^{22}Na ,最重要的照射途径是 ^{14}C 的食入。表 2.2 所示为成人经食物和饮水途径对这几种宇生放射性核素的年摄入量和相应的有效剂量。

表 2.2 成人经食入途径对主要宇生放射性核素的年摄入量及有效剂量⁽¹⁾

核 素	年摄入量($\text{Bq}\cdot\text{a}^{-1}$)	有效剂量($\mu\text{Sv}\cdot\text{a}^{-1}$)
^3H	500	0.01
^7Be	1000	0.03
^{14}C	20000	12
^{22}Na	50	0.15

2.1.2 陆地辐射

除宇生放射性核素之外,地壳中还存在着自地球形成以来就有的天然放射性核素,显然,这类原生放射性核素都是长寿命的,其半衰期可与地球年龄相比较。

就对人的外照射剂量贡献而言,主要的原生放射性核素为 ^{40}K ($T_{1/2} = 1.28 \times 10^9 \text{ a}$), ^{232}Th ($T_{1/2} = 1.41 \times 10^{10} \text{ a}$)和 ^{238}U ($T_{1/2} = 4.47 \times 10^9 \text{ a}$),次要的有 ^{235}U ($T_{1/2} = 7.04 \times 10^8 \text{ a}$)和 ^{87}Rb ($T_{1/2} = 4.7 \times 10^{10} \text{ a}$)。其中 ^{238}U 及 ^{232}Th 为两个天然放射系的母体核素,其许多子体核素也会对人造成照射。

由于种种原因,空气、水、有机物质和各种生物体内也不同程度地存在着原生放射性核素,因此,人会受到来自原生放射性核素的各种不同能量的 α 、 β 、 γ 辐射的外照射和内照射。

2.1.2.1 原生放射性核素的外照射

室内外都存在来自原生放射性核素的 γ 射线照射。几十年来,许多国家通过直接测量剂量率进行的调查表明,按全球人口加权平均,室外空气的 γ 吸收剂量率为 $57\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}$,室内为 $80\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}$,室内外的比值为1.44。

室外照射很大部分来自铺设的路面,但也有一部分来自土壤,其剂量率大小与表层土壤中主要核素的比活度有关。表 2.3 所示为土壤中主要原生核素的比活度及其所致 1m 高处的空气吸收剂量率。

土壤中的水分和积雪的覆盖会使空气吸收剂量率减小。在中等降水量的温带地区,这一影响并不明显,但极厚的积雪可使空气吸收剂量率降低 20%。农田中施用磷肥则会使剂量率呈现次级增长。

地层中 ^{232}Th 及 ^{238}U 含量高的地区,空气吸收剂量率明显增高。含钍独居石矿藏丰富的印度喀拉拉邦海岸地区,空气吸收剂量率高达 $200\sim 400\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}$ 。在肯尼亚某个含钍碳酸岩地区竟高达 $12000\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}$,花岗岩地区天然辐射水平也有明显增高。

表 2.3 土壤中原生放射性核素的比活度及空气吸收剂量率^[1]

核 素	比活度(Bq·kg ⁻¹)		剂量转换因子, [(nGy·h ⁻¹)/(Bq·kg ⁻¹)]	剂量率(nGy·h ⁻¹)	
	均值 ^①	范围		均值	范围
	中 国				
⁴⁰ K	580 ± 200	12~2190	0.0414	24	0.5~90
²³² Th 系	49 ± 28	1.5~440	0.623	31	0.9~270
²³⁸ U 系	40 ± 34	1.8~520	-	②	
²²⁶ Ra 子系	37 ± 22	2.4~430	0.461	17	1.1~200
合 计				72	2~560
	美 国				
⁴⁰ K	370	100~700	0.0414	15	4~29
²³² Th 系	35	4~130	0.623	22	2~81
²³⁸ U 系	35	4~140	-	②	
²²⁶ Ra 子系	40	8~160	0.461	18	4~74
合 计				55	10~200

①对中国为地区加权平均值,对美国为算术平均值;

②²²⁶Ra 子系产生的剂量。

建筑材料对室内天然辐射水平有很大的影响。一方面,其所含的天然放射性核素会增加室内 γ 辐射剂量;另一方面,它又对室外照射起着一定的屏蔽作用。因此,室内外空气吸收剂量率的差别与所用建筑材料的类型及房屋的结构有很大的关系。在木屋和轻型预制件房屋中,建筑材料作为辐射源的作用和对室外辐射源的屏蔽作用都不明显,室内外辐射水平差异不大;相反,在砖石或混凝土建造的整体建筑物中,虽然室外 γ 辐射被有效地屏蔽,但墙体材料中所含的天然核素使室内 γ 辐射水平比室外高得多。

以 $0.7\text{Sv}\cdot\text{Gy}^{-1}$ 作为天然 γ 辐射所致空气吸收剂量与成年人全身有效剂量之间的换算系数,并取全球人口平均室内居留因子为 $0.8^{[2]}$,在此基础上,将室外($57\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}$)和室内($80\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}$)的陆地 γ 辐射照射量结合起来,求得全球人口加权平均年有效剂量为 0.46mSv 。对于儿童和婴儿,该数值约增高 10% 和 30%。

2.1.2.2 原生放射性核素的内照射

除宇宙射线和陆地 γ 辐射之外,人体内长寿命原生放射性核素的内照射是天然本底照射的又一重要组成部分,其照射途径是吸入和食入。

⁴⁰K 是经食入途径对人造成内照射最主要的原生放射性核素。作为一种生命必要元素,人体内钾的含量受体内平衡的严格控制,与食物成分的改变无关。成年人每公斤体重的含钾量为 1.8g ,按钾元素中 ⁴⁰K 的同位素丰度为 0.0119% 计,成人体内 ⁴⁰K 的平均比活度为 $55\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ 体重,造成的内照射年有效剂量为 $165\mu\text{Sv}$ (对儿童为 $185\mu\text{Sv}$)。

²³⁸U 系及 ²³²Th 系放射性核素经食入和吸入途径对人造成内照射。根据人体组织中各种核素的放射性活度测量结果,采用适当的剂量转换因子,可以估计这类原生核素对人体造成的内照射剂量。此外,也可根据空气、水和各类食物中天然放射性核素的参考浓度(表 2.4)、不同年龄组公众成员的呼吸量、饮水量及食物消费量(表 2.5)计算相应的核素摄入量,采用相应的剂量转换因子,即可求得这类核素所致的内照射年有效剂量(表 2.6 及表 2.7)。

表 2.4 空气、水和食物中²³⁸U 系和²³²Th 系核素的参考浓度^[1]

摄 入 物	放 射 性 浓 度								
	²³⁸ U→ ²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po	²³² Th	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁵ U
食物 ^①									
奶制品	1	0.5	5	40	60	0.3	5	0.3	0.05
肉制品	2	2	15	80	60	1	10	1	0.05
谷类制品	20	10	80	100	100	3	60	3	1.0
叶菜	20	20	50	30	30	15	40	15	1.0
根菜水果	3	0.5	30	25	30	0.5	20	0.5	0.1
鱼类制品	30	-	100	200	2000	-	-	-	-
水和饮料 ^②	1	0.1	0.5	10	5	0.05	0.5	0.05	0.04
空气 ^③	1	0.5	0.5	500	50	1	1	1	0.05

①单位为 mBq·kg⁻¹； ②单位为 mBq·L⁻¹； ③单位为 μBq·m⁻³。

表 2.5 不同年龄组公众成员对水、空气、食物的摄入量参考值^[1]

摄 入 物	摄 入 量		
	成 人	儿 童	婴 儿
食物 ^①			
奶制品	105	110	120
肉制品	50	35	15
谷类制品	140	90	45
叶菜	60	40	20
根菜水果	170	110	60
鱼类制品	15	10	5
水和饮料 ^②	500	350	150
空气 ^③	8000	5500	1400

①单位为 kg·a⁻¹； ② 单位为 L·a⁻¹； ③单位为 m³·a⁻¹。

表 2.6 ²³⁸U 系和²³²Th 系核素的剂量转换因子(成人)^[1]

核 素	食 入		吸 入	
	吸收分数 f_1	转换因子 (μSv·Bq ⁻¹)	吸收类别	转换因子 (μSv·Bq ⁻¹)
²³⁸ U	0.05	0.025	S	30
²³⁴ U	0.05	0.03	S	30
²³⁰ Th	0.0002	0.07	S	50
²²⁶ Ra	0.2	0.2	M	2
²¹⁰ Pb	0.2	1	F	2
²¹⁰ Po	0.1	0.2	F	1
²³² Th	0.0002	0.4	S	200
²²⁸ Ra	0.2	0.3	M	1
²²⁸ Th	0.0002	0.07	S	100
²³⁵ U	0.05	0.03	S	30
²³¹ Pa	0.001	2	M	200
²²⁷ Ac	0.001	2	M	300

表 2.7 ^{238}U 系和 ^{232}Th 系核素的年龄加权年摄入量 and 有效剂量^[1]

核 素	食 入		吸 入	
	摄入量(Bq)	剂量(μSv)	摄入量(mBq)	剂量(μSv)
^{238}U	4.9	0.12	6.9	0.21
^{234}U	4.9	0.15	6.9	0.21
^{230}Th	2.5	0.18	3.5	0.18
^{226}Ra	19	3.8	3.5	0.01
^{210}Pb	32	32	3500	7.0
^{210}Po	55	11	350	0.35
^{232}Th	1.3	0.52	6.9	1.4
^{228}Ra	13	3.9	6.9	0.01
^{228}Th	1.3	0.09	6.9	0.69
^{235}U	0.21	0.01	0.4	0.01
合 计		52		10

2.1.3 氡

氡是一种放射性惰性气体,地球上三个原生的天然放射系中,分别存在氡的 3 个同位素,即 ^{222}Rn (^{238}U 系)、 ^{220}Rn (^{232}Th 系)和 ^{219}Rn (^{235}U 系)。由于岩石和土壤中 ^{235}U 含量很低, ^{219}Rn 的半衰期又很短,因此,它对人的照射没有太大的意义。同样,由于 ^{220}Rn 的半衰期很短,只有在岩石和土壤中 ^{232}Th 含量高的地区,其对人的照射才有必要加以考虑。

^{222}Rn 的照射是人受天然辐射照射最重要的来源。一般情况下,室内空气中 ^{222}Rn 及其短寿命子体的浓度远比室外高,因此,吸入室内空气中 ^{222}Rn 及其短寿命子体是最重要的照射途径。

2.1.3.1 氡的来源与迁移

^{222}Rn 是 ^{238}U 系中核素 ^{226}Ra 的衰变子体, ^{220}Rn 是 ^{232}Th 系中核素 ^{224}Ra 的衰变子体。因此,岩石、土壤和建筑材料中 ^{222}Rn 和 ^{220}Rn 的含量取决于其中存在的 ^{226}Ra 和 ^{224}Ra 的比活度。

含氡物质中一部分 ^{222}Rn 或 ^{220}Rn 原子因反冲作用而与母体脱离(释放),并因分子扩散和对流扩散作用而在这类多孔介质的孔隙中迁移,得以从裸露表面(地面或墙面)析出,进入大气或室内空气中。

含氡物质(射气介质)表面上单位时间内单位面积氡的析出活度称为氡的析出率,其数值大小与物质中母体核素镭的含量、孔隙率,氡的释放分数和扩散系数等因素有关。显然,含氡物质的含水量(湿度)、温度对氡的释放分数及介质的有效孔隙率有很大的影响,空气温度、湿度及物质表面情况(有无涂刷或覆盖层)则会明显影响氡在孔隙中的扩散程度。室内墙面和地面即使有涂料或地板覆盖,建筑材料及土壤中的氡也能经由其存在的孔洞和裂缝渗透而造成空气中氡的污染。

室内建筑材料及装饰材料中所含的氡系从上、下、左、右、前、后 6 个方向(地面、顶棚及墙面)释入室内,因此,室内空气中氡的浓度远比室外为高。

使用含氡量较低的建筑材料和装饰材料,经常注意通风换气,可明显降低室内空气中氡

的浓度。

由于氡可溶于水,因此,采用含氡量较高的地下水作为民用水源,也会增加室内氡的污染。此外,天然气也是一种潜在的氡污染源。

表 2.8 给出了室内外空气中²²²Rn 和²²⁰Rn 浓度的估计值。

表 2.8 室内外空气中²²²Rn 和²²⁰Rn 及其子体核素的平均浓度和年有效剂量^[1]

核 素	地 点	浓度(Bq·m ⁻³)		剂量转换因子 [nSv/(Bq·h·m ⁻³)]		年有效剂量 (μSv)	
		气体	EEC ^②	气体	EEC	气体	EEC
		²²² Rn	室外 ^①	10	8	0.17	9
	室内 ^①	40	16	0.17	9	48	1000
	合 计					1200	
²²⁰ Rn	室外 ^①	10	0.1	0.11	10	1.9	1.8
	室内 ^①	3	0.3	0.11	32	2.3	67
	合 计					73	

①居留因子:室外 0.2,室内 0.8;

②²²²Rn 子体的平衡因子室外为 0.8,室内为 0.4;²²⁰Rn 子体的平衡因子采用实测值。

2.1.3.2 氡及其短寿命子体核素的内照射剂量

²²²Rn 及²²⁰Rn 对人造成的内照射剂量主要来自其短寿命子体,这些子体核素经吸入进入人体后不均匀地沉积在呼吸道内,对支气管上皮造成照射。相比之下,吸入²²²Rn 及²²⁰Rn 本身所致的剂量则要小得多。

空气中²²²Rn 及²²⁰Rn 短寿命子体的浓度除用 Bq·m⁻³ 表示外,还常用单位体积空气中所含子体全部衰变完了(²²²Rn 子体衰变至²¹⁰Pb,²²⁰Rn 子体衰变至²⁰⁸Pb)所释出的 α 粒子总能量(α 潜能浓度,单位为 MeV·m⁻³)表示。1Bq 的²²²Rn 与其子体达到放射性平衡时,其子体衰变所释放的 α 粒子总能量为 3.5 × 10⁴ MeV;1Bq 的²²⁰Rn 与其子体达到放射性平衡时,其子体衰变释放的 α 粒子总能量为 4.7 × 10⁵ MeV。一般情况下,室内外空气中²²²Rn 及²²⁰Rn 的子体很少与它们达到平衡,因此,在氡及其子体的监测和剂量估计中,有必要引入平衡因子(F)和平衡当量浓度(EEC)两个概念。

平衡因子表示空气中实际的氡子体总 α 潜能浓度与和空气中氡浓度达到平衡时氡子体总 α 潜能浓度之间的比值;平衡当量浓度则表示空气中实际存在的氡子体总 α 潜能浓度所相应的与之平衡的氡浓度。一般情况下,室外大气中²²²Rn 子体的平衡因子为 0.8,室内为 0.4,据此,根据空气中²²²Rn 浓度的测量结果,乘以相应的平衡因子,即可求得相应的子体平衡当量浓度。

对氡及其子体分别采用适当的剂量转换因子,按室内外相应的居留因子,表 2.8 给出了室内外空气中²²²Rn 和²²⁰Rn 及其子体核素所致全球人均年有效剂量。从表中可见,吸入²²²Rn 及其子体所致的内照射年有效剂量为 1.2mSv(其中²²²Rn 子体的贡献为 1.13mSv),远比其他各项天然辐射源的剂量贡献大。

2.1.4 矿物的开采和应用

除作为核燃料原料的含铀矿物以外,煤、石油、泥炭、天然气、地热水(或蒸汽)、磷酸盐矿物和某些矿砂中天然放射性核素的含量也比较高,其开采和应用一定程度上会增加公众的天然辐射照射。

2.1.4.1 煤

煤开采时,煤矿排气中的氡及其子体会对公众造成照射。对于煤矿排出氡的测量数据还不多见,目前估计全世界煤的开采中氡的年释放量为30~800TBq。每年实践导致的全球人口集体有效剂量为0.5~10人·Sv,人均年有效剂量为0.2~2nSv^[2]。

全世界每年开采的煤,约40%用于燃煤电厂,10%用于住宅,50%用于其它工业。煤中天然放射性核素的平均比活度⁴⁰K为50Bq·kg⁻¹,²³⁸U为20Bq·kg⁻¹,²³²Th为20Bq·kg⁻¹,而我国煤中这3种核素的平均比活度分别为104、36和30Bq·kg⁻¹。

煤在1700℃高温下燃烧时,大部分矿物质熔化为陶质灰,其中一部分与未完全燃烧的有机质一起成为炉渣,较轻的飞灰则与炽热的烟道气和挥发物质一起升至烟囱,经烟囱净化装置将大部分烟灰收集后,小部分则释放到大气中。由于煤中大部分有机物质已烧尽,炉渣和飞灰中天然放射性核素的比活度大大高于原煤,其中⁴⁰K为265Bq·kg⁻¹,²³⁸U为200Bq·kg⁻¹,²²⁶Ra为240Bq·kg⁻¹,²¹⁰Pb为930Bq·kg⁻¹,²¹⁰Po为1700Bq·kg⁻¹,²³²Th为70Bq·kg⁻¹,²²⁸Th为110Bq·kg⁻¹,²²⁸Ra为130Bq·kg⁻¹。

随飞灰排入大气中的天然放射性核素的数量与煤中核素的比活度、煤的灰分、燃烧温度、炉渣与飞灰之间的分隔及净化装置效率等多种因素有关。据估计,世界上典型的老式及现代化燃煤电厂排入大气中的天然放射性核素相应的归一化总集体有效剂量分别为6和0.5人·Sv·(Gwa)⁻¹。我国的电厂由于原煤中铀、钍含量较高,净化装置过滤效率较低(90%),电厂周围人口密度大,其归一化总集体有效剂量高达50人·Sv·(Gwa)⁻¹。全球所有燃煤电厂的平均归一化总集体有效剂量为20人·Sv·(Gwa)⁻¹,按全球年燃煤发电量为400Gwa计,每年产生的集体有效剂量为8000人·Sv,人均年有效剂量为2μSv。

煤用于家庭烹饪和取暖及燃煤电厂煤灰(飞灰和炉渣灰兼有)用于制造水泥和混凝土等建筑材料,都会对公众造成相当大的辐射照射剂量,据估计,煤的这两项利用对应的全球人均年有效剂量分别为0.4~8μSv和5μSv。

2.1.4.2 其它能源生产

石油广泛用于运输车辆、发电和家庭取暖,由于石油灰分很低,燃油电厂一般不装设高效除灰装置。据估计,其产生的归一化总集体有效剂量约为0.5人·Sv·(Gwa)⁻¹,全球燃油电厂产生的年集体有效剂量为50人·Sv,人均年有效剂量为10nSv,其中,烟羽通过时的吸入剂量和沉积造成的内外照射剂量各占50%。

泥炭中天然放射性核素浓度大致与煤相同,燃泥炭电厂大气释放的归一化总集体有效剂量估计为2人·Sv·(Gwa)⁻¹。

全球天然气及地热发电厂产生的归一化总集体有效剂量各为3人·Sv·(Gwa)⁻¹,相应的人均年有效剂量各为1nSv。

2.1.4.3 磷酸盐矿物的应用

磷酸盐矿物是生产磷酸盐产品和磷肥的主要原材料,各类磷酸盐矿物中²³²Th和⁴⁰K的

比活度与土壤基本相似,沉积成因的磷酸盐矿物中²³⁸U的比活度高达 1500Bq·kg⁻¹,并与其衰变子体基本达到放射性平衡。

磷酸盐加工作业包括磷酸盐矿物开采、选冶和用湿工艺或热工艺生产磷酸盐产品。湿工艺厂生产的磷酸用于制造磷酸铵和三元过磷酸钙肥料,其副产品为磷石膏。热工艺厂生产的元素磷用于生产高级磷酸、磷酸盐基清洁剂和有机化学制品,其副产品是矿渣和磷铁。

全球磷酸盐工业设施 1a 排入大气的放射性物质产生的集体有效剂量估计为 60 人·Sv,文献报道若干元素磷厂周围公众的个人肺当量剂量估计值为 0.05~6mSv·a⁻¹。

磷肥厂产生的磷石膏大多排入地面水体中,其产生的公众集体有效剂量比大气释放物要大得多。

磷肥中²³⁸U和²²⁶Ra的比活度分别为 4000 和 1000Bq·kg⁻¹P₂O₅,全球每年消耗的磷肥量相当于 3000 万吨 P₂O₅,成为环境中可迁移的²²⁶Ra 最重要的来源之一。据估计,使用磷肥产生的全球公众集体年有效剂量为 10000 人·Sv,人均年有效剂量约为 2μSv。

磷石膏代替水泥制造墙板和灰泥,会使室内受照剂量增高,其中,外照射导致的空气吸收剂量率增加约 0.07μGy·h⁻¹,吸入氡子体的内照射年有效剂量增加约 0.6mSv。据估计,目前,磷石膏在建筑材料工业中的应用产生的全球年集体有效剂量为 5×10⁴ 人·Sv,人均年有效剂量约为 10μSv。

磷酸钙矿渣中²²⁶Ra的比活度高达 1300~2200Bq·kg⁻¹,在用含 43%(重量)矿渣的混凝土板建造的住宅中,室内空气的γ吸收剂量率高于本底水平达 0.3μGy·h⁻¹。

2.1.4.4 矿砂的开采和选冶

相对密度大于 2.9 的砂称为矿砂或重矿砂,具有商业价值的重矿砂有钛铁矿(FeO·TiO₂)、白钛石(Fe₂O₃·TiO₂)、金红石(TiO₂)、锆石(ZrSiO₄)、独居石(CePO₄, YPO₄)和磷钇矿(YPO₄),重矿砂中²³²Th和²³⁸U的比活度比普通岩石和土壤中高得多。

矿砂开采和选冶所致公众成员照射量的报道尚不多见,其导致关键人群组成员的年有效剂量约为 1mSv。

表 2.9 所示为各类天然辐射源所致成人平均年有效剂量的估计值。

表 2.9 天然辐射源所致成人平均年有效剂量^[1]

天然辐射源成分	年有效剂量(mSv)	
	正常本底地区	异常升高的地区
宇宙射线	0.38	2.0
宇生放射性核素	0.01	0.01
陆地辐射		
外照射	0.46	4.3
内照射(氡除外)	0.23	0.6
氡及其子体的内照射		
吸入 ²²² Rn	1.2	10
吸入 ²²⁰ Rn	0.07	0.1
食入 ²²² Rn	0.005	0.1
合计	2.4	

2.2 人工辐射源

除大气层核试验造成的全球性放射性污染之外,核能生产、放射性同位素的生产应用也会导致放射性物质伴随着气载或液态流出物的释放而直接进入环境。放射性废物或核材料贮存、运输及处置则可能造成放射性物质间接地进入环境。对公众造成自然条件下原本不存在的辐射照射的这类辐射源称为人工辐射源。

2.2.1 核试验

2.2.1.1 大气层核试验

核试验中核装置的爆炸能量来自重核 ^{235}U 和 ^{239}Pu 的链式裂变反应或氘和氚的热核聚变反应,其大小常以 TNT 当量表示。大气层核爆炸后裂变产物、剩余的裂变物质和结构材料在高温火球中迅速气化,近地面大气层爆炸时,火球中还夹带着大量被破碎分散的土壤和岩石颗粒,火球迅速上升扩展,其中的气态物质冷凝成分散度各不相同的气溶胶颗粒,这些颗粒具有很高的放射性比活度。

颗粒较大的气溶胶粒子因重力作用而沉降于爆心周围几百公里的范围内(局地性沉降);较小的气溶胶粒子则在高空存留较长时间后降落到大面积范围的地面上,其中进入对流层的较小颗粒主要在同一半球同一纬度区内围绕地球沉降(对流层沉降),进入平流层的微小颗粒则造成世界范围的沉降(全球沉降或平流层沉降)。

放射性核素在平流层中的存留时间因核爆的地点、时间和高度而异。 ^{90}Sr 在平流层内的平均存留时间为 1a, ^{14}C 则更长;各种核素在对流层中的平均存留时间约为 30d。底层大气中的放射性气溶胶因降雨作用而导致湿沉积。

放射性沉降物中大多是短寿命放射性核素,只在爆炸后短时期内对公众造成内外照射,目前对公众造成照射的则主要是其中的长寿命核素。

放射性沉降物对公众的照射包括经由吸入近地空气中的放射性核素和食入放射性污染的食物和水引起的内照射、空气中核素造成的浸没外照射和地面沉积核素造成的直接外照射。导致内照射的主要核素有 ^{14}C 、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 ^{106}Ru 、 ^{144}Ce 、 ^3H 、 ^{131}I 、 $^{239-241}\text{Pu}$ 、 ^{55}Fe 、 ^{241}Am 、 ^{89}Sr 、 ^{140}Ba 、 ^{238}U 和 ^{54}Mn 等,其中 ^{131}I 主要经由牧草—牛奶—人途径进入人体,也可经由蔬菜摄入,主要蓄积于人的甲状腺组织中。导致外照射的主要核素有 ^{137}Cs 、 ^{95}Zr 、 ^{106}Ru 、 ^{140}Ba 、 ^{144}Ce 、 ^{103}Ru 和 ^{140}Ce 等。

表 2.10 及表 2.11 分别给出 1980 年底以前大气层核试验产生的放射性核素造成的全球公众人均有效剂量负担及集体有效剂量的估计值。

居住在核武器试验场址附近的公众接受的剂量比表 2.10 中所示的全人口平均剂量要高得多。美国内华达试验场在 1951—1962 年间进行了 100 次地面和近地表核试验,总爆炸当量为 1Mt,公众剂量评价表明场址周围儿童的甲状腺剂量高达 1Gy,180000 人所受的外照射集体剂量估计为 500 人·Sv。前苏联地区一试验场曾进行过多次大气层核试验和约 300 次地下核试验,其周围 10000 人所受的外照射集体剂量约为 2600 人·Sv,食入内照射集体剂量为 2000 人·Sv,甲状腺的集体吸收剂量高达 10000 人·Gy。

2.2.1.2 地下核试验

封闭较好的地下核爆炸对参试人员及公众造成的剂量或剂量负担都很小,但偶然情况下,泄漏和气体扩散会使放射性物质从地下泄出,造成局部范围的污染。美国内华达试验场进行了 500 多次地下核试验,其中 32 次发生了泄漏,共向大气释放了 5×10^{15} Bq 的 ^{131}I ,对周围公众造成的总集体有效剂量约为 50 人·Sv。全球地下核试验中释出的 ^{131}I 造成的集体有效剂量估计为 150 人·Sv。

表 2.10 大气层核试验造成的全球人均有效剂量负担^[1]

核 素	有效剂量负担(μSv)			总 计
	外照射	食 入	吸 入	
^3H		44	3.3	47
^{14}C		2600	0.26	2600
^{54}Mn	57		0.13	57
^{55}Fe		8.2	0.02	8.2
^{89}Sr		1.4	1.9	3.3
^{90}Sr		102	9.0	111
^{91}Y			2.8	2.8
^{95}Zr	85		1.9	87
^{95}Nb	40		0.82	41
^{103}Ru	12		0.56	13
^{106}Ru	44		26	69
^{125}Sb	27		0.08	28
^{131}I	1.4	48	2.0	51
^{137}Cs	300	170	0.35	470
^{140}Ba	15	0.25	0.21	16
^{141}Ce	1.0		0.43	1.5
^{144}Ce	14		38	52
^{238}Pu		0.0005	0.72	0.72
^{239}Pu		0.18	18	18
^{240}Pu		0.13	12	12
^{241}Pu		0.003	5.4	5.4
^{241}Am		0.87	14	15
合 计	600	2980	140	3700

用于开挖作业的浅层地下核爆炸和采矿操作中的较深层地下核爆炸也都会导致放射性物质向环境释放,内华达试验场进行的一次 104ktTNT 当量的成坑试验中,对周围 10 万公众导致总集体有效剂量为 3 人·Sv。

2.2.2 核武器制造

军用放射性物质生产和核武器制造可能导致放射性核素的常规和事故释放,造成局地 and 区域性环境污染,对当地公众产生一定程度的辐射照射。

核武器中的放射性核素有 ^{239}Pu 、 ^{235}U 、 ^{238}U 、 ^3H 和 ^{210}Po 等。其生产过程包括铀矿开采、水冶、 ^{235}U 的浓缩、 ^{239}Pu 和 ^3H 的生产、武器的制造、组装、维修、运输及核材料的再循环使用,都会因核素的释放而对工作人员和公众造成照射。美国汉福特钚生产厂 1944—1956 年间向大气释放 ^{131}I 的数量估计为 2×10^{16} Bq,其对公众造成的集体有效剂量约为 8000

人·Sv。前苏联某一军用铀生产设施 1949—1956 年间向附近河流中排放了 1×10^{17} Bq 的液态放射性物质,其中包括⁸⁹Sr、⁹⁰Sr、¹³⁷Cs、稀土同位素、⁹⁵Zr—⁹⁵Nb 和放射性钆,公众成员的最大个人累积有效剂量超过 1Sv,集体有效剂量约为 15000 人·Sv。

表 2.11 大气层核试验所致全球人口的集体有效剂量^[1]

核 素	集体有效剂量($\times 10^3$ 人·Sv)			
	外照射	食 入	吸 入	总 计
¹⁴ C		25800	2.6	25800
¹³⁷ Cs	1210	677	1.1	1890
⁹⁰ Sr		406	29	435
⁹⁵ Zr	272		6.1	278
¹⁰⁶ Ru	140		82	222
³ H		176	13	189
⁵⁴ Mn	181		0.4	181
¹⁴⁴ Ce	44		122	165
¹³¹ I	4.4	154	6.3	164
⁹⁵ Nb	129		2.6	131
¹²⁵ Sb	88		0.2	88
²³⁹ Pu		1.8	56	58
²⁴¹ Am		8.7	44	53
¹⁴⁰ Ba	49	0.81	0.66	51
¹⁰³ Ru	39		1.8	41
²⁴⁰ Pu		1.3	38	39
⁵⁵ Fe		26	0.06	26
²⁴¹ Pu		0.01	17	17
⁸⁹ Sr		4.5	6.0	11
⁹¹ Y			8.9	8.9
¹⁴¹ Ce	3.3		1.4	1.4
²³⁸ Pu		0.003	2.3	2.3
合 计	2160	27200	440	30000

据估计,军用铀、钚生产造成局地 and 区域公众集体剂量为 800 人·Sv,全球人口为 40000 人·Sv。

2.2.3 核能生产

核能生产涉及整个核燃料循环,其中包括的主要环节有铀矿开采、水冶、²³⁵U 的浓缩、燃料元件制造、核反应堆发电、乏燃料贮存或后处理及放射性废物的贮存和处置,放射性物质在整个核燃料循环的各环节间循环。

各类核设施造成的个人受照剂量因设施的类型及所在地点不同而有很大的差异。一般情况下,个人剂量随与给定源距离的增大而迅速降低,通常用归一化的单位电能生产量相应的集体有效剂量(人·Sv·(GWa)⁻¹)说明核燃料循环中各种设施因核素排放造成的总的环境影响。

2.2.3.1 铀矿开采和水冶

具有开采价值的铀矿石中天然铀的含量为千分之一至百分之几,矿石开采出来后,在水

冶设施中加工制成重铀酸铵、三碳酸铀酰铵、八氧化三铀、二氧化铀等初级制品。根据矿区地形条件和矿床赋存特点,铀矿物采用地下和露天两种开采方式。开采出来的矿石经放射性分选后,经破磨、浸出、离子交换、萃取、沉淀和结晶等水冶工艺,制备出铀化学浓缩物和核纯产品。铀的浸取一般采用酸法或碱法流程,酸法流程中铀的浸出率为 95%,回收率为 90%左右;碱法流程铀的浸出率为 92%,回收率为 85%左右。

铀矿石开采过程中崩落的围岩、覆盖岩石和表外矿石,分选过程中产生的尾矿统称为废石,其产生量因开采方式不同而异(地下开采为矿石产量的 0.9~1.5 倍,露天开采为矿石产量的 5~8 倍),水冶过程中每处理 1t 矿石约产生 1.2t 尾矿。废石除部分回填外,均堆存于专用的露天堆场内作永久贮存,水冶尾矿矿浆经石灰乳中和后,泵入专用的尾矿库内永久贮存。

采矿过程中,每开采 1t 矿石约产生 0.5~3.0t 废水(坑道废水及凿岩工艺废水),经离子交换回收铀后排放。水冶厂每处理 1t 矿石产生 8~10t 废水,除部分返回复用外,与尾矿矿浆合并中和后泵入尾矿库,尾矿库废水经除镭处理后排放。

氡是铀矿开采和水冶设施释放的最主要的气载放射性核素,矿井中氡的当量析出率为 $110\sim 180\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$,废石场及尾矿库内为 $0.1\sim 2.0\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$,水冶厂粗砂、细泥中氡的释放分数约为 20%。

水冶尾矿中残留铀含量为 0.001%~0.01%,而且,矿石中原含的²³⁴U 以下的衰变产物全部残留于尾矿中,因此,露天堆放的水冶尾矿是大气中²²²Rn 的长期释放源。为此,应采用表面覆盖、固定化处理等方法降低尾矿堆表面氡的析出,降低周围环境中的 γ 外照射剂量,并防止风雨作用导致尾矿流失而扩大污染范围。

堆浸工艺用于易浸出的低品位矿石、表外矿石及选冶尾矿的处理,有利于提高铀的资源利用率,减小水冶工艺对环境的污染。

矿石经破碎、造粒后,在地表或地下预先铺设的底垫上铺筑成矿堆,表面布洒酸性或碱性溶浸液,使之与矿石堆充分接触,矿石中的铀即以离子或络合离子形式转入溶液中,浸出液由矿石堆底部集水系统收集后制备铀浓缩物。

堆浸工艺流程短,工序少,设施简单,能耗、水耗和生产成本低,溶浸剂用量比搅拌浸出减少 70%,废水量仅为搅拌浸出的 7%~15%,其尾矿为干的块粒,便于返回井下充填或地表堆存。

对于赋存于具有上、下不透水顶底板隔水层的砂质含水层中,具有天然渗透性的层状外生铀矿床,可就地通过钻井将溶浸液直接注入矿体中,使其中的铀溶解,含铀溶液在对流作用下离开反应区,进入岩层地下水中,从其它钻井中抽提至地面制备铀浓缩物。

地浸工艺基建投资省,建设周期短,生产成本低,特别适用于规模小、埋藏深、品位低的铀矿床。该方法免除了矿石的开采和破碎,不需建造和管理废石堆及尾矿库,基本上不破坏地面环境。

地浸工艺最大的缺点是长期向地下注入溶浸液,使含矿含水层的地球化学环境及水质发生变化,可能造成地下水的污染。为此,应严格控制含矿含水层中溶浸液的污染范围;地浸结束后,应不断抽取污染的地下水,在污染区形成负压,用周围清洁的地下水取代,使污染区地下水水质逐渐恢复,将抽出的污染地下水经反渗透装置净化处理后,重新注入污染区中,使之不断稀释,则可进一步提高对地下水的净化效果。

表 2.12 所示为铀矿开采和水冶设施气载流出物中放射性核素的归一化释放量及其所导致的集体有效剂量的估计值。

表 2.12 铀矿开采和水冶的归一化气载流出物放射性释放量和集体剂量^{①(1)}

核 素	归一化释放量[GBq(GWa) ⁻¹]				归一化集体有效剂量[人·Sv·(GWa) ⁻¹]			
	铀 矿	水冶厂	水冶尾矿		铀 矿	水冶厂	水冶尾矿	
			运行的	废弃的			运行的	废弃的
²¹⁰ Pb		0.02				0.00002		
²¹⁰ Po		0.02				0.00002		
²²² Rn	75000	3000	20000	1000 ^②	1.1	0.045	0.3 ^③	150 ^④
²²⁶ Ra		0.02				0.00001		
²³⁰ Th		0.02				0.0006		
²³⁴ U		0.4				0.003		
²³⁸ U		0.4				0.003		

①液态流出物释放对集体剂量的贡献可忽略不计；

②年释放活度,假定释放率 10000a 不变；

③5a 释放所致剂量负担；

④10000a 释放所致剂量负担。

2.2.3.2 ²³⁵U 的浓缩及铀燃料元件制造

水冶厂的铀浓缩物产品经进一步纯化后转化为四氟化铀(UF₄)或六氟化铀(UF₆)，采用气体扩散或超速离心工艺使天然铀中²³⁵U 的含量由 0.7% 提高到 2%~3%，再转化为铀氧化物或金属铀，制成反应堆燃料元件。

铀的转化、浓缩和燃料元件制造过程中放射性核素的释放量很小，主要包括长寿命铀同位素²³⁴U、²³⁵U 和²³⁸U，以及²³⁸U 的短寿命子体²³⁴Th 和^{234m}Pa，固体废物的产生量也很少。表 2.13 所示为²³⁵U 浓缩和元件制造设施放射性流出物的归一化排放量。

吸入是气载流出物对人造成照射的主要途径，以距设施 2000km 范围内人口密度为 25 人·km⁻²计，其归一化集体有效剂量为 2.8×10⁻³人·Sv·(GWa)⁻¹，液体排放所致的集体剂量则更低。

表 2.13 ²³⁵U 浓缩和元件制造设施放射性核素归一化释放量^[1]

核 素	大气释放[MBq(GWa) ⁻¹]			水体释放[MBq(GWa) ⁻¹]		
	转 换	浓 缩	制 造	转 换	浓 缩	制 造
²²⁶ Ra				0.11		
²²⁸ Th	0.022					
²³⁰ Th	0.4					
²³² Th	0.022					
²³⁴ Th	130	1.3	0.34			170
²³⁴ U	130	1.3	0.34	94	10	170
²³⁵ U	6.1	0.06	0.0014	4.3	0.5	1.4
²³⁸ U	130	1.3	0.34	94	10	170

2.2.3.3 反应堆运行

核电厂通常采用热中子反应堆生产电能。铀燃料元件装入反应堆中,天然铀中的²³⁵U吸收中子而发生裂变反应,产生大量的裂变产物核素,放出中子,并释放大量的能量,经一回路及二回路系统将水转化为蒸汽,驱动汽轮发电机运行而生产电能。裂变过程中产生的中子一部分维持²³⁵U的链式反应,另一部分则被天然铀中的²³⁸U吸收,使之转化为²³⁹Pu。燃料元件中²³⁵U达到一定的燃耗时,即从堆中卸出,在冷却水池中冷却到一定的时间后,乏燃料元件即作为高放射性废物贮存、处置,或送到后处理厂进行处理。

在反应堆正常运行的情况下,燃料元件中²³⁵U裂变而产生的各种气态及颗粒态裂变产物核素都包容在元件包壳内,但个别元件包壳的破损会使其因扩散而向大气释放或进入冷却剂中。此外,堆结构材料和包壳材料的腐蚀产物在堆芯区也会被中子活化,由此导致冷却剂的污染。因此,各类反应堆都装有净化装置去除气载及液态放射性核素。表 2.14 所示为 1985-1989 年间全球各种类型的反应堆气载流出物中惰性气体(氡、氦、氩)、³H、¹⁴C、¹³¹I、颗粒物和液体流出物中³H 及其它放射性核素的归一化释放量。

表 2.14 1985-1989 年间各类反应堆放射性核素的归一化释放量^①

核 素	归一化释放量 [TBq(GWa) ⁻¹]						总计 ^①
	压水堆	沸水堆	气冷堆	重水堆	轻水石墨堆	快中子增殖堆	
气载核素							
惰性气体	81	290	2100	190	2000	150	330
³ H	2.8	2.5	9.0	480	26 ^②	96	30
¹⁴ C	0.12	0.45	0.54	4.8	1.3	0.12 ^②	0.52
¹³¹ I	0.0009	0.0018	0.0014	0.0002	0.014	0.0009	0.0018
粒子	0.0020	0.0091	0.0007	0.0002	0.012	0.0002	0.0040
液态核素							
³ H	25	0.79	120	370	11 ^②	2.9	41
其它核素	0.045	0.036	0.96	0.030	0.045 ^②	0.028	0.079

①按不同类型反应堆发电量的加权平均值; ②估计值。

表 2.15 1985-1989 年间反应堆核素释放导致的归一化集体剂量^①

堆 型	发电量 (%)	归一化集体有效剂量 [人·Sv·(GWa) ⁻¹]						
		气载流出物					液态流出物	
		惰性气体	³ H	¹⁴ C ^①	¹³¹ I	粒子	³ H	其它核素
压水堆	62.13	0.010	0.030	0.22	0.0003	0.011	0.020	0.0009
沸水堆	22.35	0.075	0.028	0.81	0.0009	0.049	0.0006	0.0061
气冷堆	3.98	0.024	0.099	0.97	0.0007	0.0038	0.097	0.038
重水堆	5.26	0.023	5.3	8.6	0.0001	0.0011	0.30	0.0006
轻水石墨堆	5.88	0.24	0.29	2.3	0.0069	0.065	0.0089	0.0009
快中子增殖堆	0.40	0.018	1.1	0.22	0.0005	0.0010	0.0023	0.0006
加权平均		0.039	0.33	0.94	0.0008	0.022	0.033	0.004
总 计					1.4			

①仅为局地 and 区域部分。

世界上大部分核电厂位于北欧和美国东北部地区,根据这一地区的人口分布状况,以平

均人口密度为 $20 \text{ 人} \cdot \text{km}^{-2}$ 计,一典型厂址周围 2000 km 范围内总人口为 2.5 亿,厂址周围 50 km 范围内人口密度则按 $400 \text{ 人} \cdot \text{km}^{-2}$ 计。按表 2.14 给出的核素归一化释放量,采用适当的剂量估算模式和转换因子,1985-1989 年间全世界反应堆核素释放导致的归一化全人口集体剂量估计为 $1.4 \text{ 人} \cdot \text{Sv} \cdot (\text{GWa})^{-1}$ (表 2.15),截至 1989 年所有反应堆运行导致的集体剂量总和估计为 $3700 \text{ 人} \cdot \text{Sv}$,除 ^3H 和 ^{14}C 外,绝大部分集体剂量是由局地_地和区域范围内居民承受的。

2.2.3.4 乏燃料后处理

反应堆乏燃料元件在冷却水池中冷却一定时间后,卸入溶解器中进行湿法去壳,然后进行铀芯溶解,溶解后的料液经共去污后,采用萃取分离方法,先使铀、钚和裂变产物分离,而后再将铀和钚分离。铀、钚料液分别纯化,制成合格的铀、钚产品。

后处理产生的气载废物中主要含有反应堆运行过程中燃料元件内因活化和裂变反应而产生的惰性气体、 ^3H 、 ^{14}C 、 ^{129}I 和 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{239}Pu 气溶胶,分别经贮存衰变、除碘和高效过滤装置净化处理,最后经高烟囱排入大气。

后处理工艺废液经蒸发、脱硝、降低酸度和减容后,高放浓缩液送地下贮罐贮存,中、低放浓缩液经中和后贮存,冷凝液经多级处理合格后排放。非工艺废液经砂滤、蒸发、离子交换处理,在任何一级处理后检测合格即可排放,蒸残液亦送地下贮罐贮存。

表 2.16 所示为 1985-1989 年间全球乏燃料后处理厂造成的局地和区域的归一化集体有效剂量,截至 1989 年所有后处理厂释放核素导致的局地和区域集体剂量总和估计为 $4600 \text{ 人} \cdot \text{Sv}$ 。

表 2.16 1985-1989 年燃料后处理导致的局地和区域归一化集体有效剂量^[1]

核 素	归一化释放量 ^① [TBq(GWa) ⁻¹]	归一化集体剂量[人·Sv·(GWa) ⁻¹]	
		对后处理归一	对发电量归一 ^②
气载流出物			
^3H	41	0.11	0.004
^{14}C	2.0	0.81	0.033
^{85}Kr	12300	0.091	0.004
^{129}I	0.0057	0.25	0.010
^{131}I	0.0007	0.0003	0.00001
^{137}Cs	0.0015	0.017	0.0007
合 计			0.05
液态流出物			
^3H	643	0.0012	0.00005
^{14}C	0.54	0.21	0.009
^{90}Sr	11	0.13	0.005
^{106}Ru	39	2.8	0.11
^{129}I	0.032		
^{137}Cs	13	1.1	0.042
合 计			0.17

①对燃料后处理归一化; ②1985-1989 年后处理燃料份额为 0.04。

2.2.3.5 全球弥散的放射性核素

反应堆和乏燃料后处理厂气载及液态流出物中的 ^3H 、 ^{14}C 、 ^{85}Kr 及 ^{129}I 易于迁移和弥散,

可在全球范围内广泛分布,且具有足够长的寿命(^{129}I 的半衰期长达 $1.5 \times 10^7\text{a}$),可在几千年以至几千万年的时期内对全球公众造成照射。表 2.17 所示为反应堆和乏燃料后处理厂释出的这类全球弥散的放射性核素的归一化释放量及相应的 10000a 内的集体有效剂量,由此求得截至 1989 年全球反应堆及后处理厂释放的这类核素导致的 10000a 内全球人口集体有效剂量为 123000 人·Sv,其中 99% 以上为 ^{14}C 的贡献。

表 2.17 10000a 内全球弥散核素导致的归一化集体有效剂量^[1]

核 素	归一化释放活度[$\text{TBq}(\text{GWa})^{-1}$]			归一化集体剂量 [人·Sv·(GWa) ⁻¹]
	反应堆 ^①	后处理 ^②	总 计 ^③	
^3H	71	684 ^④	98	0.09
^{14}C	0.52	2.54	0.62	53
^{85}Kr		12300	490	0.1
^{129}I		0.038	0.0015	0.006
总 计				53

①对总发电量归一化;②对燃料后处理归一化;③对总发电量归一化,燃料后处理份额为 0.04;

④海洋释放 $643 \text{ TBq}(\text{GWa})^{-1}$,其余释入空气。

2.2.3.6 固体废物的处置和运输

反应堆运行及乏燃料后处理、整备和处置中产生的中、低放射性固体废物一般在近地表设施内埋藏处置,高放固体废物则倾向于深地层地质处置,退役后的反应堆也将成为未来固体废物管理的一个组成部分。

固体废物处置对公众造成照射的主要途径是废物体中所含的放射性核素被地下水浸出而造成的核素迁移。反应堆废物导致的归一化集体剂量约为 $0.5 \text{ 人} \cdot \text{Sv} \cdot (\text{GWa})^{-1}$,几乎全部是其中的 ^{14}C 引起的。乏燃料后处理和整备废物的归一化集体剂量约为 $0.05 \text{ 人} \cdot \text{Sv} \cdot (\text{GWa})^{-1}$ 。

各种放射性物质及废物的运输会对沿途公众产生小剂量的外照射,其归一化集体有效剂量约为 $0.1 \text{ 人} \cdot \text{Sv} \cdot (\text{GWa})^{-1}$ 。

2.2.4 放射性同位素的生产和应用

放射性同位素的生产及其在工业、医疗、教学、研究等部门日益广泛的应用和相关的废物处置,也会对公众造成一定剂量的照射。密封源中的放射性同位素一般不会被释放,但放射性药盒中的同位素、 ^{14}C 和 ^3H 最终会向环境释放,其释放总量与生产总量大致相当。病人治疗过程中口服 ^{131}I 后,第一天随尿液排出量即达 2/3,但经医院贮罐贮存衰变处理之后,最终排放的液体流出物中 ^{131}I 的数量仅为服用量的 5×10^{-4} ,对城市下水道及天然水系统的污染影响极小。

商用及医用同位素的生产量一般很难估计,对其生产和应用过程中的释放报道也很少见。据估计,日本对 ^{14}C 、 ^{125}I 、 ^3H 和 ^{131}I 每百万人的使用量分别为 5.2、6.1、14 和 34GBq;美国对 ^{14}C 标记化合物每百万人使用量为 30GBq;1987 年英国商用 ^{14}C 生产厂流出物排放总量为 32TBq,相当于每百万人 55GBq。表 2.18 所示为全球放射性同位素生产量和释放量及所致全球人口年集体有效剂量的估计值。

表 2.18 放射性同位素生产和应用所致全球人口年集体有效剂量估算^[1]

核 素	年归一化产量 ^① (GBq/10 ⁶ 人)	年全球产量和释放量 ^② (PBq)	年集体有效剂量 (人·Sv)
³ H	80	0.13	1.4
¹⁴ C	30	0.05	86 ^③
⁸⁵ Kr	10	0.02	0.004
¹²³ I	400	0.7	0.01
¹²⁵ I	40	0.06	7
¹³¹ I	200	0.3	9
¹³³ Xe	1600	2.6	0.4
合 计			100

①仅包括发达国家;

②相当于 1.6×10^9 人(发达国家 $1.2 \times 10^9 \times 100\%$ + 发展中国家 $3.7 \times 10^9 \times 10\% = 1.6 \times 10^9$);

③局地 and 区域短期剂量,长期年集体有效剂量为 4000 人·Sv。

2.2.5 核事故

民用和军用核设施及核材料运输都发生过事故,其中有些事故对环境造成了严重污染,产生了相当大的公众照射剂量。

2.2.5.1 民用核反应堆事故

迄今为止,民用核反应堆发生过两次比较严重的事故,即 1979 年 3 月的美国三里岛反应堆事故和 1986 年 4 月的前苏联切尔诺贝利反应堆事故。

造成三里岛事故的直接原因是未能关闭减压阀,使没有冷却的燃料遭到严重破坏。损坏的燃料元件向反应堆安全壳内释放大量的放射性物质,由于安全壳仍保持完好,放射性核素向环境的释放量相对较小,惰性气体释放量约为 370PBq,其中主要是¹³³Xe 和¹³¹I 的释放,其释放量约为 550GBq。

事故释放对工厂周围 80km 范围内公众造成的人均剂量为 15 μ Sv,最大个人 γ 外照射剂量估计为 850 μ Sv。80km 内公众集体有效剂量为 20 人·Sv,总的局地和区域公众集体有效剂量为 40 人·Sv。

造成切尔诺贝利事故的原因是低功率工程试验过程中出现失控性不稳定状态,当反应堆功率回升时,反应堆失去保护,热量带不出来,温度不断升高,以致二千多吨堆芯石墨过热而燃烧,最终引起化学爆炸和大火,使反应堆遭到破坏,导致放射性气体和颗粒物向环境释放。事故发生后第十天,火被扑灭,放射性物质释放随即停止。事故发生后 3 个月内共有 31 人死亡(其中,大多数人是烧伤致死的),死者均为反应堆操作人员和消防人员。

事故中释放的放射性核素总量估计为 1~2EBq,主要的放射性核素为¹³¹I(630PBq)、¹³⁴Cs(35PBq)和¹³⁷Cs(70PBq),其中弥散到其它国家的核素量¹³¹I 为 210PBq,¹³⁷Cs 为 39.2PBq。

事故发生后约有 135000 名居民从反应堆周围 30km 的隔离带撤出,大多数撤出人员受到的外照射剂量低于 0.25Sv(最大个人剂量为 0.3~0.4Sv),相应的外照射集体剂量为 16000 人·Sv。人均甲状腺剂量为 0.3Gy(儿童个人甲状腺剂量可能高达 2.5Gy),相应的集

体甲状腺剂量 40000 人·Gy。

反应堆周围 30km 以外公众的受照情况与风向有密切的关系,放射性烟云通过时如有降雨, ^{137}Cs 及其它裂变产物核素的地面沉积密度即大为增高,前苏联境内约 10000km² 地区内 ^{137}Cs 的地面污染强度大于 560kBq·m⁻²,21000km² 地区内大于 190kBq·m⁻²。当时,将 786 个居民点划定为严格控制区,实行了防止食用污染食品的措施,即使如此,控制区内 270000 居民在事故发生后 1a 内受到的人均有效剂量仍达到 37mSv,1987 - 1989 年间总计为 23mSv。

切尔诺贝利事故所造成的全球人口集体有效剂量估计为 600000 人·Sv,其中,前苏联领土内公众约占 40%,其它欧洲国家占 57%,北半球其它国家占 3%。

2.2.5.2 军用核设施

迄今已报道的造成可测得的公众照射的军用核设施事故是 1957 年 9 月发生的前苏联车尔雅宾斯克钚生产中心事故和同年 10 月发生的英国温茨凯尔反应堆事故。

车尔雅宾斯克钚生产中心一个容量为 300m³ 的贮存罐中存放着约 70~80t 的硝酸盐-乙酸盐形态的高放废液,其放射性活度为 1EBq,腐蚀及程序监测系统失效导致冷却系统损坏,罐内温度升高,水分蒸发,沉渣干燥后温度高达 300~350℃,随即发生爆炸,其当量约达 70~100t TNT,罐中放射性核素有 10% (约为 100PBq) 因弥散而释入环境,其中主要是 ^{144}Ce + ^{144}Pr (66%)、 ^{95}Zr + ^{95}Nb (24.9%)、 ^{90}Sr + ^{90}Y (5.4%) 和 ^{106}Ru + ^{106}Rh (3.7%),此外还有 ^{137}Cs 、 ^{89}Sr 、 ^{147}Pm 、 ^{155}Eu 和 $^{239,240}\text{Pu}$ 等。

事故时放射性烟云上升到约 1000m 的高空,11h 内在厂区周围约 300km 范围内形成一个椭圆形的放射性沉积区,其边界上 ^{90}Sr 的地面沉降密度为 4kBq·m⁻² (为全球落下灰水平的 2 倍)。此后,已沉积的核素在一定程度上又出现了再分布,1a 后污染区面积达到 15000~23000km²,涉及人口约 27 万。

事故后几个月内公众主要受照途径是外照射,随后则是食物中锶的污染造成的食入内照射。事故后 10d 撤离的居民平均个人外照射剂量为 170mSv,胃肠道剂量为 500mSv,平均有效剂量为 520mSv,集体剂量为 1300 人·Sv。未撤离的居民第一年所受剂量占总有效剂量的 50%,前 10a 占 90%,前 30a 几乎占 100%。在 ^{90}Sr 沉积密度为 4~40kBq·m² 的地区内,25000 人在 30a 内受到的总集体有效剂量为 1200 人·Sv。

温茨凯尔气冷反应堆由于操作失误燃料过热起火,火情持续 3d,造成大量放射性核素的释放。事故中释放 ^{131}I 为 740TBq, ^{137}Cs 为 22TBq, ^{106}Ru 为 3TBq, ^{133}Xe 为 1.2PBq。此外还有 8.8TBq 的 ^{210}Po (堆芯中铀块的中子活化产物)。

事故释放造成大范围牧区的污染,对公众造成照射的主要核素是 ^{131}I ,主要途径是经牧草—奶牛—牛奶途径的摄入,场址附近公众中,成人甲状腺剂量约 10mGy,儿童可能高达 100mGy。事故在英国及其它欧洲国家造成的总集体有效剂量估计为 2000 人·Sv,其中地面沉积外照射占 300 人·Sv,吸入内照射占 900 人·Sv,食入内照射占 800 人·Sv。主要贡献来自 ^{131}I (37%)、 ^{210}Po (37%) 和 ^{137}Cs (15%)。

2.2.5.3 核武器运输

1966 年 1 月在西班牙地中海岸曾发生装运核武器的飞机坠毁事故,未能及时打开降落伞的核武器击地引起起爆炸药爆炸,易裂变物质释放,导致 2.26km² 的城乡地区受 ^{239}Pu 和 ^{240}Pu 的污染。事故发生后, α 核素沉积密度大于 1.2MBq·m⁻² 的区域内,污染的蔬菜及

表层 10cm 的土壤作为放射性废物收集、分类和处置,污染水平较低的区域,耕地进行灌溉、深耕和混匀,或用手工作必要的清除。据估计有 55 人因吸入受到的 70a 待积有效剂量为 20~240mSv,集体有效剂量约为 1 人·Sv。

1968 年 1 月发生于格陵兰的一起飞机坠毁事故造成约 0.2km² 的区域受到污染。此外,还发生过多起海上运输事故。

2.2.5.4 卫星重返

曾发生过几起卫星重返地面事故。1964 年,以²³⁸Pu 为动力的 SNAP-9A 卫星重返大气层时燃烧,约 600TBq 的放射性核素释入平流层中。由于事故发生于南半球,因此,事故造成的南半球人均食入剂量负担为 1.2nSv,北半球为 0.3nSv,以人口加权的全球人口平均为 0.4nSv。对于半衰期较长的²³⁸Pu,可考虑受照人口为 6×10⁹,故该事故导致的食入集体有效剂量估计为 2.4 人·Sv。吸入所致的集体有效剂量估计为 2100 人·Sv。

2.2.5.5 辐射源丢失

国内外发生过多次工业和医用小密封源丢失事故,对涉及的公众成员造成相当大的外照射剂量,甚至发生放射病以至死亡,破碎的辐射源还造成一定范围的环境污染。

表 2.19 所示为各类人工辐射源放射性核素释放量及其所致集体有效剂量的估计值。

表 2.19 人工辐射源放射性核素释放量及所致集体有效剂量⁽¹⁾

源	释放量 (PBq)						集体有效剂量 (人·Sv)	
	³ H	¹⁴ C	惰性气体	⁹⁰ Sr	¹³¹ I	¹³⁷ Cs	局地和区域	全球
大气层核试验								
全球	240000	220		604	650000	910		22300000
局地							5960	
地下核试验			50		15		200	
核武器制造								
早期							15800	
后期							31000	10000
核电生产								
矿冶							2700	
反应堆运行	140	1.1	3200		0.04		3700	
燃料后处理	57	0.3	1200	6.9	0.004	40	4600	
燃料循环							300000 ^①	100000
同位素生产与应用事故	2.6	1.0	52		6.0		2000	80000
三里岛			370		0.0006		40	
切尔诺贝利					630	70		600000
其它							4793	2120
合计							380000	23100000
总计								23500000

①尾矿中²²²Rn 释放造成的长期集体剂量。

表 2.20 所示为各类辐射源所致全球人口集体剂量的相对贡献。从表中可见,在全球人口集体剂量估算值中,天然辐射源所占的份额为最大;在人工辐射源所致公众照射的集体剂量估算值中,则以大气层核试验所占的份额为最大。

表 2.20 50a 连续照射或 1945—1992 年间发生的事件所致
世界人口的集体剂量^[1]

辐射源种类	辐射照射类型	剂量估算的基础	集体有效剂量(10 ⁶ 人·Sv)
天然辐射源	天然照射	以目前的照射率持续 50a	650
人工辐射源	公众照射		
	大气层核试验	已终止的实践	30
	核能生产	迄今已完成的实践	0.4
		以目前的照射率持续 50a	2
	严重事故	迄今已发生的事件	0.6
	职业照射	以目前的照射率持续 50a	0.6
	医疗		0.05
	核能生产		0.12
	工业应用		0.03
	国防活动		0.01
	非铀采矿		0.4
	医疗照射	以目前的照射率持续 50a	165
	诊断		90
	治疗		75

参 考 文 献

- 1 United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation(UNSCEAR). 1993 年向联合国大会提交的报告和科学附件, 电离辐射源与效应. 中国核工业总公司安防环保卫生局, 中国辐射防护学会译. 北京: 原子能出版社, 1995
- 2 UNSCEAR. Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation. UNSCEAR 1988 Report to the General Assembly, with annexes. New York: United Nations, 1988
- 3 章仲侯主编. 放射卫生学. 北京: 原子能出版社, 1985
- 4 潘自强等编. 中国核工业三十年辐射环境质量评价. 北京: 原子能出版社, 1990
- 5 李尚远等编. 铀·金·铜矿石堆浸原理与实践. 北京: 原子能出版社, 1997
- 6 王海峰主编. 原地浸出采铀技术与实践. 北京: 原子能出版社, 1998

第3章 环境辐射监测方法和技术

环境辐射是环境中各种天然辐射与人工辐射的总称。本底辐射原指某特定环境系统或地区未受人类核活动干扰或某一核设施建造、运行前业已存在的天然辐射水平,但由于大气层核试验所致全球放射性沉降造成的辐射与天然辐射难以区分,故常将两者合称为“本底辐射”。

核设施产生的放射性核素会因流出物排放及废物处置而直接、间接地向环境释放,势必导致周围环境辐射水平的提高。

环境辐射监测是对辐射环境质量现状进行的监督性测量,目的是监测、评价各种环境物质和生物体内辐射水平及放射性核素浓度的变化。监测结果可为制定环境管理方案和措施提供依据,也可生态学及有关学科研究提供帮助。

流出物监测是工作场所监测中的终端测量,又是环境辐射监测中的源项监测。其目的是对核设施通过预定途径向环境释放的流出物中放射性核素总量和浓度进行监督测量,与规定的控制限值进行对比评价,以便及时发现和迅速控制异常排放或事故排放,并为辐射环境影响预评价提供源项参数。

3.1 环境辐射监测

3.1.1 环境辐射监测的目的与特点

3.1.1.1 监测目的

根据中华人民共和国国家标准 GB12379—90《环境核辐射监测规定》,环境辐射监测目的是:

- ① 评价核设施对放射性物质包容和流出物控制的有效性;
- ② 测定环境物质中放射性核素浓度或照射量率的变化;
- ③ 评价公众受到的实际照射及潜在照射剂量,或估计可能的剂量上限值;
- ④ 发现未知的照射途径和为确定放射性核素在环境中的运输模式提供依据;
- ⑤ 出现事故排放时,保持能快速估计环境污染状态的能力;
- ⑥ 鉴别由其它来源引起的放射性污染;
- ⑦ 对环境辐射本底水平实施调查;
- ⑧ 验证是否满足限制向环境排放放射性物质的规定和要求;
- ⑨ 改善核设施营运单位与公众的关系。

3.1.1.2 环境辐射监测的特点

环境辐射监测具有以下几个特点:

- ① 监测对象是无味、无形、无声的放射性,而且无所不在,无时不在;
- ② 辐射源(包括样品源)的放射性活度会随时间推移而衰减,因此,样品分析测试要及时;

③ 环境样品的辐射值或放射性核素含量水平很低,需用专门的低水平测量技术和高灵敏度仪器进行测量;

④ 样品成分复杂,外来干扰因素多,被污染的可能性大,故要求分析方法及仪器具有良好的选择性和分辨率;

⑤ 样品需用量大,方可满足测量方法的探测限和准确度要求;

⑥ 样品放射性活度具有低水平和涨落的特点,通常要求长时间测量,因此,测量仪器的稳定性要求高。

3.1.2 环境辐射监测方案的制定

3.1.2.1 制定监测方案应考虑的因素

制定一个全面、有效、合理的环境辐射监测方案,应考虑以下几项因素:

① 源项单位(从事伴有核辐射或放射性物质向环境释放,并且其辐射源活度或放射性物质的操作量大于国家规定的豁免限值的一切单位)流出物中放射性核素的含量,排放方式、途径和排放量,排放物质的相对毒性和潜在危险;在环境中的迁移规律、随季节的变化及受地质、水文、气象、植物影响的大小;

② 源项单位的性质和运行规模,可能发生事故的类型、概率及其环境后果;

③ 流出物监测现状,对实施环境辐射监测的要求迫切程度;

④ 受照公众人数及分布,生活及文化娱乐习惯;

⑤ 源项单位周围的土地利用和物产情况;

⑥ 监测代价和效果;

⑦ 实用监测仪器的可获得性;

⑧ 监测中可能出现的各种干扰因素,如影响放射性核素迁移的化学污染物等;

⑨ 对放射性污染物具有浓集作用的生物和其它指示体。

3.1.2.2 环境监测方案的设计

大型的核设施(包括铀矿开采、水冶、核燃料元件制造、核电生产、乏燃料后处理、放射性废物管理过程中必须考虑核安全和辐射安全的核工程设施和高能加速器)一般都要进行运行前本底调查、运行中常规监测和事故应急监测。

(1) 运行前本底调查 运行前本底调查目的是查清核设施向环境排放的关键核素、关键途径和关键人群组;确定环境辐射本底及其变化;对运行中常规监测准备采用的监测方法和程序进行检验和模拟训练。本底调查资料是评价解释常规监测结果的重要基准和制定常规监测计划的重要依据。

本底调查的基本内容包括:

① 环境物质(空气、土壤、地面水和地下水、植物和农牧产品)中放射性核素的种类、浓度、 γ 辐射水平及其随时间的变化,一般要取得运行前连续2a的资料,了解1a内本底变化和年度间的可能变化范围。调查范围视源项单位的规模和性质而定,对大型核设施(如核电站)一般为30~40km;

② 调查鉴别关键核素及关键途径,关键人群组的分布、习俗、饮食资料及有关“指示体”的资料,这些资料不仅可用于运行中监测和应急监测结果的解释评价,也有助于检验常规和应急监测的方法和步骤。

表 3.1 给出核电站运行前环境辐射本底监测项目及监测频度。

表 3.1 核电站环境辐射本底调查实例

电站名称	样品种类	分 析 项 目	分析频度
SALEM	水	总 α 、总 β 、 ^3H 、 ^{40}K 、 ^{90}Sr 、 γ 核素	每月 1 次
	空气微粒	总 β 、 ^{131}I 、 γ 核素	每周 1 次
	土 壤	^{90}Sr 、 γ 核素	每年 3 次
	水生生物	^3H 、 ^{90}Sr 、 γ 核素	每年 2~3 次
	牛 奶	^{131}I	每月 2 次
	饲 料	γ 核素	每年 2 次
	牛甲状腺	^{131}I	每年 1 次
	North Anna	空 气	γ 辐射
North Anna	土 壤	总 α 、总 β	2 周 1 次
	水	γ 核素	
	蔬菜、谷物、饲料	总 β 、 ^3H	每月 1 次
	沉降物	γ 核素	每年 1 次
	鱼	总放射性活度	每月 1 次
	底 质	总放射性活度、 γ 核素	
			总放射性活度、 γ 核素

本底调查监测持续时间主要取决于调查目的,在最优化原则的基础上,应考虑技术水平、财力、厂址条件和历史因素,一般为 2~3a。

(2) 核设施运行中的常规监测 在核设施正常运行期间,对其周围环境进行的定期例行监测称为常规监测。其目的是对正常排放的放射性物质所致周围环境的污染状况作出评价;检验废物管理系统的有效性;控制放射性物质排放量,评价营运单位执行环境标准、规程和运行控制限值的实施情况;估计核设施运行对环境的影响及其变化趋势;为应急监测提供预测情报;为研究核素迁移、环境地质和放射生态学提供资料。

任何源项单位都应在本底调查的基础上,制定切实可行的常规监测计划,内容包括排放核素种类、性质、排放量、排放方式及核素在环境中的迁移途径;采样对象及数量、点位;采样时间(周期)和方法;样品处理和测量方法;测量结果的评价。制订计划时,要注意采样点的点位分布、采样周期、数量、方法应尽量与非放射性污染物常规监测要求相一致,以便对环境作综合评价。也应注意与本底调查监测对象、测量方法、点位的一致,所确定的关键核素、关键途径、关键人群相应与本底调查衔接。

核电站环境监测对象应包括放射性物质与非放射性化学物质,重点是对放射性物质与辐射水平的监测。其常规监测分析项目、内容与本底调查相似,主要有总 α 及总 β 活度、 γ 能谱分析测定和单个核素的浓度。由于核电站常规运行时核素排放量较少,从一般环境样品中难于检出,因此,常采用某些具有浓集(或选择性吸收浓集)能力的生物体(如水藻、蛤蜊等)、生物组织(如牛、羊的甲状腺)或环境物质(如底泥等)作为环境“指示体”列入监测对象。

应合理确定采样点和监测点、监测范围、采样频度。采样点和监测点应设在可能出现最大污染的地方,如大气样品采样点应设在与常年主导风向相应的扇形区内最大浓度点处;地面水样采样点应设在废水排放口及其下游河段、灌溉渠入口处等位置上;地下水监测点应设

在地下径流下游泉水口和水井处。

采样点分布密度应按“近密远疏”的原则安排,为对照污染情况,应在不可能出现污染的地区布设必要的对照采样点和监测点。监测范围应依据核电站运行规模而定,我国一般取半径 30km 范围。

采样周期(或频度)的确定与多种因素有关。原则上,气溶胶、沉降物、环境 γ 辐射应采用较高的采样测量频度(周期为 1 周至 1 个月);水样采样周期控制在 1 个月至 1 个季度;土壤、沉积物、水生物、农作物为 1 个季度至 1 年。短寿命核素监测周期不超过半衰期的 2~3 倍,长寿命核素可按季或年监测。

监测周期与频度应随流出物排放率的变化及时同步调整,或采用连续采样、监测方法,以便及时、客观地反映环境污染状况的变化。

地面水应按丰水期和枯水期分别采样测量,谷类作物在收获季节采样,叶类作物在生长期间断取样若干次。

制定核设施常规环境监测计划应考虑当地的自然地理、周围环境、居民习俗与分布等条件。我国已建和在建的核电站地处海边,人口密度高,农村人口比例大,膳食以蔬菜、粮食为主,动物蛋白与奶制品食用量少,使用露天水源多,因此,对水的监测周期应适当缩短,对牛奶中¹³¹I 的监测则可适当放宽。表 3.2 列出对我国核电站常规环境监测的建议方案。

表 3.2 我国核电站常规环境监测建议方案

监测对象	取样点位置和数量	分析项目	频 度
空气	厂区外空气最大污染区 1 个取样点;8~30km 范围内主导下风向居民区 1~2 个取样点;主导上风向不受排放影响的区域 1 个取样点	总 β 、 γ 谱分析	连续或每天积累,每周累积小体积样品、偶尔抽取大体积样品
¹³¹ I	同上	¹³¹ I	同上
外照射	同上	积分照射量	每季 1 次
地表水	排放口下游 1~2 个点,上游 1 个点	总 β 、 γ 谱分析	每月 1 次
饮用水	下游第一个饮用水源	总 β 、 γ 谱分析	每 6 个月 1 次
地下水	下游 8km 范围内 1 个点	总 β 、 γ 谱分析	每 6 个月 1 次
牛奶或阔叶植物	主导下风向供奶区 1 个点	¹³¹ I,放射性铯	每季 1 次
谷物、蔬菜	受排放影响最大地区 1 个点	总 β 、 γ 谱分析	每年 1 次
水生生物(指示生物)	排放口下游 1 个点	特定核素分析	每年 1 次
土壤	受排放影响最大的地区 1 个点		

监测方案应依据实际情况的变化随时作相应的修改或补充,发现新的污染应及时追踪,出现异常情况时,应增加监测点,增大采样频度。

(3) 核事故应急监测 在核设施运行前的本底调查阶段,即应制定事故应急监测的初步方案,应急监测方案必须灵活,方法简单、快速,应保持常备不懈,随时应付事故的发生。

核事故应急监测的目的是迅速测定事故造成的环境辐射水平、污染范围和程度及对公众的危害程度;迅速摸清释放核素的种类、性质及其在环境中的迁移行为,测定食物与饮水的污染程度、范围;及时向决策机构和公众通报污染情况,以便采取必要的应急干预措施。

应急监测分为早期和中后期监测,早期监测应迅速测定放射性烟羽的走向、弥散范围和

特征,测定空气污染和剂量水平,同时尽快测量土壤和水的污染。大气污染监测重点是下风向近地空气中放射性气体和气溶胶浓度、地面辐射剂量和核素沉积量,监测范围为沿烟羽走向夹角 30°左右的扇形区内。对于水污染,主要监测排放地点下游水域中水和食用水生物,测量项目以总 α 、总 β 活度为主,辅以 1~2 种关键核素浓度测量。采样与测量顺序则由轻污染区到重污染区。

中后期监测主要测量水和食物的放射性污染,包括河流和水源的污染及其对鱼和其它水生物的影响;农作物和牧草污染及其对家畜、奶牛的影响。中后期监测的目的是重新评价早期监测数据的可靠性;评价早期应急措施的合理性,确定这些措施是否需要继续、扩展或收缩;估计公众受照剂量;追踪污染物在环境中的迁移趋向、途径及生物效应。

中后期监测持续时间长,范围广,方法要更精确灵敏,监测项目除总 α 、总 β 活度及 γ 辐射剂量外,还应进行一些重要核素的含量分析。表 3.3 为核事故应急环境监测内容实例。

表 3.3 核事故应急环境监测实例

反应堆堆名	事故性质	估计排放量(Bq)	监测内容
英国温茨凯尔 1 号堆	元件熔化石墨着火,事故发生于 1957 年 10 月 7 日	^{131}I : 7.4×10^{14}	(1)15 辆监测车在事故发生后立即测量环境 γ 辐射和空气中总 β (2) 测定牛奶中的 ^{89}Sr 、 ^{90}Sr 和 ^{131}I (3)分析蔬菜、鸡蛋、肉、饮水等食物中的 ^{89}Sr 和 ^{90}Sr
		^{132}Te : 4.4×10^{13}	
		^{137}Cs : 2.22×10^{13}	
		^{89}Sr : 2.96×10^{11}	
		^{90}Sr : 3.33×10^{11}	
美国三里岛核电站 II 号堆	燃料元件破损,回路冷却水泄漏,事故发生于 1979 年 3 月 28 日	惰性气体: 1×10^{17}	(1)直升飞机在事故发生后立即在 90~450m 高度跟踪放射性烟云,测量 γ 剂量率:每日 2~9 次 (2)监测车立即在地面监测 γ 剂量率,在 31 个监测点用热释光剂量仪测量 (3)3 月 29 日在半径 32km 范围内对牛、羊奶中的 ^{131}I ,对牧草、土壤、蔬菜以及食品中放射性核素的测定
		^{131}I : 5.55×10^{11}	
		^{137}Cs : 微量	

(4) 核设施退役的环境监测 核设施服役期满,或因计划改变、发生事故等原因而关闭后,应采取一些必要的措施,确保其安全、永久地退役。为此,需相应地制定退役后设施监管及环境辐射监测计划。监测内容包括流出物中放射性核素种类、浓度及其随时间的变化,环境 γ 辐射水平,各种环境物质中放射性核素的浓度,沉积物和气载放射性核素成分、浓度及其变化。

3.1.3 环境辐射监测仪器

根据不同的监测目的,常用的核辐射监测仪器有:个人剂量计、环境放射性气体监测仪和环境核辐射监测仪。各类仪器的结构和原理基本相似,都由核辐射探测器和测量装置两部分组成。

3.1.3.1 核辐射探测器

根据射线和探测介质间相互作用原理和效应的不同,核辐射探测器可分为气体探测器、

闪烁探测器、半导体探测器和固体探测器等几类。

(1) 气体探测器 气体探测器可分为电离室和计数管等两类。其中电离室是最早用于测量放射性物质的一种探测器,至今仍广泛用于强放射性测量,其主体由一对电极构成,两极之间的空间充以空气或其它气体,电极形状有平行板型、同轴圆柱筒型等。

带电粒子通过电离室极间空间时,可引起其中气体电离。 γ 射线和中子等中性辐射本身不能直接导致气体电离,系由其与室壁材料(石墨、聚乙烯、铜、钨、钢等)相互作用产生次级带电粒子而使气体电离。在两极间加上直流电压 V ,极间气体电离产生的正负离子在电场作用下分别向阴、阳两极移动,由此而产生电离电流 I 。由图 3.1 所示电离电流与极间电压的关系(电离电流曲线)可知,当电压小于 V_a 时,极间电场强度弱,离子迁移速度小,到达电极前会有部分复合,电极不能收集全部电离电荷。当电压增大到 $V_a \sim V_b$ 范围时,极间电场强度已足以使电极可收集到全部电离电荷,因此,电流计上显示的电离电流强度 I 与电压无关,而仅与射线辐射强度有关。这一饱和电流区($V_a \sim V_b$)即为电离室工作电压区。由于 α 粒子的电离能力比 β 粒子大,相同辐射强度产生的离子对数目多,复合现象也较明显,因此,电离室测量 α 辐射强度所需的饱和电压比 β 辐射强度测量时大。空气电离室稳定可靠,量程宽,能量响应好,常用于测量射气浓度。

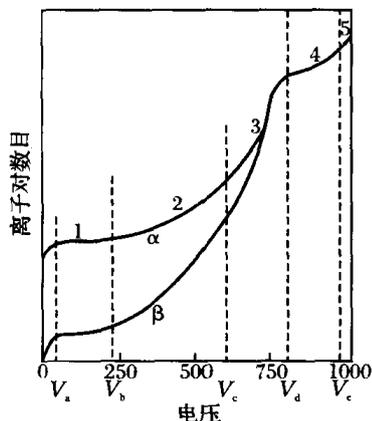


图 3.1 电离电流与极间电压的关系

1. ——饱和电流区, $V_a \sim V_b$
2. ——正比区, $V_b \sim V_c$;
3. ——准正比区, $V_c \sim V_d$;
4. ——盖革区, $V_d \sim V_e$;
5. ——连续放电区, $> V_e$;
0. ——复合区, $< V_a$.

在极电压为 $V_b \sim V_c$ 的正比电流区内,电离电流随电压增高而呈近似线性增大,这表明在一定的射线作用下,电极收集到的离子数或产生的电流脉冲幅度与电离室内最初产生离子对数目成正比,因此,在这一电压范围内工作的电离室可用于鉴别测量各种电离能力(能量)不同的射线。这类探测器(如正比计数管)同时具有放大作用,采用脉冲幅度甄别方法,可鉴别测量 α 、 β 射线,采用波型甄别方法,可鉴别测量中子和 γ 辐射。

在极电压为 $V_c \sim V_d$ 的准正比区内,大量的电离电荷已可抵消部分外电场(空间电荷效应),上述正比关系即被破坏。

在极电压为 $V_d \sim V_e$ 的盖革区内,电极收集到的离子数与电离室内最初产生的离子对数目无关。在一定的极电压条件下,各种性质、能量的射线都产生幅度基本相同的输出脉冲信号,而且脉冲幅度(信号强弱)仅与极电压成正比关系,因此,在这一电压范围内工作的 G-M 计数管(盖革计数管)常用于计数率测量。

当极电压大于 V_e 时,在很强的极间电场作用下出现连续放电现象,电离室已不能用于射线测量。

(2) 闪烁探测器 闪烁探测器由闪烁体(荧光体)和光电倍增管两部分组成,射线在闪烁体内产生闪光,因光电效应而在光电倍增管阴极上产生光电子,经多级倍增而输出电流脉冲信号。表 3.4 所示为常用的闪烁体材料。

ZnS(Ag)晶体光转换效率最高(对 α 粒子可达100%),厚度小于 $80\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ 时,对射线产生的闪光是透明的。由于其晶体颗粒小,难以制成大晶体,故不宜用于穿透能力较大的 β 、 γ 射线测量。

NaI(Tl)晶体比重大,平均原子序数高($\bar{Z}=32$),转换效率及分辨率高,透明度高,且能做成大晶体,用于 γ 射线测量效率可达百分之几十。NaI(Tl)晶体闪光强度与 γ 或 β 射线入射能量成正比,故常用于 β 、 γ 能谱测量。

${}^6_3\text{Li}$ 在中子轰击下发生中子核反应而产生氚核(${}^3_1\text{H}$)和 ${}^4_2\text{He}$ 粒子,都可使闪烁体发光,因此,LiI(Tl)晶体常用于测量慢中子。

表 3.4 常用闪烁体

闪烁体	类型	颜色	主要特点及用途	备注
碘化钠 NaI(Tl)	无机晶体	无	光输出很大,用于探测 γ 射线	易潮解
硫化锌 ZnS(Ag)	无机晶体	无	发光效率很高,多晶粉末,用于探测 α 等重粒子,转换效率可达100%	
碘化铯 CsI(Tl)	无机晶体	无	有效原子序数高于NaI(Tl),故转换效率高,用于探测 γ 、X射线	不易潮解
蒽 $\text{C}_{14}\text{H}_{10}$	有机闪烁体	无	用于探测 β 粒子及快中子	
三联苯 $\text{C}_{18}\text{H}_{14}$	有机闪烁体	无	常用液体和塑料闪烁体为溶质,用于探测 β 粒子	
锗酸铋 $\text{Bi}_4(\text{GeO}_4)_3$	无机晶体	无	灵敏度是NaI(Tl)的三倍,密度大对探测高能射线有利,组分辨率稍低	不易潮解

有机闪烁体发光时间短,分辨率高,易制成大而透明的晶体,因其中含有氢元素,故常用于快中子及 β 射线的测量,但不宜用于重粒子(如 α 粒子)的测量。

一定温度条件下,有机闪烁体与塑料聚合而制成塑料闪烁体,具有发光时间短、空气中不潮解、可用于测量中子等无机晶体的优点,又易于制成多种形状,转换效率稳定,可取代有机闪烁体用于中子、重粒子与部分 γ 射线的探测测量。

近年推出的锗酸铋晶体,具有比碘化钠晶体更高的分辨率和灵敏度。

液体闪烁计数法对于液态放射性样品测量具有灵敏度高、制样简单、测量快速等优点,不仅可用于测量 β 粒子,还可测量 α 粒子、X射线、低能 γ 射线和中子等。

将PPO、POPOP等闪烁剂粉末溶解于二氧杂环、乙烷和甲苯等有机溶剂中制成闪烁液,液体样品以一定的比例加入闪烁液中,混合均匀即可直接进行测量。为了降低探测限,应尽量增大水样的加入量,为此,可加入适量的三硝基甲苯100等乳化剂,使水样与闪烁液乳化为乳化液。

液体闪烁计数器样品的自吸收小,具有 4π 探测几何条件,是测量低能 β 射线最有效的方法之一,水中氡的监测基本上都采用这种方法。

(3) 半导体探测器 硅P-N结、CdS光敏电阻、硅锂Si(Li)、锗锂Ge(Li)等半导体探测器可用于 α 、 γ 和X射线的测量。当射线射入这类原本处于绝缘状态的晶体中时,其能量将被晶体吸收,晶体灵敏区内的原子即被电离而形成电子—空穴对。灵敏区内晶体原子被射线电离产生一对电子—空穴对所需能量 ω 与入射射线的类型和能量无关,仅只取决于晶

体材料本身的性质(对于硅晶体,电阻为 300kΩ 时, $\omega = 3.62\text{eV}$;电阻为 77kΩ 时, $\omega = 3.76\text{eV}$;对于锗晶体,电阻为 77kΩ 时, $\omega = 2.96\text{eV}$)。当灵敏区厚度大于射线在晶体中的射程时,射线能量 E 即全部被吸收,晶体中原子电离产生的总电量为:

$$Q = \frac{E \cdot e}{\omega} \quad (3 \cdot 1)$$

式中,

E/ω ——晶体中原子电离形成电子—空穴对的数目;

e ——电子的能量, eV。

加上反向偏压,即形成幅度与射线能量 E 成正比的电流脉冲。信号经放大后用多道分析器测量分析脉冲幅度分布,即可测定入射射线的能谱(图 3.2)。

半导体探测器种类很多,按结构类型可分为 PN 结型、面垒型、扩散型、离子注入型和锂漂移型等;按半导体晶体材料可分为锗、硅和某些化合物(如 GaAs、CdTe)晶体;按形状可分为平面型、同轴型和反“T”型等。

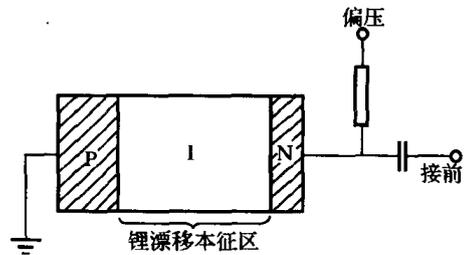


图 3.2 Ge(Li)探测器示意图

(4) 固体探测器 目前常用的固体探测器有固体核径迹探测器、热释光探测器、“活性炭”探测器、“α卡”、硅半导体探测器、照像胶片和荧光玻璃等。

1) 固体核径迹探测器 固体核径迹探测器常用于 α 射线和中子裂变碎片的测量,由探测材料和探测装置两部分组成。

常用的探测材料有聚碳酸酯、硝酸纤维素、烯丙基二甘醇碳酸酯等 15 种以上不同的型号类型(表 3.5)。其中,烯丙基二甘醇碳酸酯对 α 粒子的能量探测范围最宽(0.1~20MeV),为目前性能最为理想的探测材料。

固体核径迹探测器的优点是小型、廉价、操作简单、使用方便(不受空间与地点限制),对环境中存在的其它辐射(如 γ 、 β 辐射)和宇宙射线不灵敏,并可作长时间的积分测量。

重带电粒子(α 粒子)、中子裂变碎片射入固体核径迹探测材料中后,会沿其入射途径造成固体材料的电离损伤,使用化学或电化学法蚀刻成径迹,其产生的径迹密度将与粒子注量成正比。因此,利用径迹计数装置测得径迹密度,即可求得粒子注量及相应的辐射剂量。

表 3.5 三类固体核径迹探测材料对 α 粒子的能量响应范围

材料类型	分子式	能量下限(MeV)	能量上限(MeV)	备注
烯丙基二甘醇碳酸酯	$[\text{C}_{12}\text{H}_{18}\text{O}_9]_n$	0.1	20	CR-39
硝酸纤维素	$[\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_5\text{N}_2]_n$	0.1	4 或 6	CN
聚碳酸酯	$[\text{C}_6\text{H}_4\text{O}_3]_n$	0.2	3	PC

使用固体核径迹探测材料测氡的方法有裸片法、杯法和静电收集法等 3 种。所用装置有敞口测量杯、带滤膜测量杯、袖珍型测量杯、埋藏管、电镀铝聚酯膜测量杯等,这些装置可用于探测地下及各类环境空气中的氡浓度。表 3.6 所示为不同探测器及测量方法用于环境空气氡浓度测量的性能指标。

表 3.6 固体核径迹探测器测量环境氡的刻度因子与探测下限

方法名称	探测器	刻度因子 ($\times 10^{-3} \frac{\text{径迹数/cm}^2}{\text{Bq}/(\text{m}^3 \cdot \text{h})}$)	累积时间(月)	探测下限($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)
裸片法	CN	6.8		
	CR-39	10.0		
	CN	1.58	1	7.4
	CR-39	8.2		
	CN	2.1		
	CR-39	4.2		
杯法	CN	1.16		
	CR-39	3.4	1	12.3
	CR-39 ^①	2.5	1	29.6
	CR-39	4.2	1	14.8
	PC	0.68	3	3.7
	CN, CR-39	15.0	3	3.7
	CR-39	1.9~4.3		
	CR-39	4.0		
	CN	3.2		
	CR-39	7.0	3	2.6
	CN	3.1	2	4.9
	静电收集法	CR-39	2500	1d
CN		87	1	0.4
CN		52	2	0.7

① 覆盖纤维滤膜。

常用的径迹计数装置和方法有：

- ① 光学显微镜法,使用 400 倍左右的光学显微镜观测径迹图像和计数;
- ② 缩微胶片镜头,用于观测大面积微型胶片上的径迹并计数;
- ③ α 射线闪烁计数法,胶片上涂以 ZnS(Ag) 粉末, α 射线照射可使径迹蚀坑中的 ZnS(Ag) 发出荧光,可采用闪烁记录装置测量径迹密度并作自动记录;
- ④ 火花计数法,在 CN 胶片上覆盖一层喷铝聚酯薄膜,在外加高压时即产生火花,电火花数即为径迹数。

2) 热释光探测器 热释光材料中由于含有微量金属杂质等原因形成众多的“缺陷”,其在射线照射下产生的电子会被这些“缺陷”捕获而陷入陷阱。常温下这些电子陷在陷阱中,但加热到一定温度时,将从陷阱中逃逸出来,进入导带而处于激发态。当激发态电子再回复到基态时,便发出荧光,这种现象称为热释光。一定条件下,加热所释出的总光子数与热释光材料所受到的辐射剂量成正比,因此,可用荧光强度来度量剂量的大小。

热释光探测器所采用的热释光材料大致可分为两类,一类是 LiF、Li₂B₄O₇(Mn)、BeO 等原子序数较低的材料;一类是 CaF₂(Mn)、CaSO₄(Dy)等原子序数较高的材料。前者能量响应较好,后者则灵敏度较高。将用这类材料制成的热释光元件埋入地下或在环境中放置

一定时间后,即可用热释光仪测量释光强度,从而求得这一时段内的累积剂量。

3.1.3.2 测量装置

如上所述,除固体探测器外,其它探测器均可输出电离电流或电脉冲信号,但电流强度或脉冲幅度都很小,又不规则,而且信号输出频繁,必须借助一套电子学线路,对信号加以放大、甄别、整形而后记录,具有这一系列功能的电子学仪器即为测量装置。

如图 3.3 所示,粒子射入探测器的闪烁体内而产生闪光,光子在光电倍增管内转换成电子并得以倍增放大,其末端即输出一个电脉冲信号。该信号经前置放大后输入测量装置,该装置由主放大器、幅度甄别整形电路和记录电路三部分组成,幅度大于一定阈值的脉冲经整形后形状规则、大小一致,输入记录装置。

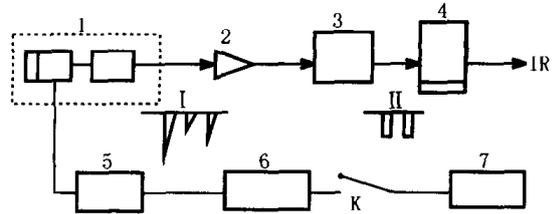


图 3.3 核辐射仪整机工作原理方框图

1. 探测器;2. 主放大器;3. 幅度甄别器;4. 计算机;
5. 电源变换器;6. 低压电源;7. 电源;
IR——通讯接口;K——开关

3.2 流出物监测

流出物监测是在废物管理系统或控制设施末端,即核设施排放口处对气载和液态放射性流出物进行的监测,是与环境监测和工作场所监测并行的一项监测工作。

3.2.1 流出物监测的目的

核设施流出物监测的目的在于:

- ① 检验核设施流出物排放是否符合管理标准和运行限值;
- ② 提供核设施、废物管理和控制系统运行是否正常的信息;
- ③ 及时发现和鉴别计划外排放的性质和规模,必要时能迅速触发应急报警系统;
- ④ 为环境评价提供源项资料 and 与放射性核素迁移行为有关的资料;
- ⑤ 提供必要的信息,使公众确信核设施放射性流出物排放确实受到严格控制;
- ⑥ 为核设施环境辐射监测计划和方案的制订提供依据。

流出物监测和环境辐射监测相结合,还可获得关于涉及环境中不同扇形区内流出物行为和放射性核素弥散迁移资料,质量控制及监测系统、方法和结果的对比资料,各种类型核设施所释放的放射性水平的对比评价资料。

3.2.2 流出物监测的设计

3.2.2.1 流出物监测的一般原则

按规定必须进行流出物监测的设施,都需按辐射防护最优化的原则制订流出物监测方案,监测方案的设计应满足如下基本原则的要求:

- ① 流出物监测必须独立于工艺监测,形成单独的监测系统,在放射性流出物最终排放口处进行专门的常规监测;
- ② 应根据核设施的性质、流出物中放射性核素成分及浓度的变化,确定相应的采样方

法、测量项目、测量范围和测量方法；

③ 应确保采样和监测的代表性。所采样品的物理、化学性质应与流出物一致,数量应正比于流出物中核素的含量,监测点应设在核设施、废物管理系统或控制装置的末端；

④ 根据流出物所含核素种类、排放率及其变化,确定合适的采样测量频度和监测项目,并应妥善考虑对计划外排放的监测；

⑤ 流出物中放射性核素种类、含量完全确定不变时,不必进行常规的流出物监测；核素排放量极少时,则难于进行核素成分与浓度的分析测量。这些情况下,可不进行流出物监测,但仍需对惰性气体、总 α 、总 β 及总 γ 活度进行监督性测量；

⑥ 对经烟囱排放的气载流出物和连续排放的液体流出物,可采用连续测量装置进行监测,以便于及时发现事故排放,迅速报警并采取措施。为此,应经常检查测量装置的有效性,定期进行放射性核素成分的全分析；

⑦ 应编制流出物监测系统流程图,标明采样点和监测点位置、作用,采样和测量方法。

3.2.2.2 气载流出物监测设计

设计气载流出物监测方案时,首先要分析通风、排气系统流程图,图中应标明流量、压差、温度、湿度、流速等系统参数,以便选择具有代表性的监测点,并应考虑采样方便。

应充分考虑气载流出物中所含放射性物质的特性及其随时间的变化,以确定最佳的采样测量方法和频度。

许多情况下,应同时连续或定期测量某些有关的物理、化学参数,如烟囱和取样管线中空气流量、温度和湿度,流出物中污染物的化学组成和粒度分布等。

当计划外释放的可能性较大时,应考虑安排对风速、风向和温度梯度等气象参数的测量。

气载流出物监测还应针对各类核设施的特点,采取相应的方案设计：

(1) 核电厂 核电厂气载流出物监测系统主要是对惰性气体的连续测量,以及对 ^{131}I 及放射性气溶胶的连续取样及实验室定期测量。一般情况下,只要测量流出物样品的总放射性活度及某些特殊的核素含量,并定期进行核素成分全分析。对 ^3H 和 ^{14}C 等特殊核素,可能需作附加的监测。

(2) 乏燃料后处理设施 除对惰性气体的连续监测之外,还应对碘同位素、 ^3H 和放射性气溶胶进行连续采样。正常情况下,乏燃料后处理设施只需连续测量烟囱中的 ^{85}Kr 和 ^{131}I ,对于连续取样获得的样品,还应在实验室中定期测量 ^3H 、 ^{14}C 、 ^{129}I 、 ^{131}I 、锕系元素和其它 $\beta-\gamma$ 放射性气溶胶。监测系统必须满足报警的要求。

(3) 铀、钚操作设施 着重对流出物中 α 放射性气溶胶的连续取样和监测,监测系统应能满足对正常工况及事故排放的监测要求。

(4) 研究性反应堆 对流出物监测系统的要求与动力堆基本相同,但研究堆事故释放的可能性变化较大,为了及时迅速把探测放射性核素的泄漏,对放射性气溶胶的测量可能需要特殊、灵敏和连续的测量装置和方法。

(5) 放射化学实验室 流出物监测计划和方案应根据实验室操作的特定放射性核素而定。对操作辐射后燃料元件的大热室应监测流出物中的惰性气体。对某些产生 ^{14}C 或氡化水蒸气的实验室,应设置连续取样装置,有的实验室则要求对气载流出物的连续测量。

(6) 加速器 可能产生放射性气溶胶的加速器,应对气溶胶进行连续取样和测量。使

用氚靶时应对氚进行取样和测量。

3.2.2.3 液体流出物监测设计

设计液体流出物监测方案时,首先要分析液体流出物的流程图。图中应标明废水池、罐的容量,各种流出物的物理、化学性质,流出物产生量和排放率等系统参数,在废水罐池及排放管网中确定相应的监测点。

核设施产生的液体流出物,必须遵循“槽式排放”的原则要求,按其所含放射性核素的化学特性和浓度分别收集于不同的池、罐中,根据情况进行必要的处理,经监测合格后排入环境,排放方式一般是间歇式的。因此,每一罐(池)废水排放前均应采取代表性的样品并进行测量。为防止严重的误排放,可能要对排放率进行连续测量,并设置能自动终止排放的控制设施。

液体流出物排放控制限值一般是按流出物中所含核素种类设定的,监测中应针对其中主要的核素成分进行测量。若流出物中核素种类和组成固定不变或核素浓度极低时,亦可预先确定总放射性活度控制限值,对流出物只测量总活度。某些情况下,由于技术原因不能及时进行核素分析时,每一罐(池)废水排放前至少应作总活度测量,同时应留取样品,以便随后进行核素分析。

混合液体流出物的化学性质可能发生变化,流出物中悬浮物可能引起浓缩和沉积效应,因此,采样时必须确保样品的均匀性和代表性。

当大量的液体流出物连续排入受纳水体时,应在每一排放管线上设置取样监测点,并在总排放口处设置最终监测点。在各监测点按流量正比原则连续或定期采集一定体积的样品,定期进行核素分析。

连续测量主要目的在于及时发现计划外事故排放,以便迅速报警和及时采取应急措施。因此,连续监测装置应有较高的可靠性,测量结果的不确定度要求可适当放宽。连续测量装置一般不能准确分析测量流出物中核素的含量,因此,核素的排放率仍应通过连续取样和实验室分析测量确定。

总放射性活度(总 α 、总 β 或总 γ 活度)测量主要用于筛选和控制(如用作连续测量、报警装置的控制),不能直接作用液体流出物排放的控制和评价,必须定期进行样品的核素分析。

3.2.3 流出物采样和测量技术

3.2.3.1 采样方式

流出物中放射性核素浓度或排放率变化很大,计划外排放的可能性较大,且可能造成较严重的环境影响和社会危害时,应采取连续和比例采样。

流出物中放射性核素浓度相对恒定,计划外排放可能性不大时,可采取定期采样。

一旦出现流出物中核素浓度异常,或发生计划外排放时,应及时安排专门采样。

3.2.3.2 采样技术

流出物采样技术应满足采样及时性和代表性的要求,即必须能在要求的时刻或时间间隔内取得足量的样品,样品中应含有流出物中全部的放射性核素。除根据测量技术要求进行必要的浓集或稀释外,样品采集及保存过程不可产生附加的浓集或稀释效应。

流出物采样应尽可能采用标准技术,采用非标准技术应事先报主管部门及辐射环境管理审管机构批准或认可。

间歇式排放的废水,应在贮罐中的废水得以充分搅拌后采样。

流出物常规监测中,可将单个代表性样品的部分或全部混合制成混合样品进行测量,以减少测量工作量。

选择设置采样点应确保采样的代表性,还应考虑操作的可行性和人员的可接近性。

3.2.3.3 测量方式和技术

流出物监测应根据对测量数据的准确度要求或测量技术的发展水平,采用直接测量和采样后就地或实验室测量两种方式,必要时两种方式可同时采用,以便相互验证和补充。

应尽可能采用标准的测量技术,特殊情况下需采用非标准技术,也应事先申报认可,并应满足流出物排放管理限值或运行限值的要求。

连续测量装置的最低可探测限应达到或小于运行限值的百分之一,量程范围应能满足对计划外排放的测量要求。必要时应安装具有几个触发阈值的连锁报警装置。

关键的排放点应设置分别用于常规监测与事故监测的两套独立的监测装置。事故监测装置应有较宽的测量范围,并附有报警装置。

实验室测量应采用可对流出物中所含放射性核素进行全分析的可靠的分析测量方法,应尽可能消除或减小干扰因素,制备浓缩的适于测量的样品,具有比直接测量和就地测量更高的灵敏度。

流出物监测结果应如实记录,及时报告和存档。

3.3 环境辐射就地监测技术

环境辐射监测可采取就地监测和实验室分析两种方式进行。就地监测是在欲测对象所在地进行的监测,一般不需采集样品,因而不会改变欲测对象在环境中的分布状态。就地监测目的在于快速测定环境辐射场的特征和分布,鉴别环境中某些放射性核素的种类、浓度和分布。实验室分析则要从环境中采集欲测环境物质样品,使用室内物理仪器或化学方法分析测量样品中所含核素的种类和浓度,进而分析评价环境质量状况。一般地说,实验室分析结果更为精确,但不如就地监测代表性强而快捷,许多情况下,这两种方式常结合使用。

按所测环境辐射类型,就地监测可分为 γ 、 β 、 α 和中子剂量监测。其中以 γ 监测最为常见, γ 监测又可分为照射量率(或剂量率)监测和放射性核素监测(就地 γ 能谱测量)。

3.3.1 就地监测前的准备

就地监测前的准备应考虑的因素有:

- ① 欲测核素的种类,其在环境物质中的浓度或活度水平及范围,核素的理化性质;
- ② 监测地点的地形、气象、水文等自然地理环境及其对监测工作可能产生的影响;
- ③ 仪器的选择,其量程、能量响应、最小可探测限应满足监测要求;
- ④ 人员的培训,应熟悉仪器性能,具备排除简单故障及判断测量结果可靠性的能力;
- ⑤ 资金保证和组织落实;

⑥ 仪器准备,仪器、设备、用具齐全,仪器工作状态正常,应急监测仪器更应随时保持正常工作状态。

3.3.2 监测网点的布设

监测网点应根据污染源的性质、规模、公众照射途径、人群分布、人群活动情况合理布设。全国或一定区域范围内的环境 γ 辐射本底调查,一般按适当大小的网络均匀布点;对核电站等大型核设施的环境辐射监测,通常以反应堆所在处为中心,按风向方位划分若干个扇形区,每一区内由距反应堆最近的厂区边界或盛行风向上的厂区边界开始,按不同的距离(近密远疏)布点,同时应注意在关键人群组所在地、人群经常停留处以及地表平均 γ 剂量率最高的地点布点。此外,还应在不易受核设施污染影响的公园、城市草坪或人迹罕至的岛屿、山脉、森林地区适当布设监测点,以便对比评价核设施对环境造成的影响及环境辐射水平的变化。

环境地表 γ 辐射剂量测量分为源相关及个人相关两种测量方式。其中源相关测量是针对单个源(如核电站)进行的,一般按上述布点原则在固定点处进行连续、按季度或即时测量,以确定特定源或实践对环境辐射剂量可能的贡献,测量方式按源的性质而异。个人相关测量则要对多个源,或广泛散布的源对公众产生的累积影响进行测量和评价。

根据不同的监测目的、要求和当地的条件,就地监测可采用步行监测、汽车监测和航空 γ 测量等方式。在发生重大核事故和交通不便的地方,航空 γ 测量更为方便有效。

3.3.3 地表 γ 辐射剂量的测量

地表 γ 辐射剂量监测是在田野、道路、森林、草地、广场和建筑物内等环境中,在距地表上方一定高度(通常为1m)处,用 γ 剂量率仪测量周围环境中天然和人工放射性核素所产生的 γ 辐射所致空气吸收剂量。其目的是测量和评价核设施或其它人类活动所产生的环境照射。

一般情况下,核设施造成的环境 γ 辐射剂量远比天然 γ 辐射为低,因此,测量的关键在于对这两种来源的辐射加以区分,为此,辐射剂量仪应具备如下几项性能:

- ① 有足够的灵敏度和相当宽的量程,一般低量程为 $1 \times 10^{-8} \sim 1 \times 10^{-3} \text{Gy} \cdot \text{h}^{-1}$,高量程为 $1 \times 10^{-5} \sim 1 \times 10^{-2} \text{Gy} \cdot \text{h}^{-1}$;
- ② 必要的精确度和长期稳定性,与此相应的相对误差小于 $\pm 15\%$;
- ③ 同类型仪器之间一致性好,各台仪器测量值的相对误差不大于 $\pm 15\%$;
- ④ 仪器本底低;
- ⑤ 能量响应好,对 ^{137}Cs 源和其它能量为 $50\text{keV} \sim 3.0\text{MeV}$ 的 γ 源,能量响应相对误差小于 $\pm 30\%$;
- ⑥ 能耗低,体积小,重量轻,携带方便;
- ⑦ 角响应好,对 ^{137}Cs 源, $0^\circ \sim 180^\circ$ 范围内角响应平均值 \bar{R} 不小于刻度方向上响应值 R 的 80% ;
- ⑧ 能在恶劣的温湿度条件下正常使用。

3.3.3.1 辐射剂量仪的刻度

环境 γ 辐射剂量测量采用的剂量仪或剂量率仪有高压电离室、计数管、闪烁体、半导体和热释光等多种类型,正式使用之前必须用国家统一的刻度标准源和方法进行刻度。刻度标准一般分为国家基准、次级标准、三级标准(实验室标准)和工作标准等四级。

X 和 γ 剂量率仪的刻度方法有标准仪器法和标准源法两种,用于测量 X 和低能 γ 射线的仪器常用 X 射线源(有效能量低于 300keV)和标准仪器法刻度;其它仪器则宜采用¹³⁷Cs、⁶⁰Co、²²⁶Ra 等标准 γ 源刻度,必要时,可同时采用这两种方法进行刻度。

标准源刻度法采用经国家检定的 γ 次级标准源,先按源强计算出离源一定距离 R 处的 γ 照射量率 X_R ,然后将待刻度的仪器置于 R 处进行测量,求得仪表读数与照射量率 X_R 的比值即为仪器的刻度系数。

3.3.3.2 辐射剂量仪自然底数的测定

自然环境中测量地表 γ 辐射剂量时,会受到宇宙射线和仪器自身的本底辐射(仪器本底)的干扰,同一地区内海拔高度相差不大时,宇宙射线的照射率基本不变,而仪器本底则各不相同。为此,可采用水面法或铅屏法测量仪器的自然底数(宇宙射线与仪器本底的贡献之和)。

一般情况下,天然地表水中放射性物质含量很低,因此仪器在宽度 100m 以上、深度 2m 以上水体表面测得的照射量即为宇宙射线与仪器本底所构成的仪器自然底数,应从测量值中予以扣除。

3.3.3.3 地表 γ 辐射剂量的步行测量

对有限区域内环境辐射状况进行初步巡测时,可采用轻便型可携式闪烁辐射仪,先在一定比例尺的地图上预先确定测量路线,然后按此路线步行测量地面上方 10cm 处的 γ 照射量率,一旦发现仪器读数异常,则应加大测点分布密度(每隔 10m 取一测点),以查明污染范围、强度及分布特征,并在其中心点处分别测量地面上方 10cm 处的 γ 照射量率及 1m 高处的空气吸收剂量率,在污染严重的情况下,应采用大量程仪器进行测量。采用这一方法,可初步查清核设施周围环境中地表 γ 辐射水平的分布状况,也可寻找失落的 γ 辐射源。

一般情况下, γ 照射量率测量只能用于环境污染的快速、初步调查,环境 γ 辐射剂量评价调查应采用 X- γ 剂量率仪测量空气吸收剂量,并可按下式估算公众成员受照剂量:

$$\dot{E}_\gamma = \dot{D}_{\gamma,a} \times K \quad (3 \cdot 2)$$

式中,

\dot{E}_γ ——环境 γ 辐射所致公众成员的有效剂量率, $\text{Sv} \cdot \text{h}^{-1}$;

$\dot{D}_{\gamma,a}$ ——空气 γ 吸收剂量率, $\text{Gy} \cdot \text{h}^{-1}$;

K ——空气吸收剂量与有效剂量换算比, $K = 0.7 \text{ Sv} \cdot \text{Gy}^{-1}$ 。

测得空气照射量率时,则可按下式初步估计空气吸收剂量:

$$\dot{D}_{\gamma,a} = f \dot{X} \quad (3 \cdot 3)$$

式中,

\dot{X} ——空气的 γ 照射量率, $\text{R} \cdot \text{h}^{-1}$;

f ——空气照射量与 γ 吸收剂量换算比, $f = 8.69 \times 10^{-3} \text{ Gy} \cdot \text{R}^{-1}$ 。

3.3.4 就地 γ 能谱测量

使用 γ 能谱仪就地测量地面上 γ 辐射的能谱,可以确定土壤或岩石中所含 γ 放射性核素的成分及相对浓度分布。

3.3.4.1 基本原理和方法

每种 γ 放射性核素都能释放出一种或几种具有特定能量的 γ 射线,因此,只要测得某种能量的特征 γ 谱线,即可确定相应核素的存在。例如,土壤中天然铀衰变系中核素 ^{214}Bi 释出能量为1.12、1.378、1.403和1.764MeV的四种 γ 射线,钍系中核素 ^{208}Tl 释出 γ 射线的能量为2.62MeV, ^{40}K 为1.46MeV, ^{137}Cs 为0.661MeV。根据这些核素释出的 γ 射线能量之间的显著差异, γ 能谱仪相应地设置了不同的能谱“窗口”测量道,测得各测量道中的计数率后,根据这几种能量的 γ 射线在相应道中的刻度系数,即可求得土壤中相应核素的浓度。

3.3.4.2 γ 能谱的航空测量

核设施发生严重事故而导致大范围的严重环境污染时,航空 γ 能谱测量可快速有效地查明污染区域范围、污染程度及其分布特征;航空测量也可用于全国或大区域范围内环境辐射水平的普查。

一般情况下,飞机飞行高度控制为50~100m,飞行速度不得超过 $140\text{km}\cdot\text{h}^{-1}$;航测范围应包括预计污染范围周边以外3~5km的相邻地区,应特别注意对居民点及其它建筑物密集地区的监测;飞行路线应垂直于可能的烟羽输运方向,并与输电线路方向平行。一旦发现异常污染,应确定其范围,尽早进行地表 γ 辐射剂量测量加以检验。

3.3.4.3 γ 能谱的汽车测量

在交通条件许可的情况下,汽车 γ 能谱测定能快速有效地测量土壤中铀、钍、钾的浓度, γ 辐射剂量和铯、钴等人工放射性核素所造成的地面污染情况,确定环境核辐射污染的范围和水平,寻找失落的 γ 辐射源。

测量时汽车沿道路两侧行进,巡视路线根据道路、街道、住宅通道分布布设,车速不大于 $20\text{km}\cdot\text{h}^{-1}$ 。每天测量开始前,应沿1.5~2.0km长的校定线进行试测,以检查仪器工作性能,正常区域内测量结果绝对误差不应大于 $2\mu\text{R}\cdot\text{h}^{-1}$,相对误差不大于15%。

3.3.4.4 γ 能谱的步行测量

使用便携式 γ 能谱仪,在测区内定点定时(1min)测量地表各测量道的计数率,测量路线布设和方法与步行 γ 剂量率测量相似。一般情况下,测量仪器可直接显示土壤中有关核素的浓度值。

采用合适的 γ 能谱仪和测量方法,还可就地测量环境中的中子辐射剂量、钚和超钚元素的污染、空气和水的放射性污染。

3.3.5 氡及其子体与析出率的测量

在正常本底辐射水平地区,吸入氡及其短寿命子体所致内照射剂量占成年公众年有效剂量的一半以上,在高本底地区,其剂量贡献份额更大,因此,环境辐射监测(特别是环境辐射本底水平调查)中,必须进行对氡及其子体的测量。

3.3.5.1 环境空气中氡浓度的测量

室内外空气中氡浓度测量目的在于估计公众因吸入氡及其子体而受到的个人剂量和集体剂量,提供有关天然辐射源所致当地公众受照剂量的基础资料,作为核设施辐射环境影响评价的对照依据。此外,在发现空气中氡浓度异常时,可进一步查明来源,为是否需要采取干预措施提供决策的依据。

环境空气中氡浓度测量的标准方法有径迹蚀刻法、活性炭盒法、双滤膜法和气球法等。

(1) 径迹蚀刻法 该方法采用被动式采样方法,可测量采样期间空气中氡的累积浓度。

采用聚碳酸酯或 CR-39 薄片作为探测器,置于一定形状的采样盒内,组成采样器(图 3.4)。探测器在空气中暴露 20d,其探测下限可达 $2.1 \times 10^3 \text{ Bq} \cdot \text{h} \cdot \text{m}^{-3}$ 。

氡及其子体发射的 α 粒子轰击探测器,使其产生亚微观型损伤径迹后,将其在一定条件下进行化学或电化学蚀刻,扩大损伤径迹,即可用显微镜或自动计数装置进行计数。单位面积上的径迹数与氡浓度和暴露时间的乘积成正比,故可用刻度系数将径迹密度换算成氡浓度:

$$\chi_{a,Rn} = \frac{n_R}{T \cdot F_R} \quad (3.4)$$

式中,

$\chi_{a,Rn}$ ——空气中²²⁰Rn 的浓度, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;

n_R ——净径迹密度, cm^{-2} ;

T ——暴露采样时间, h;

F_R ——刻度系数, $\text{cm}^{-2}/(\text{Bq} \cdot \text{h} \cdot \text{m}^{-3})$ 。

(2) 活性炭盒法 该方法亦采用被动采样方法,能测量采样期间空气中氡的平均浓度。采样盒以塑料或金属制成,直径 6~10cm,高 3~5cm,内装 25~100g 活性炭。盒的敞开口用滤膜封住,固定活性炭且允许氡进入采样器(图 3.5)。采样器在空气中暴露 3d,探测下限可达 $6 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ 。

氡随空气扩散到活性炭床内,即被活性炭吸附,其衰变而新产生的子体亦沉积在活性炭床内。采样停止后 3h,盒内氡与其子体达到放射性暂时平衡,即用 γ 谱仪测量活性炭盒内氡子体特征 γ 射线峰(或峰群)面积,据此可求得空气中氡的平均浓度:

$$\chi_{a,Rn} = \frac{a n_r}{t_1^b \cdot e^{-\lambda_{Rn} t_2}} \quad (3.5)$$

式中,

$\chi_{a,Rn}$ ——空气中²²²Rn 的浓度, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;

a ——采样 1h 的响应系数, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}$;

n_r ——特征峰(峰群)对应的净计数率, s^{-1} ;

t_1 ——采样时间, h;

b ——累积指数,为 0.49;

λ_{Rn} ——²²²Rn 的衰变常数, $7.55 \times 10^{-3} \text{ h}^{-1}$;

t_2 ——采样时间中点时刻至测量开始时刻之间的时间间隔, h。

(3) 双滤膜法 该方法采用主动采样方法,能测量采样瞬间空气中氡的浓度。采样装置如图 3.6 所示,抽气泵开动后,含氡空气经入口滤膜进入衰变筒,被滤去了子体后的纯氡

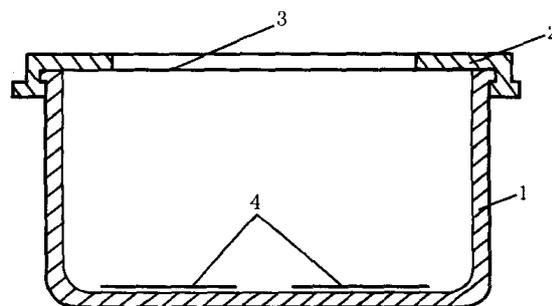


图 3.4 径迹刻蚀法采样器结构图

1. 采样盒; 2. 压盖; 3. 滤膜; 4. 探测器

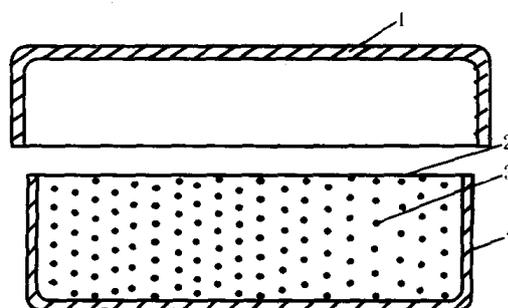


图 3.5 活性炭盒结构

1. 密封盖; 2. 滤膜; 3. 活性炭; 4. 装炭盒

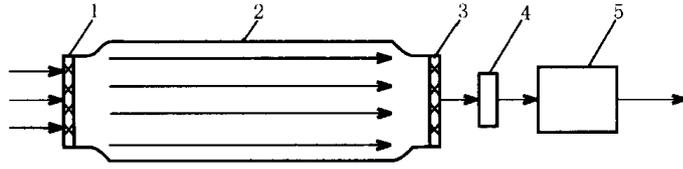


图 3.6 双滤膜法采样系统示意图

1. 入口滤膜; 2. 衰变筒; 3. 出口滤膜; 4. 流量计; 5. 抽气泵

在流过衰变筒的过程中又产生新的子体, 其中一定份额的新生子体被出口滤膜截留, 在采样结束后 $T_1 \sim T_2$ 时段内测量出口滤膜上氡子体的 α 计数, 即可换算求得空气中氡的浓度, 其探测下限为 $3.3\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$:

$$\chi_{a,Rn} = K_t \cdot N_a = \frac{16.65}{VE\eta\beta ZF_f} N_a \quad (3 \cdot 6)$$

式中,

$\chi_{a,Rn}$ ——空气中 ^{222}Rn 的浓度, $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;

K_t ——总刻度系数, $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}/\text{计数}$;

N_a —— $T_1 \sim T_2$ 时段内的净 α 计数;

V ——衰变筒容积, L;

E ——计数效率, %;

η ——滤膜过滤效率, %;

β ——滤膜对氡子体 α 粒子的自吸收因子, %;

Z ——与采样持续时间 t , $T_1 \sim T_2$ 有关的常数;

F_f ——新产生子体到达出口滤膜的份额, %。

(4) 气球法 该方法亦采用主动采样方法, 其工作原理与双滤膜法相同, 只是用气球取代了衰变筒。将气球法与马尔柯夫法结合使用, 可在 26min 内同时测得空气中氡及其子体的浓度。该方法对氡的探测下限为 $2.2\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, 对氡子体探测下限为 $5.7 \times 10^{-7}\text{J}\cdot\text{m}^{-3}$ 。

气球法采样系统如图 3.7 所示, 装好出、入口滤膜, 将系统设备连接起来; 在 0~5min 内以 $40\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$ 流速向气球充气; 取下入口滤膜, 置入计数装置内; 在 10~14min 内以流速 $50\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$ 抽出气球内空气; 在 12~15min 内对入口滤膜作 α 计数测量; 16~26min 内对出口滤膜作 α 计数测量; 按入口滤膜总 α 计数求空气中氡子体 α 潜能浓度:

$$\chi_{a,p} = K_m(N_E - 3R) \quad (3 \cdot 7)$$

式中,

$\chi_{a,p}$ ——空气中 ^{222}Rn 子体的 α 潜能浓度, $\text{J}\cdot\text{m}^{-3}$;

K_m ——马尔柯夫法总系数, $\text{J}\cdot\text{m}^{-3}/\text{计数}$;

N_E ——入口滤膜测得的 α 总计数;

R ——本底计数率, min^{-1} 。

按出口滤膜总 α 计数求空气中氡的浓度:

$$\chi_{a,Rn} = K_b(N_R - 10R) \quad (3 \cdot 8)$$

式中,

$\chi_{a,Rn}$ ——空气中 ^{222}Rn 的浓度, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;

K_b ——气球刻度常数, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}/\text{计数}$;

N_R ——出口滤膜测得的 α 总计数。

3.3.5.2 环境空气中氡子体 α 潜能浓度的测量和估计

氡子体所致吸入内照射剂量远比 ^{222}Rn 的剂量贡献为大,因此,对空气中氡子体 α 潜能浓度的测量和估计具有更为重要的意义。

空气中氡子体 α 潜能浓度可采用上述的气球法或三次计数法测量。许多情况下,也可按空气中氡的实测浓度估计相应的氡子体 α 潜能浓度:

$$\chi_{a,p} = 5.6 \times 10^{-9} \chi_{a,Rn} F_{Rn} \quad (3.9)$$

式中,

$\chi_{a,p}$ ——空气中氡子体 α 潜能浓度, $\text{J} \cdot \text{m}^{-3}$;

$\chi_{a,Rn}$ ——空气中 ^{222}Rn 的实测浓度, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;

F_{Rn} ——空气中 ^{222}Rn 及其子体的平衡因子值,对室外取0.8,室内取0.4;

5.6×10^{-9} ——与1Bq的 ^{222}Rn 处于放射性平衡时氡子体的总 α 潜能, $\text{J} \cdot \text{Bq}^{-1}$ 。

式3.9中的 $\chi_{a,Rn} \times F_{Rn}$ 即为空气中氡子体的平衡当量氡浓度,乘以相应的剂量转换因子,即可求得吸入氡子体所致的内照射(待积)剂量率。

3.3.5.3 氡析出率的测量

岩石、土壤、建筑材料、铀矿石及水冶厂尾矿中都含有氡,其向空气中散发(析出)速率的大小与这些含氡物质本身的性质(铀、镭含量,射气系数,孔隙度,结构特征、含水率)及气象条件(温度、湿度、气压)等多种因素有关,对环境空气中氡及其子体的浓度有直接的影响。因此,发现空气中氡及其子体浓度异常时,应通过含氡物质表面氡析出率的测量寻找其来源。

氡析出率测量方法有静态法和动态法两种,静态法是在含氡物质表面设置一个封闭的积累空间,在没有通风的条件下,测量其中氡浓度随时间的积累增长,以计算其析出率。这种方法灵敏度高,适用范围广,但代表性较差。

将以不透气材料制成的一个无盖箱子反扣在被测物质表面上,周边用不透气材料密封,构成一个氡积累空间(图3.8)。设积累箱容积为 $V(\text{m}^3)$,其包围的射气面积为 $S(\text{m}^2)$,则箱内氡浓度随时间的积累增长规律为:

$$C(t) = \frac{\delta_e S}{\lambda_e V} [1 - e^{-\lambda_e t}] + C(0)e^{-\lambda_e t} \quad (3.10)$$

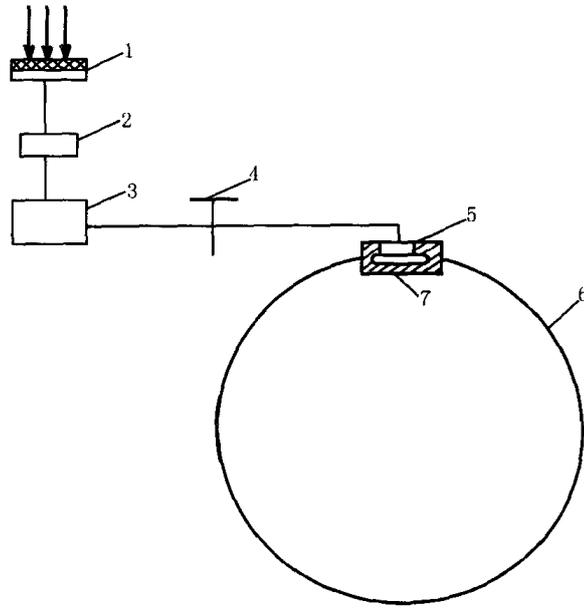


图 3.7 气球法采样系统示意图

1. 入口滤膜; 2. 流量计; 3. 抽气泵;
4. 调节阀; 5. 套环; 6. 气球; 7. 出口滤膜

式中,

$C(0)$ ——积累箱内 ^{222}Rn 的初始浓度, $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;

$C(t)$ ——积累箱密封后 t 时刻箱内 ^{222}Rn 的浓度, $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;

δ_e ——含氡物质表面的氡析出率, $\text{Bq}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$;

S ——积累箱所包围的含氡物质表面积, m^2 ;

V ——积累箱容积, m^3 ;

λ_e ——箱内 ^{222}Rn 的有效衰减常数, 与含氡物质表面性质, 积累箱尺寸等因素有关, s^{-1} 。

一般情况下, $C(0)$ 比含氡物质孔隙中氡的浓度低得多, 可认为 $C(0)=0$, 则有:

$$C(t) = \frac{\delta_e S}{\lambda_e V} [1 - e^{-\lambda_e t}] \quad (3 \cdot 11)$$

当封闭积累时间相当长时, 箱内 ^{222}Rn 浓度渐趋平衡

$$C_{\max} = \frac{\delta_e S}{\lambda_e V} \quad (3 \cdot 12)$$

积累箱封闭后以相等的时间间隔 T , 抽取一定量的箱内空气, 测量其中 ^{222}Rn 的浓度, 则相邻两次测得氡浓度之间的关系为

$$C_n = \frac{\delta_e S}{\lambda_e V} [1 - e^{-\lambda_e T}] + C_{n-1} e^{-\lambda_e T} \quad (3 \cdot 13)$$

式中,

C_n ——第 n 次测得的氡浓度, $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;

C_{n-1} ——前一次 ($n-1$) 测得的氡浓度, $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;

T ——两次测量间的时间间隔, s 。

对同一装置及同一测点, δ_e 、 S 、 λ_e 、 V 、 T 均为常数, 式(3·13)可改写为

$$C_n = a + b C_{n-1} \quad (3 \cdot 14)$$

根据多次测量结果, 按一元线性回归方法可求得 a 、 b 两系数值, 且

$$\begin{cases} a = \frac{\delta_e S}{\lambda_e V} [1 - e^{-\lambda_e T}] \\ b = e^{-\lambda_e T} \end{cases} \quad (3 \cdot 15)$$

则

$$\lambda_e = \frac{-\ln b}{T} \quad (3 \cdot 16)$$

$$\delta_e = \frac{a \lambda_e V}{S(1 - b)} \quad (3 \cdot 17)$$

氡析出率测量中, 应注意以下几个问题:

① 积累箱应有足够的高度(5~25cm), 务必使箱内 ^{222}Rn 浓度均匀, 必要时, 箱内可装设小型风扇;

② 被测物质表面必须平整, 箱体四壁应嵌入 2~5cm 深的凹槽内, 并用粘土等材料密

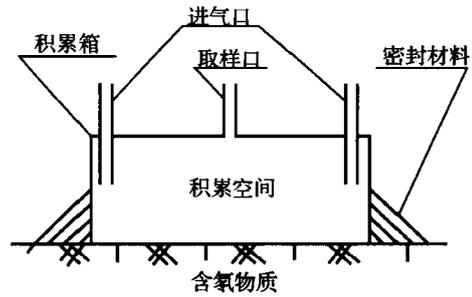


图 3.8 测量氡析出率的积累箱示意图

封;

- ③ 取样次数不可太多,空气取样总量不可超过积累箱体积的 1/4;
- ④ 真空取样时,气流速度不宜过快。

3·4 环境样品的采集和前处理

3·4·1 环境样品的采集

许多情况下,环境监测是通过对环境样品的分析、测试而实现的,通常是采集一定数量的单样构成样本,通过对样本中所有单样监测值进行统计处理,推断其所代表的环境物质的总体,据此对环境物质的污染状况作出解释、分析和评价。因此,环境样品的采集、保存和处理是环境监测工作的重要环节,是保证样品中待测污染物具有可靠的代表性的首要条件。

要获得可靠的监测结果,不仅要使用灵敏、稳定、准确的测量仪器,采用标准的分析测试方法,实行严格的质量管理,样品的采集也必须遵循相应的准则,确保样品采集的代表性、样本的随机性和适时性。样品的代表性应体现在时间、空间及理化特性上。为体现样品的时间代表性,应合理选定采样时间和频度;为体现样品的空间代表性,应合理布设采样点。此外,样品的记录应准确无误,样品的保存、运输应防止其成分发生变化及沾污。

3·4·1·1 采样方案的制定

(1) 样本的容量 随机采样是应用统计学方法确定样本容量的前提,在随机采样中,样本容量是指样本所包含的实测个体或单元的数目,而由样本所代表的待测对象的全体则称为总体。

通常依据置信区间确定样本容量,当监测项目的测量值遵从正态分布规律时,如要求由样本均数 \bar{X} 推断总体的均数 μ 的置信区间不超过 $2L$ (L 为置信区间的 $1/2$),则有

$$L = t_{\alpha/2} \frac{S}{\sqrt{n}} \quad (3 \cdot 18)$$

式中,

S ——样本监测结果的标准差;

n ——所需样本容量;

$t_{\alpha/2}$ ——Student 因子。

故所需样本容量为

$$n = (t_{\alpha/2} S/L)^2 \quad (3 \cdot 19)$$

当监测项目测量值的离散程度是以变异系数 $CV = \frac{S}{\bar{X}} \times 100(\%)$ 表示时,置信区间则以 $L/\bar{X} \times 100(\%)$ 表示:

$$L/\bar{X} \times 100(\%) = t_{\alpha/2} \frac{CV(\%)}{\sqrt{n}} \quad (3 \cdot 20)$$

若要求 $L/\bar{X} \times 100(\%)$ 不大于 $P(\%)$,则有

$$n = \left[\frac{t_{\alpha/2} CV(\%)}{P(\%)} \right]^2 \quad (3 \cdot 21)$$

当监测项目测量值遵从对数正态分布时,对置信区间的要求一般以上置信限(UCL)为几何均数 G 的若干倍表示,如要求上置信限至多为几何均数 G 的 M 倍,则所需样本容量为

$$n = \left(\frac{t_{\alpha/2} S_{\lg x}}{\lg M} \right)^2 \quad (3 \cdot 22)$$

式中, $S_{\lg x}$ 为测量值几何标准差的常用对数值。

(2) 最小采样量 每一采样点上采集样品的体积和重量对测量结果的平均值和变异性有直接的影响,样品量越多,平均值的变异越小。决定样品采样量时,应考虑采样对象的粒度、成分、部位、时间、放射性水平和监测仪器的最低探测限。

原则上,最小采样量由监测分析样 M_{\min}^A 和贮存备用量 M_{\min}^O 两部分构成,即

$$M = M_{\min}^A + M_{\min}^O \quad (3 \cdot 23)$$

若仪器的最低探测限为 L_D ,则单次分析所需最小样品量为

$$m_{\min}^A = \frac{L_D}{Y\eta A e^{-\lambda_r t}} \quad (3 \cdot 24)$$

式中,

m_{\min}^A ——单样最小监测分析样品量, L 或 kg;

L_D ——仪器最低探测限, Bq;

Y ——分析方法的化学回收率;

η ——仪器的探测效率, $s^{-1} \cdot Bq^{-1}$;

A ——样品中待测核素的浓度或比活度, $Bq \cdot L^{-1}$ 或 $Bq \cdot kg^{-1}$;

λ_r ——待测核素的衰变常数, s^{-1} ;

t ——从采样到测量之间的时间间隔, s。

按式(3.24)估计的单样监测分析最小样品量 m_{\min}^A 乘以所需样本容量 n ,即可求得最小采样总量 M_{\min}^A 。贮存备用样品量一般可取 M_{\min}^A 的 1~3 倍,为事后重复测量、仲裁测量所需的样品量。

(3) 采样时间和频度 对于有周期性变异(日、周、月)的监测项目,应在变异周期内不同的时刻采集大致相同数量的样品,以保证对总体平均水平的估计值不造成严重的偏差;对于不存在周期性变异的项目采样,所需采样总量可在整个监测周期内平均分配。

采样频度应能反映监测项目的月、季、年变化,并应与不同的监测目的要求相适应。监视性监测应取较高的采样频度,了解污染物在环境中蓄积趋势的监测采样频度可低些。

3.4.1.2 随机抽样方法

按随机抽样原则采样而构成的样本,是对监测数据进行统计分析和推断的基础。为取得随机样本,首先应明确定义总体,应考虑地域、时间、监测项目以及待测核素的差异,将定义总体划分成相对独立的基本抽样单元,再按随机原则从这些单元中采集一部分样品进行监测,这些实测的抽样单元就组成了该总体的一个随机样本。

常用的随机抽样方法有单纯随机抽样法、机械抽样法、混合抽样法和分层抽样法等。

3.4.1.3 空气样品的采集

气载放射性核素常以尘埃、气溶胶和气体、蒸汽两种形态存在于空气中,空气采样设备与方法的选择和采样点的选定不仅应考虑污染核素的形态,也必须考虑监测目的、环境、气

象、污染物排放条件等诸多因素。

(1) 采样点的选定 环境空气采样点的选定与监测目的有密切的关系,一般在设施的上、下风向都应布设采样点,下风向布点数应多于上风向。在大气环境质量现状评价与后果评价监测时,一般应按弧线布点,在山区、丘陵、海陆交界等复杂地形条件下,采样弧线的布设应十分慎重。在障碍物下风向,采样点应避开尾流效应影响区域,在距离大于障碍物高度十倍的范围外设点。

环境空气采样点应设在开阔平坦处,离地面高度为 50~180cm。室内空气采样点应设在人员经常停留的地方,采样器水平放置在人的口、鼻所处的高度。

(2) 采样设备和方法 对于环境空气中尘埃和气溶胶的样品采样,常用总浓度采样器作为总粒子浓度常规测量的采样装置,方法简单,效果良好,采用气流阻力小、收集效率高、廉价易得的醋酸纤维素滤纸、醋酸纤维-石棉混合滤纸、玻璃纤维滤纸或薄膜滤纸作过滤介质。撞击采样器、向心分离采样器、旋风采样器及模拟肺沉积采样器则可用于气溶胶粒度分级采样。

对于空气中放射性气体和蒸汽的样品采集,活性炭、浸渍活性炭吸附剂及活性炭滤纸可用于采集元素碘和有机碘,低温条件下活性炭可采集氦,硅胶可采集氡水蒸气。抽真空的电离室和闪烁室可直接用于采集空气样品,以测定空气中总的放射性污染水平。

(3) 采样体积 对于累积空气样品的采集,每个单样所需的采样体积为

$$V = FT = \frac{q}{\chi} \quad (3 \cdot 25)$$

式中,

V ——采样体积, m^3 ;

F ——采样流量, $m^3 \cdot \min^{-1}$;

T ——采样时间, \min ;

q ——最小可测放射性活度, Bq ;

χ ——待测空气的放射性活度浓度, $Bq \cdot m^{-3}$ 。

一般情况下,环境空气采样流量 $F = 0.02 \sim 2m^3 \cdot \min^{-1}$,室内空气采样流量 $F = 0.002 \sim 2m^3 \cdot \min^{-1}$ 。

采集的空气样品应妥善保护和存放,防止样品的脱落和交叉污染,样品不能暴露于空气中,也不可重迭。

3.4.1.4 沉降物样品的采集

沉降物包括大气尘埃、落下灰及雨雪,测量沉降物中放射性活度的目的在于调查研究核设施正常运行工况下及发生事故、核武器试验引起地面辐射强度的变化,估算其可能引起的任何危害。

通常采集一个月内的沉降物总量作为样品,若测量总 β 活度,也可采集 24h 沉降物量作样品。沉降物样品采集方法有粘纸法、水盘法、高罐法和专用雨雪采样器。

粘纸法常用于测量单位时间、单位面积地表活度沉积量。采样装置如图 3.9 所示,这种装置使用方便,但易溶核素易随雨水流失,收集效率约为 70%,样品仅可用于总 β 活度测量。

改进后的粘纸法采样装置将低灰分的棉纸或滤纸剪成圆形,涂以凡士林机油或松香萘

麻油,粘贴在相同面积的边周为 10cm 的圆盘底面上,可同时收集雨、雪,以防止核素流失。

水盘法采用高 15cm,面积 0.25m² 的不锈钢或聚乙烯圆盘,曝露期间(12~24h)盘内保持有水,并加适量浓度为 0.1% 的硝酸或盐酸,所收集的样品可用于总 β 活度测量及核素分析。

雨雪样品应采用专用雨雪采样器采集。

3.4.1.5 水样的采集

应根据水质分析项目及监测目的,合理布设水样采集点,样品要有代表性,同时要根据天然水体本身的变化,选定合理的采样时间、频度和采样体积。

(1) 采样点的布设 河水采样应在水流中心、横断面流速最大的部位采集表面水;当有排放水或支流汇入时,应在汇入点上下游分别设采集点,下游采集点应离汇入点 10 倍河宽处,以获得具有代表性的水样;宽、深河流断面上流速有明显差异或混合不均匀时,应按不同点处的流速或水样体积比采集混合水样;对于流经重要城市、工业区或重点污染源的河段,应在其上、下游适当的部位设置采样断面,并在其中设置必要的中间控制采样断面。

湖泊、水库一般在其中中心处采集表面水,水面较大时,还应在周边采集表面水,采样点应避免支流汇入口和湖水排出口。

井水采集一般只限于用作供水源的水井,一般在井中心采样。自来水应分别采集水源水及居民家庭用水样品。

(2) 采样频度、周期和采样量 水源水不受排放废水影响时,每月采样 1~2 次,受排放废水影响时,应适当缩短采样周期。

地下水每月或每季采样一次,地表水每月 1~4 次,一旦发现污染,应缩短采样周期。受潮汐影响的河流应在涨潮与退潮时分别采样;重点污染河段在每年丰水期和枯水期分别采样至少一次。

总 β 测量所需水样量为 2L,放化分析应取 100L, γ 谱分析取 40~60L。

水样采集应确保水样与水体的一致性。必要时,水样中应加适量的盐酸或硝酸作保存剂,水样应避免与空气接触。

应记录采样时间、水的颜色、气味和温度,防止样品的交叉污染。

3.4.1.6 水底沉积物的采集

水底沉积物是水环境的重要组成部分,对其采样监测是了解环境污染的历史与趋势,全面评价水环境质量的重要依据。

水底沉积物采样点布设原则与水样采集相同,其采集点应与水样采集点处于同一垂线上,以获取更多的污染信息。当污染控制断面上水样采集点下方底质为非泥质区时,可在其下游方向泥质区采集沉积物样品;上游对照断面处出现类似情况时,则在其上游方向泥质区采样。

沉积物采样周期为每年 1~2 次。

3.4.1.7 土壤样品的采集

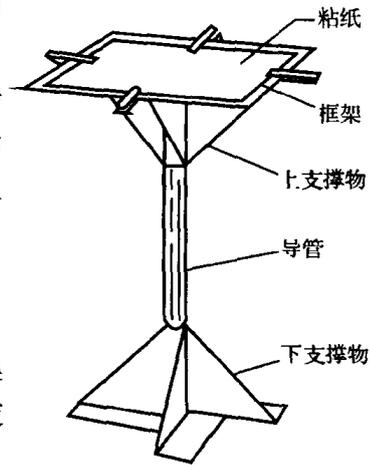


图 3.9 粘纸法沉降物采样装置

土壤样品采集前,应尽可能了解待测区域的自然条件、土壤特征、污染历史与现状,可使用环境 γ 辐射仪,按一定的网格对待测区进行地表 γ 辐射剂量巡测,以确定重点采样区域,并应在远离污染源但土壤性质基本相似的区域设置必要的对照采样点。

采样点应选在远离公路、铁路的平坦开阔地带,应在采样区整个田块内按一定的方式均匀布设采样点以保证样品具有可靠的代表性。一般将采样区划分为若干单元,每一单元内按图 3.10 所示的方式布点,各点土样均匀混合后,作为该单元的土壤样本。采样单元应避免

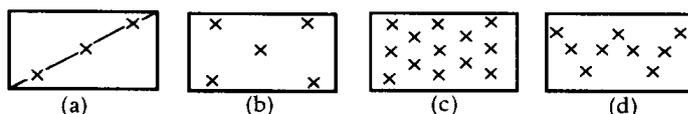


图 3.10 土壤采样点布设方式

(a)对角线法; (b)梅花形法; (c)棋盘形法; (d)蛇形法

离过多蚯蚓活动的区域。

根据不同的监测目的,土壤采样深度为 5~30cm 不等,每个样品重量不少于 2~3kg。常规监测中,采样频度为每半年一次。

3.4.1.8 生物样品的采集

生物样品的采集也应注意样品的代表性、典型性和适时性,应根据环境污染状况选定采集区,再划分若干具有代表性的典型采样小区。

蔬菜与粮食作物一般在收获季节采集,每一采样小区内按梅花形或棋盘形布设 5~10 个采样点,各点采集的样品混合构成一个代表样品,每份样品总鲜重量不少于 5kg。通常应采集植物的可食部位(根、茎、叶、果),必要时也可采集全株。水生植物则采集全株。

动物样品采集可食部分,牛奶应定点、定期采集原奶汁。

生物样品应及时烘干,以便长期保存,烘干时应记录样品的干鲜重量比。

3.4.2 环境样品的前处理

环境样品前处理的目的在于缩小体积,减小重量,破坏有机成分,使待测核素转入溶液体系中,以便于分离操作。前处理过程中应确保待测核素不损失,尽可能地去掉干扰组分,不引入新的干扰组分和杂质。

3.4.2.1 水样的贮存和处理

水样存放期间可能发生某些物理、化学及生物变化,使之不能真正代表原来的水质状况。为此,可采用酸化、冷冻、添加适量的载体或稳定剂等方法,一般多以 HCl 或 HNO₃ 将水样 pH 调至 1~2。为了抑制微生物的繁殖,可加入适量的有机试剂。

为了控制放射性核素在容器材料表面上的吸附,应采用聚乙烯或聚四氟乙烯容器存放水样。当水中含有大量的悬浮物与泥砂时,应采用自然澄清或过滤法去除之,取清液进行分析。必要时,还应对过滤得到的固体成分进行分析。

3.4.2.2 土壤样品的前处理

土壤样品须经风干、研磨过筛及恒温烘烤处理,并及时记录重量的变化,以计算土壤的含水率。

过筛、烘干后的样品常采用浸取法提取其中的放射性核素,常用的浸取液为无机酸、混合酸、王水及 $\text{HNO}_3 - \text{H}_2\text{O}_2$ 混合液。对含少量硅酸盐的样品,可先用硝酸和氢氟酸浸取,再加入硫酸或高氯酸蒸发,以除去其中的硅。当土壤中含有某些不溶于酸的核素成分时,可用熔融法进行前处理。

3.4.2.3 生物样品的前处理

(1) 干灰化法 干灰化法一般不需添加试剂,不会增加试剂空白和引入干扰物,适用于数量较大、对设备腐蚀作用小的生物样品前处理。通过干灰化处理,样品体积或质量可减小 10 倍以上,但灰化过程中易挥发组分损失较多,对粮食等样品所需时间过长。

样品在低于着火临界温度下炭化至无烟,转入马弗炉中,在 $200 \sim 300^\circ\text{C}$ 下灰化数小时后,再在 450°C 下灰化至灰分呈疏松的白色或灰白色时为止。植物样品灰化温度为 $400 \sim 450^\circ\text{C}$,骨骼样品为 $600 \sim 700^\circ\text{C}$ 。

样品经一定时间灰化后如仍存在炭粒,可用适量 HNO_3 、 NH_4NO_3 或 H_2O_2 浸润后再行灰化,可大大缩短灰化时间。

为了减少灰化过程中核素的挥发损失,可预先加入适量的高纯度硫酸、硫酸钾、硫酸镁等灰化助剂。如在炭化时通入氮气,灰化时通入 NO_2 和 O_2 混合气体,可加速样品中有机组分的分解,缩短灰化时间。

(2) 湿灰化法 湿灰化法又称湿消解法,其氧化速度快,不需要专门的设备,操作简便,核素损失较少,但使用酸量较多,腐蚀严重,难于处理大量样品。常用的氧化剂有硝酸、高氯酸、硫酸、王水、混合酸、 H_2O_2 与酸的混合液等(表 3.7)。

表 3.7 湿消化法采用的混合酸^①

混 合 酸	HNO_3 (相对密度 1.4) (mL)	H_2SO_4 (相对密度 1.84) (mL)	HClO_4 (相对密度 1.54) (mL)
$\text{HNO}_3 + \text{HClO}_4$	15	-	10
$\text{HNO}_3 + \text{HClO}_4 + \text{H}_2\text{SO}_4$	15	5	10
$\text{HNO}_3 + \text{H}_2\text{SO}_4$	15	10	-

① 表列混合酸的量是对 2g 可可粉进行湿消化的用量。

干生物样品在烧杯中与氧化剂一起加热消化,消化液中若有棕色气体逸出,表明消解尚不完全,可重复加入少量硝酸、 H_2O_2 或高氯酸,直至无棕色气体逸出,残渣呈纯白色,即表明已消解完全。

采用 $\text{H}_2\text{O}_2 - \text{Fe}^{2+}$ 氧化剂(Fenton 试剂),湿消解可在较低的温度下进行,但不适用于脂肪、油类物质的消解。

(3) 熔融法 当核素以不溶于酸的形态存在于样品中,或经灰化处理后核素被氧化成难溶性物质时,其残渣或灼烧物可与适当的熔融剂进行高温熔融,使之转变为可溶状态。

硫酸氢钾、焦硫酸钾、碳酸氢钾等酸性熔剂可用于氧化物和碱性物质的熔融,碳酸钠、氢氧化钠、氟化钠等碱性熔剂适用于硅酸盐类物质(如土壤)的熔融,硝酸盐、亚硝酸盐、过氧化物等氧化熔剂可熔融各类难溶氧化物。

熔融温度不可过高,以免增加核素的损失,还应注意熔剂对坩埚的腐蚀作用,一般可采用铁、镍、石墨或铂坩埚进行样品的熔融处理。

3.4.3 环境样品的化学分离

经前处理后的水样,土壤样品的浸取液,生物样品的灰样或消解、熔融产物,应进一步作化学分离,以提高待测核素的浓度,并与其它杂质及干扰物质分离,从而提高测量分析的选择性和灵敏度。

水样、浸取液、灰样及消解、熔融产物的酸溶液,常用蒸发、沉淀-共沉淀、溶剂萃取、色层分离(包括离子交换色层、萃取色层、纸色层和气相色谱)、电化学、电解、能谱等方法进行分离和浓集。

3.5 环境样品的室内物理测量

3.5.1 总放射性活度测量

样品中某种辐射(α 、 β 或 γ 辐射)的总发射率称为总放射性活度。环境监测中总放射性活度测量的目的是:

- ① 对大量样品进行分类或筛选,初步判断是否存在放射性污染,筛选出需进一步作单个核素分析的样品;
- ② 当样品中核素大致组成已经明确时,总放射性测量结果也可反映各单个核素的大致活度水平;
- ③ 当样品中核素组成不明时,将总放射性测量结果与样品中可能含有的限制最严的核素的控制限值作比较,可判断流出物排放是否符合控制管理要求;
- ④ 大区域环境监测评价中,总放射性测量结果可用以判明可能存在本底升高或污染的范围。

此外,总放射性测量结果也可用作对单个核素分析结果的分析、核对依据;事故应急监测(特别是早期监测)中,常用作选用应急防护措施的决策依据。

3.5.1.1 总 α 活度测量

天然放射性核素 α 辐射的粒子能量为 $2\sim 8\text{MeV}$,在土壤与生物样品中的射程为 $4\sim 6\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ 。

环境样品总 α 活度测量方法有直接法、浓集(载带或蒸发)法及化学分离- α 谱仪法,其中以 α 谱仪法灵敏度最高,并可给出单个核素的活度浓度值。

按测量样品厚度的不同,总 α 活度测量又可分为薄层法、厚层法及中间厚层法。常用的 α 活度测量装置有正比计数器、闪烁计数器(ZnS 及液闪体系)、固体径迹或核乳胶、半导体探测器、屏栅电离室等。

(1) 薄层法 当样品厚度小于 $0.03\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ 时, α 粒子在样品中的自吸收可以忽略,由探测器测量的 α 净计数率经探测效率校正,即可求得样品中 α 放射性的活度浓度。在常规监测和污染源调查中,样品厚度在 $0.5\sim 1.0\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ 范围内,仍可忽略自吸收影响(结果偏低约10%)。

对于水和其它液体样品,

$$C_{\alpha} = \frac{(n_a - n_b)M_T}{\eta_{\alpha} M_d Y} \quad (3 \cdot 26)$$

式中,

- C_{α} ——待测样品中总 α 活度浓度, $Bq \cdot L^{-1}$;
 n_a ——样品源计数率, s^{-1} ;
 n_b ——本底计数率(包括试剂空白和仪器本底), s^{-1} ;
 M_T ——每升水样的残渣量, $mg \cdot L^{-1}$;
 η_{α} ——仪器对 α 标准源的探测效率, $s^{-1} \cdot Bq^{-1}$;
 M_d ——样品源质量, mg ;
 Y ——制样回收率。

对于生物样品灰、土壤等固体样品, 研磨粉碎至 80~100 目, 在乙醇中铺成薄层样, 样品源中 α 比活度($Bq \cdot kg^{-1}$)为:

$$\dot{A}_{\alpha} = \frac{1 \times 10^6 (n_a - n_b)}{\eta_{\alpha} M_d Y} \quad (3 \cdot 27)$$

根据鲜/灰比等制样条件参数, 可换算求得生物样品中的总 α 比活度。

(2) 中间厚层法 当样品源厚度尚未达到 α 粒子在该物质中的射程, 但其自吸收影响不可忽略时, 应对 α 粒子在源物质中的自吸收加以校正, 样品源中 α 比活度($Bq \cdot kg^{-1}$)为:

$$\dot{A}_{\alpha} = \frac{1 \times 10^6 (n_a - n_b)}{S \delta_m (1 - \delta_m / 2 \delta_s) \eta_{\alpha} Y} \quad (3 \cdot 28)$$

式中,

- S ——样品源面积, cm^2 ;
 δ_s —— α 粒子在源物质中的自吸收饱和厚度, $mg \cdot cm^{-2}$;
 δ_m 为样品源质量厚度($mg \cdot cm^{-2}$), 且

$$\delta_m = \frac{M_d}{S} \quad (3 \cdot 29)$$

对于水和其它液体样品,

$$C_{\alpha} = \frac{(n_a - n_b)M_T}{S \delta_m (1 - \delta_m / 2 \delta_s) \eta_{\alpha} Y} \quad (3 \cdot 30)$$

C_{α} 单位为 $Bq \cdot L^{-1}$ 。

(3) 厚层法 当样品源厚度超过 α 粒子在源物质中的自吸收饱和厚度 δ_s 后, 样品计数率不随源厚度增大而增加。此时, 可按厚层法计算样品源中 α 比活度($Bq \cdot kg^{-1}$):

$$\dot{A}_{\alpha} = \frac{(n_a - n_b) \times 1 \times 10^6}{0.5 \times S \delta_s \eta_{\alpha} Y} \quad (3 \cdot 31)$$

对于水和其它液体样品,

$$C_{\alpha} = \frac{(n_a - n_b)M_T}{0.5 \times S \delta_s \eta_{\alpha} Y} \quad (3 \cdot 32)$$

C_{α} 的单位为 $Bq \cdot L^{-1}$ 。

(4) 自吸收饱和厚度的确定 通常采用铝箔吸收法实验测定样品源对 α 粒子的自吸收饱和厚度, 实验中采用与待测 α 核素粒子能量相同的平面 α 标准源及已知厚度(约 $1mg \cdot$

cm⁻²)的铝吸收箔,测量加盖铝箔前后标准源的计数率,即可按下式求得α核素在铝中的吸收饱和厚度:

$$\delta_{Al} = D_{Al} \times \frac{n_1}{n_1 - n_{Al}} \quad (3 \cdot 33)$$

式中,

δ_{Al} ——α粒子在铝中的吸收饱和厚度,mg·cm⁻²;

D_{Al} ——加盖铝箔的质量厚度,mg·cm⁻²;

n_1 ——不加铝箔时标准源计数率,s⁻¹;

n_{Al} ——加盖铝箔后标准源计数率,s⁻¹。

样品源对α粒子的自吸收饱和厚度为:

$$\delta_S = \delta_{Al} (A/A_{Al})^{1/2} \quad (3 \cdot 34)$$

式中,

δ_S ——样品源对α粒子的自吸收饱和厚度,mg·cm⁻²;

δ_{Al} ——α粒子在铝中的吸收饱和厚度,mg·cm⁻²;

A ——样品源物质的平均原子量;

A_{Al} ——铝的原子量。

许多情况下,可以α粒子在铝中的吸收饱和厚度近似代表其在样品源中的自吸收饱和厚度。

(5) α标准源的选择与计数效率刻度 总α活度测量中,仪器计数效率应采用适当的α标准源进行刻度。原则上,标准源的α粒子能量应与待测α粒子的能量相同,一般情况下,天然本底调查中可采用天然铀标准源,核设施环境污染监测调查时,可采用²³⁹Pu + ²⁴⁰Pu标准源。

3.5.1.2 总β活度测量

β粒子在样品源物质中的射程比α粒子大得多,而且,不同核素β粒子的最大能量相差很大。因此,一般不可能采用薄样或饱和厚层法测定样品的总β活度,通常将样品均匀地铺成厚度为10~50mg·cm⁻²(以20mg·cm⁻²为宜)。样品厚度太大时,对低能β粒子计数效率明显降低,从而增大测量误差。

天然环境样品中,总β活度主要来自⁴⁰K的贡献。对可能受到人工核素污染的样品,常需进行去钾总β活度测量,其方法是分别测量样品的总β活度及钾含量,根据钾含量求得⁴⁰K的β放射性活度,再从总β活度减去⁴⁰K活度,即可求得样品的去钾总β活度。也可采用化学方法从样品中去除钾,直接测定其去钾总β活度。

对固体样品,总β比活度可按下式计算:

$$\dot{A}_\beta = \frac{(n_a - n_b) \times 10^6}{\eta_\beta M_d Y} \quad (3 \cdot 35)$$

式中,

\dot{A}_β ——待测样品中的总β比活度,Bq·kg⁻¹;

M_d ——样品源质量,mg;

η_β ——仪器对样品源β活度的探测效率(包括自吸收),s⁻¹·Bq⁻¹。

对水或其它液体样品, C_{β} 单位为 $Bq \cdot L^{-1}$ 。

环境样品总 β 活度测量一般采用优级纯的 KCl 试剂作为标准,用以对仪器探测效率进行刻度。经 100 目筛子过筛后的 KCl 在 $110^{\circ}C$ 下烘 4-6h,冷却后在样品盘中铺成一系列不同厚度的系列标准样品,测量相应的 β 计数率,即可求得仪器对样品中 β 活度探测效率 η_{β} 与样品厚度之间的关系曲线(纯 KCl 的 β 比活度为 $14.5Bq \cdot g^{-1}$)。根据待测样品的质量厚度,即可从曲线上(图 3.11)查得相应的探测效率 η_{β} 。

3.5.2 α 能谱分析

环境样品的总放射性活度测量只能给出样品的总 α 或总 β 活度浓度(或比活度),如要鉴别测量其中各单个核素的活度水平,则需进行放射化学分离,再分别进行活度测量,这种方法非常繁杂,分离过程中核素损失量大,而且无法进行同位素分离。能谱分析则可直接用来鉴别测量各种辐射能量不同的单个核素的活度水平。

环境样品往往含有多种 α 放射性核素,每一种核素发射一种或几种确定能量的 α 粒子,采用 α 谱仪对不同能量的 α 粒子分别进行计数测量,可对同一样品分别求得其中各单个核素的 α 活度。

α 粒子在探测器中因电离或光电效应而产生电流脉冲,其幅度与 α 粒子能量成正比。以 α 粒子的能量(即脉冲幅度)为横坐标,某个能量段内 α 粒子数(或计数率)为纵坐标,即可显示样品中各单个核素发射的 α 粒子的能量与活度(图 3.12)。理论上,单能 α 粒子谱应是位于相应能量点处垂直于横坐标轴的单一直线,但由于 α 粒子入射方向、空气吸收、样品源自吸收的差异和低能粒子的叠加等原因,实际测得的是具有一定宽度的单个峰,其峰顶位置相应于 α 粒子的能量,谱线以下的面积为相应能量的 α 粒子的总计数率,峰的半高宽与峰顶能量比值的百分数则为 α 谱仪的能量分辨率。

环境物质中 α 放射性活度很低, α 粒子的射程又短,因此, α 能谱分析必须满足以下几项基本要求:

① 为防止因样品自吸收而导致谱线低能部分展宽过大,应提高能量分辨率,样品厚度一般不宜超过 $0.05mg \cdot cm^{-2}$;

② 为提高探测灵敏度,样品面积应尽可能大,或预先进行适当的浓集;

③ 制样过程中应避免核素的损失和交叉污染;

④ 由于低水平测量所需测量时间很长,探测系统应有足够的探测效率和良好的长期稳定性。

常用于 α 能谱分析的探测器有屏栅电离室、正比计数器及半导体探测器等。其中圆柱形屏栅电离室可将外筒内壁作为铺放样品的阴极,增大样品面积,减小电离室的极间电容,可获得良好的能量分辨率。

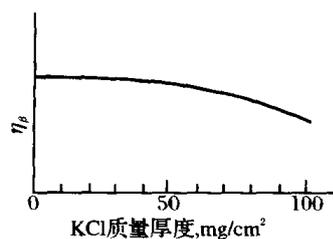


图 3.11 KCl 质量厚度与 η_{β} 的关系曲线

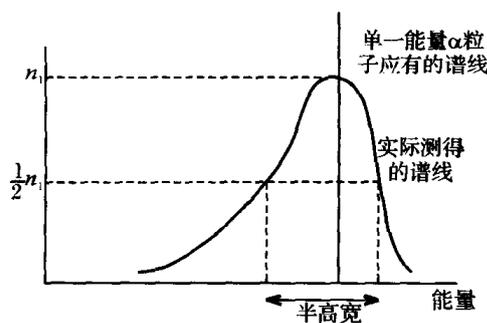


图 3.12 α 粒子能谱线与半高宽

屏栅电离室的最小可探测活度可按下式估算：

$$A_0 = \frac{3\sqrt{n_b/t}}{\eta \times 3600} \quad (3 \cdot 36)$$

式中，

A_0 ——最小可探测活度，Bq；

n_b ——5MeV ± 25keV 能量范围内本底计数率， h^{-1} ；

t ——样品测量时间，h；

η ——仪器探测效率， $s^{-1} \cdot Bq^{-1}$ 。

显然， α 谱仪对能量不同的 α 粒子的探测效率应以相应能量的 α 标准源进行刻度。

根据 α 能谱可以确定样品中各单个核素的 α 粒子能量及活度水平，对某一特定核素的活度测量而言，有限能量范围(道宽)内的本底计数率远比总 α 活度测量的本底低，可大大提高探测灵敏度，并可用于鉴别测量活度水平极低的 α 核素(如空气中极微量的人工污染核素与氦子体的鉴别测量)。

在环境样品浓集、处理、制样过程开始之前，添加定量的与某种待测核素属同一元素的另一种 α 示踪同位素，采用 α 谱仪测量最后样品中这两种同位素的计数，即可求得制样过程对该核素的回收率。

3.5.3 γ 能谱分析

3.5.3.1 测量装置

NaI(Tl)闪烁体 γ 谱仪探测效率高，价格低廉，易于维护，目前仍用于环境样品的 γ 能谱分析，但因其能量分辨率差，故仅用于分析天然放射性核素(^{238}U 系、 ^{232}Th 系和 ^{40}K)、具有简单 γ 能谱的人工放射性核素(如 ^{60}Co 和 ^{137}Cs)和经放射分离后的单个核素及 γ 能谱较简单的多核素样品。

在单晶 NaI(Tl) γ 谱仪基础上，增加符合、环反符合 NaI(Tl)晶体和相应的符合、环反符合电子学仪器而构成的低本底 γ 谱仪，探测本底大为降低，减小了高能峰对低能峰的干扰，具有更低的可探测限。

Ge 半导体 γ 谱仪分为 Ge(Li)和 HPGe 两类，其能量分辨率高，适合于复杂 γ 能谱的分析测量，但探测效率较低，设备昂贵，维护困难。

3.5.3.2 γ 谱仪的刻度

(1) 能量刻度 γ 谱仪的能量刻度是指确定多道分析器中道址与 γ 射线能量之间的关系。在确定的测量条件下，能量刻度的精度主要取决于刻度源的特性、活度，其中所含核素 γ 射线能量的分布和精度，谱仪系统的能量分辨率和稳定性。

NaI(Tl) γ 谱仪能量分辨率差，宜用单能 γ 源刻度，也可用含几种能量且差异较大的 γ 射线源刻度。

Ge 半导体 γ 谱仪可用发射多种能量的 γ 射线源(如 ^{152}Eu)或混合核素 γ 源刻度，刻度源的 γ 射线活度应适中， γ 射线能量精度较高，并尽可能均匀覆盖整个测量能区。

能量刻度时可同时进行能量分辨率刻度，即求得谱仪全能峰半高宽(FWHM, keV)与 γ 射线能量或峰位之间的关系。

(2) 探测效率刻度 全能峰探测效率 ϵ 的定义为 γ 谱仪测得的刻度源中能量为 $E_{i,\gamma}$ 的

γ 射线全能峰净计数率 n_0 与源中该 γ 射线发射率 $A_0 f_{i,\gamma}$ 之间的比值,即

$$\epsilon = n_0 / (A_0 f_{i,\gamma}) \quad (3 \cdot 37)$$

式中,

ϵ —— γ 谱仪的全能峰探测效率;

n_0 —— γ 谱仪对能量为 $E_{i,\gamma}$ (keV) 的 γ 射线的全能峰净计数率, s^{-1} ;

A_0 ——刻度源的活度, Bq;

$f_{i,\gamma}$ ——源中核素每次核转变发射能量为 $E_{i,\gamma}$ 的 γ 射线的份额(分支比)。

全能峰探测效率与 γ 射线的能量、源的形状、介质成分、源和探测器的相对位置及是否存在级联辐射等因素有关,同时也取决于探测器本身的性能。

γ 谱仪探测效率刻度采用的刻度源有点源、面源和体源,环境样品大多为体积样品。应尽可能采用体源进行刻度,常用的刻度标准源或标准参考物质的介质有土壤、矿粉和河泥等,其中所含核素为 ^{238}U 系、 ^{232}Th 系、 ^{40}K 等天然放射性核素和 ^{60}Co 、 ^{137}Cs 、 ^{152}Eu 等人工放射性核素。

当样品和源的几何形状、介质成分、表观密度和放置位置完全相同时,样品中发射能量为 $E_{i,\gamma}$ 的 γ 射线的某种放射性核素的活度为:

$$A = nA_0 / n_0 = n / (\epsilon f_{i,\gamma}) \quad (3 \cdot 38)$$

式中,

A ——样品中该核素的活度, Bq;

n —— γ 谱仪对样品测得的能量为 $E_{i,\gamma}$ 的 γ 射线全能峰净计数率。

3·6 环境样品的放射化学分析

对环境样品中所含放射性核素进行定性及定量的放射化学分析,是环境辐射监测的重要内容,其涉及的样品有空气、水、食品、土壤、水体底质泥、沉降物、陆生及水生生物等;分析测量的主要核素为铀、钍、镭、钋等天然放射性核素,铯、锶、碘等裂变产物核素,钷、镧、铈等超铀元素和氡。由于监测对象复杂,通常需采用比较复杂的物理和化学方法进行样品的前处理和分离纯化。

环境样品中所含放射性核素的比活度水平一般是很低的,因此,常需采用微量或超微量分析技术。

3·6·1 天然放射性核素的放射化学分析

3·6·1·1 铀的分析

(1) 概述 铀的地球化学性质十分活泼,在自然界中分布很广,并易于迁移和分散。铀在地壳中的平均含量为 $3 \sim 4 \times 10^{-6}$,在海水中为 $3 \sim 4 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$,大部分的温泉、河湖水及生物体内也都有微量铀存在。

铀常以四价或六价阳离子形式与其它元素化合的矿物状态存在于自然界中,现已查明的铀矿物及含铀矿物达 200 多种,但可作为矿物资源开采的仅 10 余种,矿物含铀大于 0.1% 即可开采。

铀共有 15 种放射性同位素,即²²⁶U~²⁴⁰U。其中²³⁴U、²³⁵U 和²³⁸U 为天然同位素,其丰度分别为 0.0054%、0.720% 和 99.275%;其余均为人工同位素。

铀在水溶液中能以 U(III)、U(IV)、U(V) 和 U(VI) 四种价态存在,以 U(VI)(UO₂²⁺) 为最稳定。pH>2.5 时,UO₂²⁺ 在水溶液中会发生水解反应,其水解产物因 pH 升高而不同,pH>3 时为 UO₂(OH)⁺;pH>4 时为 UO₂(OH)₂。水解反应还与溶液含铀浓度有关,浓度较高时,水解产物除 UO₂(OH)⁺ 外,还有 U₂O₅²⁺ 和 U₃O₈⁺ 等,它们都可形成单聚或多聚铀化合物。溶液含铀浓度愈高,水解析出氢氧化物沉淀所需的 pH 值愈低。

铀的基准化合物是 U₃O₈,在 500℃ 以上的空气中也能稳定存在,且有固定的组成。U₃O₈ 不溶于水和各种稀酸,但可溶于浓硝酸:



标准铀溶液即是按此反应配制的。

UO₂²⁺ 能与无机酸根离子、有机化合物、有机显色剂络合,这些络合反应在铀的分析中应用十分广泛。

一般环境水样可直接用于铀浓度测定,含悬浮物的水样应过滤,有机物含量较高时,可用 HNO₃ 和 H₂O₂ 反复处理、蒸干,使有机杂质分解,用 pH=2 的酸化水溶解白色残渣;生物样品灰或土壤样品可用 Na₂S₂O₈ 进行预处理,滤液用 10% (V/V)HNO₃ 酸化至 pH 3~4 后,供分析测量之用。

(2) 分析方法 迄今已建立了 10 余种铀的分析方法(表 3·8),环境样品分析常用激光荧光法和分光光度法。

表 3.8 几种常用的铀分析方法

方 法	最低探测限(gU)	特 点
重 量 法	10 ⁻² ~10 ⁻¹	结果准确,精密度较高,需预分离,操作繁杂费时,适用于铀含量较高的样品
容 量 法	5×10 ⁻⁴ ~10 ⁻³	结果准确,精密度较高,设备简单,操作简易快速,测量范围较宽,适用于中、低含量铀的分析
极 谱 法	1×10 ⁻⁶	灵敏度高,选择性较好,可在有大量其它元素存在的条件下直接测量样品中的痕量铀
分光光度法	1×10 ⁻⁷	设备简单,操作简便,需预分离,适用于中、低含量铀的分析
固体荧光法	1×10 ⁻¹⁰	灵敏度高,精密度稍差,需预分离,适用于微量铀的分析
激光荧光法	5×10 ⁻¹¹	操作简便、快速、灵敏度高,氮激光管需每年更换,适用于微量铀的分析

1) 激光荧光法 溶液中的铀酰离子在氮激光器发出的波长为 337.1nm 的脉冲激光照射下,能产生一种特征性绿色荧光,在一定的铀浓度范围内,荧光强度与试样铀含量成正比。

该方法测定范围为 0.05~20μg·L⁻¹,相对标准偏差小于 15%。对各种环境样品溶液的最低检测限为(1~2.5)×10⁻⁸g·L⁻¹。各种干扰杂质的限量为 Cr⁶⁺(或 Mn⁷⁺)<4μg·L⁻¹,Fe³⁺<6μg·L⁻¹,F⁻<20μg·L⁻¹,腐殖酸<3mg·L⁻¹。

待测水样或其它样品溶液经必要的稀释或浓缩后,调节 pH 为 3.0~11,在激光荧光仪

上测得荧光强度为 N_0 , 加入适量 J-22 荧光增强剂(增强倍数 > 100)后测得 N_1 , 再加入适量铀标准溶液后测得 N_2 。水样的铀浓度 C 按下式计算

$$C = K \times \frac{N_1(V_0 + V_1) - N_0 V_0}{N_2(V_0 + V_1 + V_S) - N_1(V_0 + V_1)} \times \frac{V_S}{V_0 Y} C_S \times 1000 \quad (3 \cdot 39)$$

式中,

- C ——水样中铀浓度, $\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$;
- K ——水样稀释倍数;
- N_0 ——未加荧光增强剂的水样的仪器读数;
- N_1 ——加荧光增强剂后水样的仪器读数;
- N_2 ——再加铀标准溶液后水样的仪器读数;
- C_S ——加入铀标准溶液的浓度, $\mu\text{g} \cdot \text{mL}^{-1}$;
- V_0 ——分析用水样体积, mL;
- V_S ——加入铀标准溶液的体积, mL;
- V_1 ——加入荧光增强剂溶液的体积, mL;
- Y ——全程化学回收率, %。

当 $V_0 \gg V_1$ 和 V_S 时, 该式可简化为:

$$C = K \times \frac{N_1 - N_0}{N_2 - N_1} \times \frac{V_S C_S}{V_0 Y} \times 1000 \quad (3 \cdot 40)$$

生物样品灰中铀含量 C 可按下式计算

$$C = \left(\frac{N_1 - N_0}{N_2 - N_1} - B \right) \frac{V_S C_S V'_0 K'}{V_0 W Y} \times 10^{-3} \quad (3 \cdot 41)$$

式中,

- C ——样品灰中铀含量, $\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$;
- V'_0 ——样品溶液总体积, mL;
- K' ——测量时样品溶液稀释倍数;
- W ——分析用样品灰质量, g;
- Y ——方法回收率, %;

B ——空白试验中仪器读数 N_0 、 N_1 、 N_2 按公式 $\frac{N_1 - N_0}{N_2 - N_1}$ 计算的值。

其余符号意义同式(3·39)。

样品溶液加入荧光增强剂后如产生沉淀, 应将溶液稀释或用其它方法处理, 澄清后方可测量。生物样品灰及空气过滤样品测量时, 应同时作空白试验及回收试验。

2) 分光光度法 铀与显色剂形成的有色络合物对一定波长的光具有最大吸收峰值, 在一定的铀浓度范围内峰值大小与铀含量成正比。

在 HNO_3 介质中, 用 TBP(磷酸三丁酯)定量萃取铀酰离子与硫氰酸根生成的络合物, 经偶氮胂Ⅲ反萃取, 用分光光度法测定铀。

该方法测定范围为 $2 \sim 100 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$, 相对标准误差小于 10%, 收率大于 90%。

以铀标准溶液配制不同铀含量的一组水溶液,在存在络合、掩蔽剂的条件下,调 pH 为 2~3,用 TBP-煤油混合液萃取后,以 NH_4NO_3 溶液洗涤有机相,偶氮胂 III 溶液显色反萃,反萃液在 655nm 处测定吸光度,绘制工作曲线。

取一定量水样或其它样品溶液(视铀含量而定)按同样步骤操作,测定吸光度。水样的铀浓度按下式计算

$$C = \frac{A}{V} \quad (3 \cdot 42)$$

式中,

- C——水样中铀浓度, $\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$;
- A——工作曲线上查得的铀量, μg ;
- V——分析用水样体积, L。

生物样品的铀含量可按下式计算

$$C = \frac{AM}{WY} \times 10^{-3} \quad (3 \cdot 43)$$

式中,

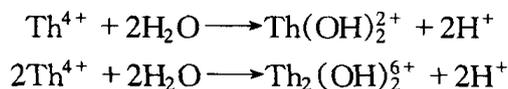
- C——生物样品中铀含量, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$;
- W——分析用生物样品灰的质量, g;
- M——样品灰鲜比, $\text{g 灰} \cdot \text{kg}^{-1}$ (鲜重);
- Y——对标样的化学回收率, %。

其余符号意义同式(3·42)。

3·6·1·2 钍的分析

(1) 概述 钍广泛分布于地壳表面,在地壳中的含量约为 8×10^{-6} 。钍原子的价电子为 $6d^2 7s^2$,易与氧结合, Th^{4+} 的离子半径与 Ca^{2+} 、 Y^{3+} 、三价钷族稀土、三价铈族稀土及 Zr^{4+} 的离子半径相近,极易与上述元素共生。主要含钍矿物有独居石(Ce 、 Y 、 La 、 Th) PO_4 、方钍石(Th 、 U) O_2 和钍石 ThSiO_4 等。

钍共有 23 种同位素,天然存在的有 ^{227}Th 、 ^{228}Th 、 ^{230}Th 、 ^{231}Th 、 ^{232}Th 和 ^{234}Th ,其中最主要是 ^{232}Th ,是钍系的母体核素。钍通常只以 Th^{4+} 形式存在于水溶液中,价态稳定。当溶液 pH>3 时, Th^{4+} 易水解,其反应为:



当 pH>3.5 时,即可析出 $\text{Th}(\text{OH})_4$ 沉淀。

钍的基准化合物是 ThO_2 ,低于 600℃ 制得的 ThO_2 易溶于 HNO_3 和 HCl ,高于 600℃ 制得的 ThO_2 一般不溶于 HCl 、 HNO_3 和王水中,加热时能溶于 H_2SO_4 ,也能溶于含少量 F^- 的热硝酸中。 ThO_2 能与硫氰酸钾、过氧化钠等熔融。

Th^{4+} 能与 F^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 CO_3^{2-} 等酸根离子生成易溶于水的无机络合物,但在任何浓度的 HCl 中不能直接与 Cl^- 形成络阴离子。

(2) 分析方法 环境和生物样品中,天然钍的含量很低,必须采用灵敏度高、准确性好的分析测定方法,并须进行样品的浓集和分离纯化。常用的样品分离方法有离子交换、溶剂萃取和萃淋树脂色谱法。常用的钍分析测定方法是分光光度法,对钍含量小于 10^{-7}g 的样

品,可采用中子活化法。

1) 分光光度法 样品溶液中加入镁载体,与钍形成氢氧化物共沉淀,用浓 HNO_3 溶解沉淀,采用三烷基氧膦(TRPO)萃淋树脂选择性吸附钍,用 $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 - \text{HCl}$ 解吸钍,以偶氮胂Ⅲ作显色剂,分光光度法测定钍。

本方法测定范围为 $0.01 \sim 0.5 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$,最低检测限为 $0.01 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

TRPO 萃淋树脂先后用去离子水及 $3 \text{mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{HNO}_3$ 浸泡处理,用去离子水洗至中性后装入色谱柱,以 $1 \text{mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{HNO}_3$ 淋洗后即可使用。

以钍标准溶液及去离子水配制一组不同含钍量的水溶液,按样品分析步骤操作,以偶氮胂Ⅲ溶液作参比,在 660nm 处测定吸光度,绘制工作曲线。

取适量水样,调 $\text{pH}=7$,加入适量镁载体和 NaOH ,沉淀放置过夜,用浓 HNO_3 溶解,溶液流经 TRPO 色谱柱后,用 HNO_3 和水流洗,以 $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 - \text{HCl}$ 混合液解吸钍,解吸液蒸干后用 $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 - \text{HCl}$ 混合液溶解,加入偶氮胂Ⅲ溶液显色,测定吸光度,从工作曲线上查得测试水样中的含钍量。

水样含钍浓度可按式(3·42)计算。

对碳酸盐型水质, Th^{4+} 可与 CO_3^{2-} 形成 $[\text{Th}(\text{CO}_3)_5]^{6-}$ 络阴离子,影响钍的定量沉淀,为此,可加入 H_2O_2 使生成溶度积小得多的 $(\text{Th}_2\text{O}_7 \cdot 11 \text{H}_2\text{O})$ 沉淀。

2) 中子活化法 ^{232}Th 在反应堆中子照射下发生 (n, γ) 反应,生成适合放射性计数测量的 ^{233}Th 及其 β 衰变子体 ^{233}Pa ,测定活化后样品的 β 活度并与标准样品作比较,即可求得样品中钍的含量。

样品活化后,经放化分离将 ^{233}Th 的子体 ^{233}Pa 分离出来,再测定其 β 活度,可排除其它元素活化产物的干扰,提高分析的灵敏度和准确性。

该方法的最低检测限为 $10^{-11} \sim 10^{-9} \text{g}$ 钍,适用于环境及生物样品中超微量钍的测定。

3·6·1·3 镭的分析

(1) 概述 镭共有 25 种同位素,其中只有 ^{223}Ra 、 ^{224}Ra 、 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 是天然存在的,是三个天然放射系中的重要核素, ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 分别是铀、钍矿水冶厂重要的监测核素。

镭位于元素周期表中第 7 周期 II A 族,是典型的碱土金属,在化合物中只以正二价存在,其化学性质与钡极为相似。

(2) 分析方法

1) 射气法测定 ^{226}Ra 核素 ^{226}Ra 因 α 衰变而产生惰性气体 ^{222}Rn , ^{226}Ra 的半衰期 (1602a) 远比 ^{222}Rn (3.82d) 为长,两者之间极易达到久期平衡,子体 ^{222}Rn 的活度即等于母体 ^{226}Ra 的活度,或经一定的积累时间 t 后,定量计算 ^{222}Rn 与 ^{226}Ra 之间的活度比。 ^{222}Rn 在水中的溶解度很小,可方便地从溶液中收集而进行测量。

水中镭与硫酸钡形成共沉淀,沉淀物溶解于碱性 $\text{EDTA} - 2\text{Na}$ 溶液中,封闭于扩散器中积累氡,转入闪烁室中作 α 计数测量,即可计算水样中 ^{226}Ra 的含量。

本方法测定范围为 $2.0 \times 10^{-3} \sim 3.0 \times 10^3 \text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$,最低检测限为 $2.0 \times 10^{-3} \text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

装有 ^{226}Ra 标准溶液的扩散器排气驱尽其中原有的氡后将其封闭 $1 \sim 5 \text{d}$,以积累氡。用真空泵将闪烁室和干燥管抽真空后,按图 3.13 所示的方式与已封闭的 ^{226}Ra 标准源扩散器、活性炭管及装有氯化钡饱和溶液的扩散器联接,使源扩散器中积累的 ^{222}Rn 及其子体进入闪

烁室,以一定的速度向系统进气,完毕后,记录进气时间。3h后闪烁室即可用室内氡气分析仪进行测量,按下式计算闪烁室的 K 值:

$$K = \frac{A(1 - e^{-\lambda t})}{n - n_0} \quad (3 \cdot 44)$$

式中,

K ——闪烁室的 K 值,单位计数率相应的活度, $Bq \cdot s$;

A —— ^{226}Ra 标准源活度, Bq ;

λ —— ^{222}Rn 衰变常数, $7.55 \times 10^{-3} \text{h}^{-1}$;

t —— ^{222}Rn 积累时间,源封闭至进气结束时的时间间隔, h ;

\bar{n} ——3次测量的平均计数率, s^{-1} ;

n_0 ——闪烁室本底计数率, s^{-1} 。

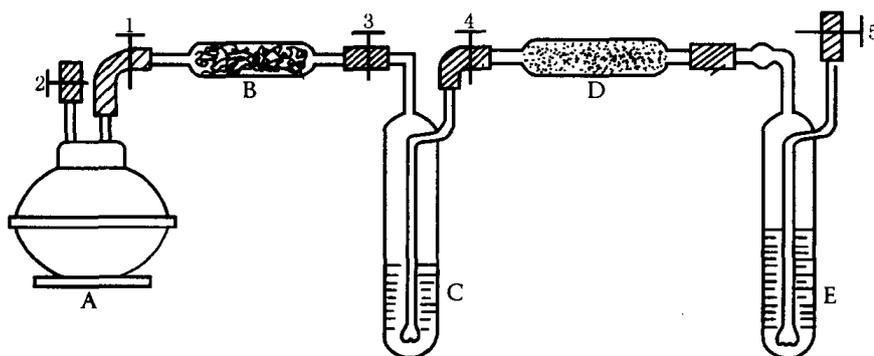


图 3.13 射气法测 ^{226}Ra 装置示意图

A——闪烁室;B—— CaCl_2 干燥管;C——镭标准源;D——活性炭管;E—— BaCl_2 饱和溶液

取适量澄清水样,近沸下加入适量钡载体溶液和 H_2SO_4 ,在 $\text{pH} \approx 2$ 条件下加热煮沸生成沉淀,冷却 4h 后弃去上清液,加入适量碱性 EDTA-2Na,加热溶解沉淀,溶液转入扩散器中,封闭积累氡。以上述同样方法将氡转入闪烁室后进行测量。

水样中 ^{226}Ra 的活度按下式计算:

$$C = \left[\frac{K(\bar{n} - n_0)}{Y(1 - e^{-\lambda t})} - C_b \right] / V \quad (3 \cdot 45)$$

式中,

C ——水样中 ^{226}Ra 的浓度, $Bq \cdot L^{-1}$;

K ——闪烁室的 K 值, $Bq \cdot s$;

C_b ——试剂空白的 ^{226}Ra 值, Bq ;

Y ——方法回收率, %;

V ——分析水样体积, L 。

刻度闪烁室所用镭标准源,应与分析水样中镭的活度基本相当。样品测量完毕后,应立即排除闪烁室中的氡,并用无氡气体或氮气冲洗,以降低闪烁室本底。

2) 水中镭的 α 活度测量 用氢氧化铁-碳酸钡载体共沉淀浓集水中的镭。沉淀物以

HNO₃ 溶解后,在柠檬酸存在的条件下以硫酸铅钡载体共沉淀镭,以分离其它放射性核素。沉淀物用 HNO₃ 洗涤后,溶于碱性 EDTA-2Na 溶液中,加冰醋酸重新沉淀硫酸钡(镭)以分离铅。将沉淀物铺样,干燥后用低本底 α 探测装置测量样品中各种镭同位素(²²⁴Ra、²²⁶Ra 和 ²²³Ra)的总 α 活度。

本方法适用于地面水、地下水和铀矿冶废水中镭的测定,最低检测限为 $8 \times 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

镭含量较低的水样取 5.0~10.0L,搅拌条件下先后加入适量铁钙混合载体及碳酸钠溶液,沉淀物静止澄清并与清液分离后,用适量 HNO₃ (2:1)使之溶解,过滤,滤液中先后加适量柠檬酸溶液、硝酸铅和硝酸钡载体溶液,用 NH₄OH(1:1)调 pH=8,加热至沸,搅拌滴加 H₂SO₄(1:1)使生成铅钡镭共沉淀。

镭含量较高的水取 1.0L 或更少,加适量浓 HNO₃ 和柠檬酸,用 NH₄OH(1:1)调至碱性,加入适量硝酸铅和硝酸钡载体溶液,加热至沸,加入适量甲基橙指示剂,搅拌滴加 H₂SO₄(1:1)至溶液呈粉红色,使生成铅钡镭沉淀。

经离心分离后的铅钡镭沉淀用适量 HNO₃ (2:1)及水洗涤后,用碱性 EDTA-2Na 溶液溶解,加入冰醋酸重新生成硫酸钡沉淀,记下时间。沉淀经离心分离后抽滤铺样,烘干冷却后,测其 α 活度,记下测量结束时间。

水样中镭同位素的总 α 活度按下式计算:

$$C = (n_t - n_b) / \eta VF \quad (3 \cdot 46)$$

式中,

- n_t ——水样加本底计数率, s^{-1} ;
- n_b ——仪器和试剂本底计数率, s^{-1} ;
- η ——方法测定效率, $s^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$;
- F ——重新沉淀硫酸钡至测量完毕之

间²²⁶Ra 子体增长系数(表 3.9)。

其余符号意义同式(3.45)。

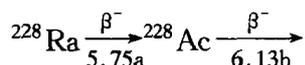
在样品中²²³Ra、²²⁴Ra 和²²⁶Ra 活度比例不清楚时,可按²²⁶Ra 当量表示,并用表3.9的修正系数值对其子体的增长作修正。

表 3.9 ²²⁶Ra 子体 α 活度随时间的增长

时 间(h)	修正系数 F
0	1.0000
1	1.0160
2	1.0363
3	1.0580
4	1.0798
5	1.1021
6	1.1238
24	1.4892
48	1.9054
72	2.2535

如需求得镭同位素的具体含量,可同时采用射气法测得²²⁶Ra 的活度,根据自然界中²²³Ra与²²⁶Ra 的活度比求得²²³Ra 的活度,从总活度中减去²²⁶Ra 及²²³Ra 的活度,即为²²⁴Ra 的活度。

3) ²²⁸Ra 的测定 ²²⁸Ra 与其子体²²⁸Ac 存在如下的放射平衡关系:



因此,将²²⁸Ac 分离后测定其 β 活度,根据久期平衡,可求得样品中²²⁸Ra 的活度。本方法的可探测限为 $0.2 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

3.6.1.4 钋的分析

(1) 概述 钋有 27 种同位素和 8 种同质异能素,其中最重要的²¹⁰Po 属铀系子体,经 α 衰变生成稳定的²⁰⁶Pb。

钋属于周期表中第 6 周期ⅥA 族元素,化学性质与碲类似,是典型的两性元素。在水溶液中能以 Po^{2+} 、 Po^{4+} 、 PoO_2^{2-} 、 PoO_2^+ 和 PoO_4^{2-} 等形式存在,其中以 Po^{4+} 最为稳定。

Po^{4+} 在 $\text{pH} \geq 6$ 时会水解而生成 $\text{PoO}(\text{OH})_2$ 沉淀,易吸附在杂质颗粒和玻璃器皿上,因此,应在浓度大于 $2\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的酸溶液中进行钋的操作,以避免水解和吸附。

Po^{4+} 在酸溶液中通常是稳定的;但可被 H_2S 、 SO_2 、 N_2H_4 和 As_2O_3 等还原成三价。 Po^{4+} 在 HNO_3 介质中可因歧化反应而生成 Po^{2+} 和 PoO_2^+ ,也可氧化成 PoO_2^+ 。

在 $9\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的 HNO_3 介质中, Po^{4+} 可生成 $[\text{Po}(\text{NO}_3)_6]^{2-}$ 络阴离子,这一特性已用于柱色谱法从堆照铀靶中提取²¹⁰Po。 Po^{4+} 还可生成 $\text{M}_2[\text{PoCl}_6]$ 络合物(M 为碱金属或 NH_4^+ 等一价阳离子),能与 Pb^{4+} 和 Pt^{4+} 等相应络合物形成同晶共沉淀,可用于微量钋的分离和浓集。

钋还能与 TTA、TBP、EDTA、双硫脲和柠檬酸等有机试剂形成络合物,常用于钋的萃取分离和表面去污。

(2) 分析方法 在 $0.5\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的 HCl 溶液中,温度为 $75 \sim 80^\circ\text{C}$ 的条件下, Po^{4+} 可定量沉积在银片上,用低本底 α 测量仪测量 α 活度。自沉积法测量²¹⁰Po 的最低探测限为 $3.4 \times 10^{-4}\text{Bq}$ 。

取水样 5~10L,用 HCl 调节 $\text{pH}=2$,静置 12h 后,加入 FeCl_3 及 NaOH 进行共沉淀。用 HCl 溶解沉淀,最终体积为 100mL, HCl 浓度为 $0.5\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

取 1.000g 烘干土壤样品,用适量浓 HCl 重复浸取 2 次,调节为 100mL 的 HCl 浓度为 $0.5\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的溶液。

取 2~4g 干生物样品,用浓 HCl 浸取 12h 后,加适量固体 NH_4F 、 H_2O_2 、 $\text{HNO}_3 - \text{HClO}_4$ 混合酸驱尽氮氧化物、破坏有机质,用 $1\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的 HCl 及水稀释成 100mL 溶液。

空气过滤样品中加入适量浓 H_2SO_4 后炭化,加适量 H_2O_2 使溶液变白,蒸至近干后用 $0.5\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的 HCl 稀释成 100mL 溶液。

各类样品制成的溶液中加入适量固体抗坏血酸使 Fe^{3+} 的黄色消失,在电动搅拌器及 80°C 水浴上使²¹⁰Po 沉积在已处理好的银片上,依次用水和乙醇将银片冲洗至无酸性,室温晾干后在低本底 α 测量仪上进行双面测量。

水中²¹⁰Po 含量按下式计算:

$$A = \frac{n}{\eta Y V \cdot e^{-\lambda t}} \quad (3 \cdot 47)$$

式中,

A——水样中²¹⁰Po 的浓度, $\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$;

n——样品净计数率, s^{-1} ;

η——仪器探测效率, $\text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$;

Y——²¹⁰Po 的化学回收率, %;

V——分析用水样体积, L;

λ——²¹⁰Po 的衰变常数, $5.01 \times 10^{-3}\text{d}^{-1}$;

t ——采样至测量结束的时间间隔, d。

土壤、生物及空气过滤样品可按类似的公式计算其 ^{210}Po 的活度。

3.6.2 裂变产物核素的放射化学分析

3.6.2.1 铯的分析

(1) 概述 铯有 21 种同位素, 即 $^{78}\text{Sr} \sim ^{98}\text{Sr}$, 其中 ^{84}Sr 、 ^{86}Sr 、 ^{87}Sr 、 ^{88}Sr 为稳定同位素, 其余均为放射性同位素, 其中重要的有 ^{85}Sr 、 ^{89}Sr 和 ^{90}Sr 。 ^{90}Sr 因其半衰期长(28.1a), 其子体 ^{90}Y 的 β^- 射线能量高($E_{\beta, \max} = 2.279\text{MeV}$), 在环境监测中应予以足够的关注。

铯在周期表中属第 5 周期 II A 族, 为碱土金属。

环境样品中铯的分析方法有发烟硝酸法、离子交换法和萃取色谱法等。

(2) 萃取色谱法 样品中 ^{90}Sr 活度可根据与其处于放射性平衡的子体 ^{90}Y 的 β 活度确定, 样品经前处理后通过涂有二-(2-乙基己基)磷酸(简称 HDEHP)的聚三氟氯乙烯(简称 Kel-F) 色层柱吸附铯, 使铯与锶、钡离子分离, 再用 HNO_3 淋洗色层柱, 消除铈、钷等稀土离子, 以 HNO_3 解吸铯, 使成草酸铯沉淀, 进行 β 活度测量。可将样品溶液调至 $\text{pH} = 1.0$ 后通过色层柱, 将铯及稀土离子吸附在柱上, 含铯离子的流出液放置 14d 以上, 使 ^{90}Y 与 ^{90}Sr 达到平衡后按上述条件再次通过色层柱, 分离和测定 ^{90}Y 。

本方法适用于水样、生物样品灰和土壤中 ^{90}Sr 的分析, 其测定范围分别为 $10^{-2} \sim 10 \text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$ 、 $10^{-1} \sim 10 \text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ 和 $0.26 \sim 318 \text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。

适量 60~100 目 Kel-F 粉中, 加入适量的 HDEHP-正庚烷溶液, 反复搅拌, 放置 10h 以上。80℃ 下烘至松散状, 用 $0.1 \text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的 HNO_3 湿法装柱备用。

取水样适量, 以浓 HCl 调至 $\text{pH} = 1$, 加入适量铯载体及钷载体溶液, 加热至 50℃, 用 NH_4OH 调 $\text{pH} = 8 \sim 9$, 搅拌加入适量碳酸铵, 加热近沸使沉淀凝聚, 冷却放置 10h 以上。沉淀用 $6 \text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的 HNO_3 溶解, 调 $\text{pH} = 1$ 后备用。

生物样品灰中加入适量铯载体和钷载体溶液, 浓 HNO_3 及 H_2O_2 , 蒸干后用适量的 HCl (1:5) 加热浸取 2 次, 用稀的 HCl 洗涤, 浸取液及洗涤液合并离心, 清液中加入适量草酸, 调 $\text{pH} = 3$, 水浴加热以形成沉淀, 沉淀过滤、烘干、炭化后在马弗炉中灼烧 1h, 以 HNO_3 使之溶解, 滤除不溶物后备用。

取适量小于 100 目的土壤样品, 加入铯载体和钷载体, 混匀烘干后, 与铯载体及适量的 HCl 混合煮沸 1h, 冷却后离心, 残渣用 HCl 洗涤, 离心后清液与洗涤液合并, 加入适量草酸, 加热溶解后用 NaOH 调 $\text{pH} = 3$, 沸水浴上加热搅拌, 使生成白色沉淀。沉淀过滤后在马弗炉中灼烧 1h(800℃), 冷却后用 HNO_3 使其溶解, 加入适量 H_2O_2 , 加热而生成无色透明液体。加入适量氢氟酸破坏硅酸盐后, 加入适量 Na_2S 溶液生成硫化铯沉淀, 滤除沉淀后的滤液加热微沸, 冷却后用水稀释至体积 90~100mL 备用。

各类样品的制备液流经 HDEHP-Kel-F 色层柱进行铯、钷分离(取其中间时刻为分离时刻)。以适量 HNO_3 (1:9) 洗涤色谱柱, 两次溶液合并备用。

用适量 $6 \text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的 HNO_3 淋洗色层柱, 以解吸钷, 解吸液中加入适量饱和草酸溶液, 加 NH_4OH 调 $\text{pH} = 1.5 \sim 2.0$, 水浴加热生成沉淀, 冷却后过滤, 沉淀物洗涤后固定于测量盘上, 烘干后在低本底 β 测量仪上测 ^{90}Y 的 β 活度(记下测量过程中间时刻)。测量后样品烘干

恒重,计算钇的化学回收率。

上述铯钇分离后的保留液调 pH=1 后再次通过色谱柱,并用适量的 HNO₃ 洗柱,合并后的溶液中加入适量钇载体,取少量液体在原子吸收分光光度计测铯含量,计算铯的化学回收率。剩余溶液放置 14d,使钇生长并与铯达到平衡,以同样方法进行铯钇分离,生成草酸钇沉淀后测⁹⁰Y 的 β 活度。

水样中⁹⁰Sr 的含量按下式计算:

$$A = \frac{n}{\eta V Y_{Sr} Y_Y (1 - e^{-\lambda t_1}) e^{-\lambda(t_3 - t_2)}} \quad (3 \cdot 48)$$

式中,

A——水中⁹⁰Sr 的浓度, Bq·L⁻¹;

n——样品源中⁹⁰Y 的净计数率, s⁻¹;

η——仪器对⁹⁰Y 的探测效率, s⁻¹·Bq⁻¹;

V——分析用水样体积, L;

Y_{Sr}——铯的化学回收率, %;

Y_Y——钇的化学回收率, %;

t₁——⁹⁰Y 的生长时间, h;

t₂——铯钇分离时刻, h;

t₃——⁹⁰Y 测量过程中间时刻, h;

λ——⁹⁰Y 衰变常数, 0.0114h⁻¹。

按类似的公式,可计算生物样品灰及土壤样品中⁹⁰Sr 的含量。

样品中铯含量超过 1mg 时,计算 Y_{Sr}时应予扣除。草酸钇沉淀应在 45~50℃ 温度下烘干,确保其结晶水数恒定[Y₂(C₂O₄)₃·9H₂O]。

3·6·2·2 铯的分析

(1) 概述 铯有 31 种同位素,即¹¹⁶Cs~¹⁴⁶Cs,其中¹³³Cs 是天然稳定同位素,其余均为放射性核素。其中最重要的是¹³⁷Cs,其半衰期为 30.17a, E_{β,max} 为 0.514MeV (93.5%) 和 1.176MeV (6.5%),其子体¹³⁷Ba^m 的 γ 射线能量为 0.662MeV。

铯属周期表中第六周期 I A 族,为碱金属,化学性质异常活泼。

铯也可生成一些难溶化合物,如与亚铁氰化盐生成亚铁氰化铯复式沉淀,与氢碘酸及碘化铯生成碘铯酸铯沉淀。铯也可与无机离子交换剂发生交换作用。

(2) 磷钼酸铵-碘铯酸铯法 在硝酸介质中,用磷钼酸铵(AMP)静态吸附分离铯,用 NaOH 溶液溶解后,在柠檬酸和乙酸介质中以碘铯酸铯沉淀形式分离纯化铯,在低本底 β 测量装置上测其 β 活度。

本方法对水和生物样品的最低探测限分别为 3.7×10⁻³Bq·L⁻¹ 和 3.7×10⁻²Bq·kg⁻¹。

取水样适量,用 HNO₃ 调 pH<3,加入适量铯载体溶液及 AMP 粉,搅拌 30min 后澄清 4h 以上。沉淀过滤后用 NaOH 溶解,抽滤后溶液适当稀释,加入适量固体柠檬酸,溶解后加适量浓 HNO₃ 备用。

生物样品灰用水润湿后,加适量铯载体溶液,滴加适量浓 HNO₃ 和 H₂O₂,砂浴上蒸干,置马弗炉内 450℃ 下灰化 0.5h,冷却后用 10% 的 HNO₃ 加热浸取,过滤液备用。

取适量烘干研细的土壤样品,450℃下灰化 1h,冷却后加适量铯载体及 HCl - HF 混合酸,煮沸过滤,用 5% HCl 洗涤残渣,洗液与滤液合并备用。

各类样品的制备液中加入 1g AMP,搅拌 0.5h 后抽滤,并用 NH₄NO₃ - HNO₃ 混合液洗沉淀。用 2mol·L⁻¹NaOH 使其溶解,抽滤,用水洗残渣,洗液与滤液合并,加入适量柠檬酸溶液,蒸至 5~8mL,冷却后置于冰水浴上,加适量冰醋酸和碘铋酸钠溶液,搅拌生成碘铋酸铯沉淀。冰水浴上放置 10min 后过滤,用冰醋酸和乙醇洗涤。沉淀在 110℃ 下烘干至恒重 (Cs₃Bi₂I₉),计算铯的化学回收率,并制源测量其 β 活度。

水样中¹³⁷Cs 含量按下式计算:

$$A = \frac{n}{\eta V Y} \quad (3 \cdot 49)$$

式中,

A——水中¹³⁷Cs 的浓度, Bq·L⁻¹;

n——样品源中¹³⁷Cs 的净计数率, s⁻¹;

η——仪器探测效率, s⁻¹·Bq⁻¹;

V——分析用水样体积, L;

Y——铯的化学回收率, %。

按类似的公式可计算生物样品灰和土壤中¹³⁷Cs 的活度。

当样品存在¹³⁴Cs、¹³⁶Cs 和¹³⁸Cs 时,可用低本底 γ 谱仪测¹³⁷Cs 子体¹³⁷Ba^m 的特征 γ 峰 (661keV) 以计算¹³⁷Cs 的活度,并可同时测定铯的其它 γ 放射性同位素的浓度。

3·6·2·3 碘的分析

(1) 概述 碘有 27 种同位素,即¹¹⁵I~¹⁴¹I,其中¹²⁷I 是唯一的稳定同位素,¹³¹I、¹²⁹I 和¹²⁵I 是最重要的放射性碘同位素。

¹³¹I 是产额较高的裂变产物核素,半衰期较短 (8.04d),易挥发逸散,是核爆炸后环境监测中的信号核素,也是核设施重要的监督核素。

¹²⁵I 在核医学中有广泛的应用,因此,在环境辐射监测中也应有足够的重视。

碘属周期表中第五周期 VIIA 族,为卤族元素。单质碘易升华,碘在溶液中可同时以 -1、+1、+3、+5、+7 价态存在。采用合适的氧化剂或还原剂,可使碘转化为某种特定的化学形态。如单质碘 I₂ 可被 HNO₃ 或氯气 (Cl₂) 氧化为碘酸 (HIO₃),可被 HSO₃⁻ 还原为 I⁻。I⁻ 又可被 Cl₂ 或 O₂ 氧化为单质碘。I₂ 易溶于 HI 及碘化物溶液中,形成 I₃⁻ 络阴离子。

(2) 空气中碘的测定 空气中的¹³¹I 常以多种形态存在,主要有元素碘 I₂、有机碘 (如 CH₃I)、次碘酸 HIO、碘酸 HIO₃ 及微粒碘等。空气采样应能同时收集各种形态的碘,并可将其分开。因此,空气碘采样器的收集介质由玻璃纤维滤纸 (收集微粒碘)、活性炭滤纸 (收集元素碘及非元素无机碘) 及核级浸渍活性炭滤筒 (收集有机碘) 组成。用低本底 γ 谱仪测量样品中¹³¹I 的 0.365MeV 的特征 γ 射线。

在合适的气流面速度条件下,相对湿度 0~100% 范围内,玻璃纤维滤纸对微粒碘的收集效率接近 100%,活性炭滤纸对元素碘的收集效率为 95%~99%,浸渍活性炭滤筒对有机碘的收集效率与滤层厚度有关,可采用刻度计数效率 η_{cou} 及收集效率 η_{col} 的乘积进行计算。

用低本底 γ 谱仪分别测量玻璃纤维滤纸、活性炭滤纸和滤筒中¹³¹I 的 0.365MeV 特征 γ 射线的净计数,按下式分别求得空气中¹³¹I 的微粒碘、无机碘和有机碘的浓度:

$$A = 1.667 \times 10^{-2} \frac{N_S \lambda^2}{\eta_{\text{col}} \eta_{\text{col}} f \bar{q} (1 - e^{-\lambda t_1}) e^{-\lambda t_2} (1 - e^{-\lambda t_3})} \quad (3 \cdot 50)$$

式中,

A ——空气中不同状态的 ^{131}I 的浓度, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;

N_S ——计数时间内样品的净计数;

λ —— ^{131}I 衰变常数, $5.987 \times 10^{-5} \text{min}^{-1}$;

f —— 0.365MeV γ 射线的分支比, 0.81 ;

\bar{q} ——平均取样流量, $\text{m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$;

t_1 ——取样时间, min ;

t_2 ——取样结束至开始计数的时间, min ;

t_3 ——计数时间, min 。

(3) 水和生物样品中 ^{131}I 和 ^{125}I 的分析 样品经前处理后,将 I^- 氧化为 I_2 ,用 CCl_4 萃取纯化,水反萃后形成碘化银沉淀制源,先用低本底 β 测量装置或低本底 γ 谱仪测量 ^{131}I 的活度,再用 $\text{NaI}(\text{Tl})$ X射线谱仪测量 ^{125}I 的活度。 ^{131}I 的 β 探测最低检测限对水、植物、动物甲状腺和牛奶分别为 $3.0 \times 10^{-3} \text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$ 、 $1.7 \times 10^{-1} \text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ 、 $6.0 \times 10^{-2} \text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ 和 $1.8 \times 10^{-2} \text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$ 。 γ 测量的最低检测限对水、植物和甲状腺分别为 $4.0 \times 10^{-3} \text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$ 、 $1.0 \times 10^{-2} \text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $8.0 \times 10^{-3} \text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ 。水中 ^{125}I 的最低检测限为 $2.1 \times 10^{-2} \text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

取适量澄清水样,调 $\text{pH}=6.5 \sim 7.0$,加适量碘载体后通过 Cl 型阴离子交换树脂柱,用水洗柱后以适量次氯酸铵溶液解吸碘,解吸液备用。

取适量植物或动物甲状腺样品,加入适量碘载体和 $\text{NaOH}-\text{KOH}$ 混合溶液,搅匀后在电炉上蒸干, 450°C 马弗炉内灰化 1h ,冷却后用 H_2O_2 润湿,蒸干,再灰化 0.5h ,必要时可重复用 H_2O_2 处理,直至灰样呈白色,用水浸取并离心分离 3 次,清液备用。

取适量牛奶加适量碘载体,搅拌 10min 后加适量阴离子交换树脂,搅拌后静置,再加等量树脂重复上述操作,两次树脂合并水洗后,加入适量 $\text{HNO}_3(1:1)$,沸水浴上加热 1h ,冷后弃去酸液,水洗后放置 3h ,树脂中加适量次氯酸钠,搅拌解吸碘(重复一次),树脂水洗 2 次,解吸液与水洗液合并备用。

各类样品的制备液中加入适量 CCl_4 ,水和牛奶样品中加适量盐酸羟胺溶液,植物和甲状腺样品中加适量亚硝酸钠,滴加浓 HNO_3 调 $\text{pH}=1.0$,重复萃取 3 次。萃取有机相用水洗涤一次后,加入等体积水,摇动下滴加 5% 的亚硫酸氢钠至溶液无色,振荡反萃。水相加热微沸,透明后冷却,加浓 HNO_3 至呈金黄色,加入适量 1% 硝酸银溶液,搅拌、加热到微沸,生成沉淀后冷至室温。沉淀过滤后,用水和乙醇洗涤, 110°C 烘干,称重,计算碘的化学回收率。沉淀封装在塑料薄膜中,分别测量 ^{131}I 的 β 计数率、 γ 计数率和 ^{125}I 的计数率。

水和牛奶样品中 ^{131}I 的 β 活度按下式计算:

$$A = \frac{n}{E V Y e^{-\lambda t}} \quad (3 \cdot 51)$$

式中,

A ——样品中 ^{131}I 的 β 活度浓度, $\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$;

n ——样品源净计数率, s^{-1} ;

E ——自吸收系数;

V ——分析中样品体积, L;

Y —— ^{131}I 的化学回收率, %;

t ——采样至测量之间时间间隔, h;

λ —— ^{131}I 衰变常数, $3.59 \times 10^{-3} \text{h}^{-1}$ 。

用类似的公式可计算植物和甲状腺样品中 ^{131}I 的 β 活度。

水和牛奶中 ^{131}I 的 γ 活度按下式计算:

$$A = \frac{n}{\eta V Y K e^{-\lambda t}} \quad (3 \cdot 52)$$

式中,

K ——0.365MeV γ 全能峰的分支比;

η ——探测效率, $\text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$ 。

其余符号含义同式(3·51)。

用类似的公式可计算植物和甲状腺样品中 ^{131}I 的 γ 活度。

水和牛奶中 ^{125}I 活度按下式计算:

$$A = \frac{n \text{ } ^{131}\text{I} + \text{ } ^{125}\text{I} - n \text{ } ^{131}\text{I}}{1.46 \eta V Y e^{-\lambda t}} \quad (3 \cdot 53)$$

式中,

$n \text{ } ^{131}\text{I} + \text{ } ^{125}\text{I}$ ——样品源中 ^{131}I 和 ^{125}I 在 X 射线峰内的净计数率, s^{-1} ;

$n \text{ } ^{131}\text{I}$ ——样品源中 ^{131}I 在 X 射线峰内的净计数率, s^{-1} ;

1.46—— ^{125}I 一次衰变产生 γ 光子和 X 射线的总和;

η ——对 ^{125}I 的 X 射线峰的探测效率, $\text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$;

λ —— ^{125}I 的衰变常数, $4.80 \times 10^{-4} \text{h}^{-1}$ 。

其余符号含义同式(3·51)。

用类似的公式可计算植物和甲状腺样品中 ^{131}I 的含量。

动物甲状腺必须测定稳定碘含量, 计算化学回收率时应予以扣除, 否则会使回收率数值偏高。

3·6·3 超铀元素的放射化学分析

3·6·3·1 钚的分析

(1) 概述 钚共有 15 种同位素, 即 $^{232}\text{Pu} \sim ^{246}\text{Pu}$, 其中最重要的是 ^{238}Pu 和 ^{239}Pu 。

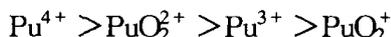
钚在水溶液中可以 Pu^{3+} 、 Pu^{4+} 、 PuO_2^+ 、 PuO_2^{2+} 和 PuO_3^{-} 等 5 种形态存在, 其中以 Pu^{4+} 最为稳定。

Pu^{4+} 在水溶液会发生歧化反应:



由此可见, Pu^{4+} 在酸性条件下更为稳定。

不同形态的钚在水中发生水解的能力为



Pu^{4+} 在 $\text{pH} > 1$ 时即发生水解,因此钚的稀释必须在 $\text{pH} < 1$ 的条件下进行操作。

钚的基准化合物为 $\text{Pu}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 。

(2) 分析方法 在 $\text{pH} > 9$ 的条件下,生成氢氧化镁-氢氧化钙沉淀浓集大体积环境水样中的钚,用 HNO_3 溶解沉淀物制成样品溶液;土壤样品以浸取法或全溶解法制成溶液。液样经还原、氧化,使钚以 $[\text{Pu}(\text{NO}_3)_5]^-$ 或 $[\text{Pu}(\text{NO}_3)_6]^{2-}$ 阴离子状态吸附在三正辛胺(TOA)-聚三氟氯乙烯(Kel-F)色谱柱上,洗涤后用 $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 - \text{HNO}_3$ 混合液洗脱钚,电沉积制源,在低本底 α 计数器或 α 谱仪上测定钚。

本方法对水中钚的全程回收率为 69%~82%,土壤为 74%~77%;对水样的最低检测限为 $1 \times 10^{-5} \text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$,土壤为 $1.5 \times 10^{-5} \text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ 。

取适量澄清水样,加入适量浓 NH_4OH 、 CaCl_2 和 $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$,溶解后加浓 NH_4OH 调 $\text{pH} = 9 \sim 10$,搅拌 1.5h 后静置 1d。沉淀离心后用少量水洗涤,用 $\text{HNO}_3(1:1)$ 溶解,过滤,滤液备用。

取适量土壤样品,加入适量 $\text{HNO}_3(1:1)$,搅匀后加热煮沸(防止崩溅或溢出),冷却后离心,保留清液,沉渣重复用 HNO_3 加热浸取一次,两次清液合并。继续用适量 HNO_3 和水依次洗涤残渣,洗液并入浸取液备用。

土壤中的钚也可用硫酸-高氯酸-硝酸-氢氟酸-盐酸溶解法提取。

水或土壤制备液中加入适量氨基磺酸亚铁使钚还原,放置 5~10min 后再加适量 $4 \text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的 NaNO_2 使其氧化,放置 5~10min(此时钚以 Pu^{4+} 形态存在于溶液中),加热煮沸(分解过量的 NaNO_2),冷却后用 HNO_3 将浓度调至 $6 \sim 8 \text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$,以适当的流速通过 TOA-Kel-F 色谱柱(图 3.14),依次用 HCl 和 HNO_3 洗涤色谱柱后,用适量 $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 - \text{HNO}_3$ 混合液洗脱钚,洗脱液收集于电沉积槽中(图 3.15),用 $\text{NH}_4\text{OH}(1:1)$ 调 $\text{pH} = 1.5 \sim 2.0$,将沉积槽置于流动的冷水浴中,调节极间距为 4~5mm,电流密度为 $500 \sim 800 \text{mA} \cdot \text{cm}^{-2}$,电沉积 1h,加入 1mL 浓 NH_4OH 后再电沉积 1min,切断电源,依次用水和乙醇洗涤电沉积源,红外灯下烘干后在低本底 α 计数器或 α 谱仪上测量钚的 α 活度。

水中钚的含量按下式计算:

$$A = \frac{n}{\eta Y V} \quad (3 \cdot 54)$$

式中,

A ——样品中 $^{239,240}\text{Pu}$ 的浓度, $\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$;

n ——电沉积源的净计数率, s^{-1} ;

η ——仪器对钚的探测效率, $\text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$;

Y ——钚的全程放射化学回收率, %;

V ——分析用水样体积, L。

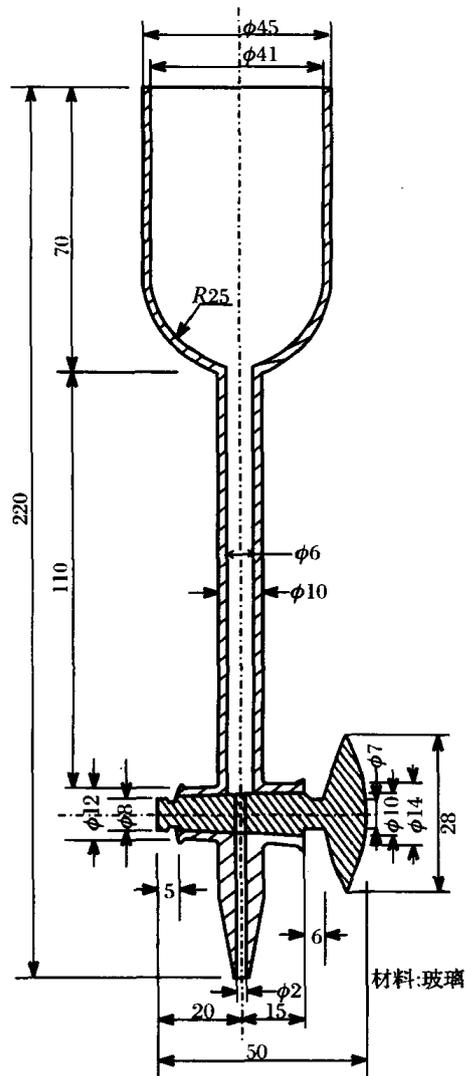


图 3.14 萃取杯的 TOA-Kel-F 色谱柱

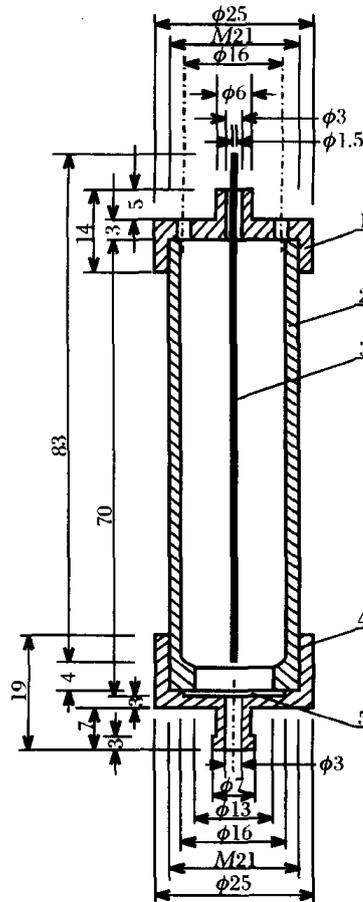


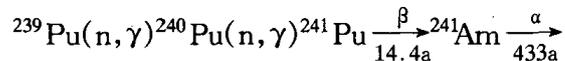
图 3.15 电沉积槽

用类似的公式可计算土壤样品中钷的含量。

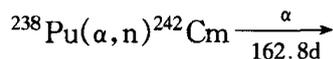
每批样品分析时,均应测定试剂空白及全程放射化学回收率。

3.6.3.2 镅和锔的分析

(1) 概述 镅和锔均为超钷元素。钷在中子照射下转变为镅:



^{238}Pu 在 α 粒子轰击下生成锔:



镅共有 13 种同位素和 2 种同质异能素,其中最重要的是 ^{241}Am 和 ^{243}Am 。锔有 14 种同位素,最重要的是 ^{242}Cm 和 ^{244}Cm 。

镅在水溶液中可以 +2~+7 六种价态存在,以 Am(III) 最为稳定。Am(IV) 和 Am(V)

在水溶液中很不稳定,会因歧化反应而生成 AmO_2^{2+} 和 Am^{4+} ,并进一步反应生成 Am^{3+} 。

镅盐以 $\text{Am}(\text{III})$ 盐为最常见,其中 AmF_3 、 $\text{Am}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Am}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ 及 $\text{K}_8\text{Am}_2(\text{SO}_4)_7$,为难溶性镅盐,放化分析中生成这类镅盐可使镅得以分离纯化。

$\text{Am}(\text{III})$ 可与 Cl^- 、 NO_3^- 和 SCN^- 等阴离子生成无机络合物,也可与 TTA、PMBP 等有机试剂生成螯合物,与 TIOA、TBP 等生成疏水性络合物。

镅在水溶液中有 +3 和 +4 两种价态,也以 +3 价为最稳定,其难溶性盐有 CmPO_4 、 CmF_3 、 $\text{Cm}_2(\text{CO}_3)_3$ 和 $\text{Cm}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ 等。

镅与 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 和 $\text{C}_2\text{O}_4^{2-}$ 生成的络合物不如镅络合物稳定,但与 EDTA、乳酸等有机物生成的络合物比镅更为稳定。 Cm^{3+} 与 TTA 和 PMBP 生成的螯合物可用于 Cm^{3+} 的萃取分离。

(2) 空气和土壤中 ^{241}Am 和 ^{242}Am 的测定 空气过滤样和土壤样品经前处理制成溶液,在 Ag^+ 的催化作用下用过硫酸铵将 $\text{Am}(\text{III})$ 氧化成 $\text{Am}(\text{VI})$,在弱酸溶液中用 PMBP-TOPO-环己烷协同萃取分离。用肼将 $\text{Am}(\text{VI})$ 被萃取剂还原而生成的 $\text{Am}(\text{V})$ 进一步还原为 $\text{Am}(\text{III})$,并用萃取法进一步纯化。纯化后的 Cm 和 Am 经电沉积制源,用低本底 α 计数器或 α 谱仪测量。

本方法对空气的最低检测限为 $9.2 \times 10^{-8} \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$,土壤为 $3.3 \times 10^{-4} \text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ 。

用适量浓 H_2SO_4 加热溶解空气过滤样品,滴加 30% H_2O_2 至溶液无色透明后蒸干,冷却后反复用适量浓 HNO_3 及 H_2O_2 加热蒸干,生成白色灰盐备用。

取适量土壤样品,加入适量 HNO_3 在沸水浴上加热 10min,冷却后离心,残渣重复上述处理一次后,合并上清液,加入适量 PMBP-环己烷溶液萃取,萃余液再用适量 HDEHP- P_2O_5 -环己烷溶液萃取一次,合并两次有机相,用环己烷稀释 1 倍后,用 $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ 反萃。蒸干反萃液,用浓 HNO_3 和 H_2O_2 处理至有机物完全分解后备用。

空气或土壤样品的制备干渣用新制备的 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8 - \text{AgNO}_3 - \text{HNO}_3$ 溶液溶解,沸水浴上加热,使 $\text{Am}(\text{III})$ 氧化,在冰浴中冷却后,用等体积 PMBP-TOPO-环己烷萃取,有机相(含镅组分)及水相(含镅组分)分别保留。

上述有机相用适量 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8 - \text{AgNO}_3 - \text{HNO}_3$ 溶液洗涤,洗涤液与上述萃余水相合并,加入适量的 $\text{N}_2\text{H}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$,沸水浴加热 0.5h,使 $\text{Am}(\text{V})$ 还原成 $\text{Am}(\text{III})$,冷却后以等体积 PMBP-TOPO-环己烷萃取,有机相用适量的 HNO_3 洗一次,加 1mL 环己烷后,用等体积的 HNO_3 反萃,反萃液蒸干,电沉积制备镅样品源。

含镅组分的有机相加适量苯后,用 HNO_3 反萃,反萃后水相用适量 HDEHP-甲苯溶液萃取一次,萃余水相蒸干后,用浓 HNO_3 和 H_2O_2 处理至有机物完全分解,电沉积制备镅样品源。

含镅和镅的沉淀制备物分别用适量的 $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 - \text{HNO}_3$ 混合液分数次溶解转入电沉积槽中,用 NH_4OH 调节 $\text{pH}=2$,在电流密度为 $191 \sim 223 \text{mA} \cdot \text{cm}^{-2}$ 的条件下电沉积 1h,加入适量浓氨水后,切断电源,电沉积源用水和乙醇冲洗、烘干、冷却,分别测量 ^{241}Am 和 ^{242}Cm 的 α 活度。

样品中 ^{241}Am 和 ^{242}Cm 含量的计算参见式(3·54)。

3·6·4 氚的测定

3·6·4·1 空气中氚的测定

空气中氚化水蒸气(HTO)的采样方法有冷冻法、干燥法和鼓泡法。其中干燥法采样条件易于控制,装置简单,HTO蒸汽从干燥剂中蒸馏析出后可直接在低本底液体闪烁谱仪上测量³H的β活度,并具有较低的探测下限。

干燥法采样装置由粒子过滤器,干燥剂吸附器、流量测量控制器、连接部件和抽气泵组成。吸附器内装有6~16目的硅胶或5A分子筛作为干燥剂。在室内距地面1m以上高度处,以适当的空气流量和采样时间抽取空气样品,其中的HTO蒸汽被吸附在干燥剂上,按空气流量和采样时间的乘积计算所采集的空气体积。采样结束后将干燥剂装入塑料袋内密封待用。

将干燥剂装入连接冷凝系统的烧瓶中,加热解析2h,析出的蒸汽经冷凝器后转化为水,并计量其体积。硅胶和分子筛的解析温度分别为180℃和500℃。

取适量冷凝水样注入液闪样品瓶中,按一定比例加入闪烁液,密封后在低本底液闪上测量³H的β活度。

空气中以HTO形式存在的³H含量按下式计算:

$$A = \frac{nV \times 1000}{C \eta d V_m} \quad (3 \cdot 55)$$

式中,

- A——空气中³H(HTO)的浓度, Bq·m⁻³;
- n——测量样品的净计数率, s⁻¹;
- V——解析冷凝水总量, mL;
- V_m——测量用样品液体积, mL;
- C——干燥剂对空气中HTO的采集效率, %;
- η——仪器探测效率, s⁻¹·Bq⁻¹;
- d——干燥剂内HTO的解析效率, %;
- u——采样时空气平均流量, L·min⁻¹;
- t——采样时间, min。

3·6·4·2 水中氚的测定

取100~200mL水样,加入适量固体KMnO₄(或K₂Cr₂O₇)及少量玻璃珠,在蒸馏装置上加热蒸馏(水中有机杂质较多时,蒸馏液应重新蒸馏一次),弃去初始及最终蒸馏液各约10mL,其余收集于磨口塞玻璃容器中待用。

取适量蒸馏液注入液闪样品瓶中,按一定比例加入闪烁液,密封后在低本底液闪上测量³H的β活度。

水中³H含量按下式计算:

$$A = \frac{n \times 1000}{\eta V_m} \quad (3 \cdot 56)$$

式中,

- A——水中³H的浓度, Bq·L⁻¹;

n ——测量样品的净计数率, s^{-1} ;
 η ——仪器探测效率, $s^{-1} \cdot Bq^{-1}$;
 V_m ——测量用样品液体积, ml。

3·7 放射性测量数据的处理

放射性核素的衰变是一种完全独立的随机过程,是无法预期的。因此,任何放射性物质都不存在严格意义上“真正”或“准确”的衰变率,只能采用统计学方法估计一定时间段内最可能发生衰变的原子核数目。而且,一般情况下,环境辐射水平极低,又受到本底辐射的干扰。所以,环境辐射监测中必须采用数理统计方法进行测量数据的误差分析和处理,选择对测量结果的正确表达方法,判定测量仪器或方法的最低可探测限。

3·7·1 数理统计基础知识

3·7·1·1 测量数据的特性及其分布

同一样本中各单个样品的测量结果,以至同一样品的多次重复测量结果,都不可能是完全相同的,具有一定的分散性,但又总有向某一中心值集中的趋势,环境辐射监测数据的分布形式有泊松分布、正态分布及对数正态分布。

(1) 泊松分布 同一样品放射性计数通常呈现泊松分布

$$P(X) = \frac{(\mu)^X}{X!} e^{-\mu} \quad (3 \cdot 57)$$

式中,

$P(X)$ ——计数值 X 的出现概率;

μ ——泊松分布的总体平均值。

当均值 μ 较小时, X 的概率曲线是不对称的,随着 μ 值增大,曲线渐趋对称, $\mu > 16$ 时,即呈正态分布。

泊松分布的总体方差和标准差为

$$\begin{aligned} \sigma^2 &= \mu \\ \sigma &= \sqrt{\mu} \end{aligned} \quad (3 \cdot 58)$$

(2) 正态分布 实验过程中的随机误差通常呈现正态分布,在消除了系统误差的情况下,测量值 X 的出现概率为:

$$P(X) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{X-\mu}{\sigma}\right)^2\right], (-\infty < X < \infty) \quad (3 \cdot 59)$$

总体平均值 μ 及总体标准差 σ 称为正态分布的特征量:

$$\mu = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n X_i \quad (n \rightarrow \infty) \quad (3 \cdot 60)$$

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum (X_i - \mu)^2}{n}} \quad (n \rightarrow \infty) \quad (3 \cdot 61)$$

(3) 对数正态分布 若测量值 X 取对数后呈现正态分布,则称 X 为对数正态分布,相应的 $\lg X$ 的出现概率为

$$P(\lg X) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{\lg X}} \exp\left[-\frac{1}{2}(\lg X - \mu_{\lg X})^2\right], (0 < X < \infty) \quad (3 \cdot 62)$$

此时,将 $\lg X$ 的总体平均值 $\mu_{\lg X}$ 及总体标准差 $\sigma_{\lg X}$ 称为对数正态分布特征量。

(4) 样本特征量和总体特征量 总体特征量是总体固有的分布特性,又称为总体的分布参数,是一常量。由于抽样的随机性,实际的样本特征量随抽取样本的不同而有所变化,其本身也是随机变量,又称为样本的统计量。在测量值 X 呈现正态分布的条件下,样本的平均值以 \bar{X} 表示:

$$\bar{X} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n X_i \quad (3 \cdot 63)$$

样本的标准差以 S 表示:

$$S = \sqrt{\frac{\sum (X_i - \bar{X})^2}{n-1}} \quad (3 \cdot 64)$$

显然,样本平均值 \bar{X} 及样本标准差 S 是根据次数(n)有限的测量数据求得的。

3·7·1·2 样本统计量及其分布

对于正态分布,常用的样本统计量有 \bar{X} 、 S 、 u 、 t 、 χ^2 、 F 等。其中 \bar{X} 和 S 为样本特征量,其余都是为从样本估计总体需要而构造的次级统计量,每种统计量本身也服从某种形式的概率分布规律。

(1) 样本平均值 \bar{X} 的概率分布 从一个总体中随机抽取一个样本(其样本容量为 n),可求得该样本的均数 \bar{X} ,若重复抽取多个固定容量 n 的样本,则可得到多个各不相同的样本均数,形成一个新的样本平均值 \bar{X} 的概率分布。

统计理论表明,若 X 服从 $N(\mu, \sigma^2)$ 正态分布,则 \bar{X} 也近似服从 $N(\mu, \sigma^2/n)$ 正态分布。环境监测中,对于 $n > 30$ 的大样本,无论总体呈现何种分布形式, n 愈大, \bar{X} 愈接近正态分布,其平均值也可近似地按正态分布处理。新的样本均数(\bar{X})分布与总体分布之间的关系是:

① 样本均数 \bar{X} 分布的均数等于总体均数 μ ;

② 样本均数 \bar{X} 分布的标准差 $\sigma_{\bar{X}}$ (又称为样本均数的标准误)为总体标准差 σ 除以 \sqrt{n} 所得之商:

$$\sigma_{\bar{X}} = \frac{\sigma}{\sqrt{n}} \quad (3 \cdot 65)$$

显然,以样本平均值估计被测真值的误差远比一次测量值为小。

(2) 统计量 u 及其分布 如总体服从 $N(\mu, \sigma)$ 正态分布,则样本容量 n 无论多大,其平均值 \bar{X} 亦服从 $N(\mu, \sigma/\sqrt{n})$ 正态分布,可按下式计算其统计量 u :

$$u = \frac{|\bar{X} - \mu|}{\sigma/\sqrt{n}} \quad (3 \cdot 66)$$

u 服从 $N(0, 1)$ 标准正态分布。对于大样本,统计量 u 通常用于检验样本平均值 \bar{X} 等于总体均值 μ 的假设的置信水平,这称为单总体 u 检验,其临界值记为 u_{α} ,相应的 $1 - \alpha$ 称为置信水平。在正态分布函数表上,可查得相应于 α 的 u_{α} 值。

对于两个样本平均值 \bar{X}_1 、 \bar{X}_2 在统计学上是否相等的检验,其统计量为:

$$u = \frac{|\bar{X}_1 - \bar{X}_2|}{\sqrt{\frac{\sigma_1^2}{n_1} + \frac{\sigma_2^2}{n_2}}} \quad (3 \cdot 67)$$

式中, \bar{X}_1 、 n_1 为样本 1 的均值和样本容量; \bar{X}_2 、 n_2 为样本 2 的均值和样本容量, $\sigma_1 = \sigma_2$ 为总体标准差。这种检验称为双总体 u 检验, 其临界值也为 u_α 。

(3) 统计量 t 及其分布 在测定次数有限的环境监测中, 有限次监测值随机误差呈类似于正态分布的 t 分布, 因此, 对一组监测值可按下式计算其统计量 t :

$$t = \frac{|\bar{X} - \mu|}{S_{\bar{X}}} = \frac{|\bar{X} - \mu|}{S/\sqrt{n}} \quad (3 \cdot 68)$$

统计量 t 与置信概率和自由度 $df = n - 1$ 有关, 故又称置信因子, 当 $df \rightarrow \infty$ 时, t 分布曲线即为正态分布曲线, $t = u_\alpha$ 。

对小样本, 单总体 t 检验用于检验 $\bar{X} = \mu$ 的假设的置信水平, 相应于 $1 - \alpha$ 置信水平的临界值记为 t_α ; 双总体 t 检验则可用于检验两个样本均值 $\bar{X}_1 = \bar{X}_2 = \mu$ 的假设的置信水平。

(2) 统计量 χ^2 及其分布 许多情况下, 可对一组监测数据按下式计算其统计量 χ^2 :

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^n \left(\frac{x_i - \bar{X}}{\sigma_i} \right)^2 \quad (3 \cdot 69)$$

式中,

\bar{X} —— n 个测量数据的平均值;

x_i ——第 i 次测量的数值;

σ_i —— x_i 的标准差。

若各 x_i 的 σ_i 相等, 即 $\sigma_i = \sigma_0$ 时, 则有

$$\chi^2 = (n - 1)S^2/\sigma_0^2 \quad (3 \cdot 70)$$

应用 χ^2 分布表可检验在 σ 已知的特定实验中得到的 S 值是否合理, 还可用于检验一组监测值究竟符合何种分布, 其临界值记为 χ_α^2 。

(5) 统计量 F 及其分布 要检验两个总体方差是否一致, 是否属于同一正态分布的总体, 往往进行 F 检验, 其统计量为:

$$F(df_1, df_2) = \frac{S_1^2}{S_2^2} \quad (3 \cdot 71)$$

式中 S_1^2 和 S_2^2 为两个正态分布总体的样本均方差, 且 $S_1^2 > S_2^2$, F 值的大小与 S_1^2 与 S_2^2 计算所用的自由度 df_1 及 df_2 的大小有关, F 检验的临界值记为 F_α 。

3.7.1.3 统计检验

采用统计检验方法对样本参数的分布形式作出合理的判断, 是由样本监测结果推断总体的基础。

(1) 统计假设与其错误 统计检验中, 首先应对受检样本参数的分布形式作出某种假设, 常称为原假设 (H_0), 还应提出另一个备择假设 (H_1)。对样本数据进行统计处理后, 如判定其拒绝原假设 H_0 , 则应进一步判定其是否接受备择假设 H_1 。

环境样本的监测数据是随机的, 对一个样本作出接受或拒绝某一假设的判断总有一定程度的出错可能。如对某一真假设作出拒绝的判断, 称为第一类错误 (拒真), 其概率以 α

表示;反之,对某一伪假设作出接受的判断,则称为第二类错误(存伪),其概率以 β 表示。显然,在制订检验计划时,应力求犯两类错误的概率 α 和 β 都尽可能地小,但这两者是互相矛盾的,要降低拒真概率 α ,存伪概率 β 必然增大。

例如,在同样长的时间内对某一环境样品测得总计数率(包括本底) n_a 及本底计数率 n_b ,则应判断 n_a 至少应比 n_b 大多少,才可判定样品中含有放射性,且误判的概率不超过预计的范围(如 $\alpha = 0.05$)。这时,设样品的净计数率 $n_a - n_b = x$,应是一个服从 $N(0, 1)$ 分布的随机变量,其期望值为 μ_s (即样本放射性真值),标准差为 σ , σ 值是未知的,可以 $\sqrt{n_a + n_b}$ 近似作为其估计值。

这时,提出两个假设:

①原假设 $H_0: \mu_s = 0$ (即样品不含放射性);

②备择假设 $H_1: \mu_s > 0$ (即样品含放射性)。

在 $\mu = 0$ 的概率分布曲线上,可得到相应于 $\alpha = 0.05$ 的临界值 μ_α ,如一次测量值 $x (= n_a - n_b) \leq \mu_\alpha$,则可判定接受原假设 H_0 ($\mu_s = 0$,即样品不含放射性);反之,若一次测量值 $x \geq \mu_\alpha$,则有理由怀疑原假设 H_0 的正确性而予以拒绝,这一判断的拒真错误概率 $\alpha > 0.05$ 。

在上述情况下, μ_α 常作为对监测结果可靠性的判断依据。

(2) 显著性检验与显著性水平 有时,对样本参数的统计检验只提出原假设 H_0 ,而不提出备择假设。当样本某一个统计量值大于相应的临界值时,认为其与原假设 H_0 存在显著性差异,从而否定原假设;当该统计量小于临界值时,则不作出接受原假设的明确判断,而只声明样本与原假设 H_0 没有显著性差异,不能否定原假设。前一种情况下,否定原假设的判断犯拒真错误的概率 α 又称为显著性水平。

显著性检验除用于样本分布形式的检验(吻合性检验,即样本实际分布与假设的分布形式之间差异的显著性水平检验)外,也可用于总体参数在不同样本中的测量值之间差异的显著性检验。

显著性水平通常分为三级:

$\alpha > 0.05$ 差异不显著;

$0.05 \geq \alpha > 0.01$ 差异显著;

$\alpha \leq 0.01$ 差异非常显著。

3.7.2 实验误差

3.7.2.1 误差的基本概念

实验过程中对某一量的测量值与其客观存在的真值之差称为测量值的误差。真值是被测量的某一具体的确定数值,可分为理论真值和约定真值两种,一般情况下往往是未知的。

某一量的测量值与其算术平均值之差称为测量值的偏差,反映了测量值的离散程度。如上所述,若对一样品的重复测量次数 $n \rightarrow \infty$,则总体的测量标准差为 σ [按式(3.61)计算],当 n 为有限数时,可用样本的测量标准差 S [按式(3.64)计算]作为 σ 的估计值。

测量值与某一比较值(μ 或 \bar{X})之差称为绝对误差,绝对误差与比较值之比称为相对误差(有时,可用绝对误差与测量值之比近似地表示相对误差)。

3.7.2.2 误差的分类

(1) 随机误差 环境物质的特性与相应的参数都具有随机性,因此,即使在完全相同的条件下,对同一样品某一量多次测量所得到的测量值误差的绝对值及正负符号都是不确定的(但总体上都具有统计规律性),由此造成的测量误差称为随机误差,常以标准差 σ 表示。当给出某一被测量真值为 $\mu = X \pm \sigma$ 和 $\mu = X \pm 2\sigma$ 时,意味着 μ 处于 $[X - \sigma, X + \sigma]$ 及 $[X - 2\sigma, X + 2\sigma]$ 区间内的概率分别为 68.3% 和 95.5%。

(2) 系统误差 样品前处理过程中的沾污或核素损失,加入载体与待测核素之间同位素交换不完全,使用刻度不准及计数装置本身原因,导致在相同条件下多次测量值的误差带有明显的倾向性,其绝对值及符号都保持恒定,这种类型的测量系统误差可通过实验进行适当的修正而予以减小或消除。

(3) 过失误差 分析中违反标准程序操作,读错或记错数据导致的误差称为过失误差,由此得到的异常值可采用适当的统计方法检验而予以剔除。

3.7.2.3 误差的传递

许多情况下,样品某一特征量不是单次直接测量的结果,而是按一定的关系式对若干测量值进行计算而求得,显然,计算过程中各测量值的误差以一定的方式传递,从而决定计算结果的误差(表 3.10)。

表列各式中, Y 为间接测量值, X_1, X_2 为直接测量值, $\sigma_Y, \sigma_{X_1}, \sigma_{X_2}$ 为 Y, X_1 及 X_2 的标准差, $\delta_Y, \delta_{X_1}, \delta_{X_2}$ 为 Y, X_1 及 X_2 的系统误差。

例如,放射性测量中,样品净计数率 n_s 为样品计数率 n_a 减去本底计数率 n_b 所得之差,其中,

$$n_a = \frac{N_a}{t_a}, n_b = \frac{N_b}{t_b} \quad (3.72)$$

表 3.10 误差的传递公式

计算公式	随机误差	确定性误差
$Y = X_1 + X_2$	$\sigma_Y^2 = \sigma_{X_1}^2 + \sigma_{X_2}^2$	$\delta_Y = \delta_{X_1} + \delta_{X_2}$
$Y = X_1 - X_2$	$\sigma_Y^2 = \sigma_{X_1}^2 + \sigma_{X_2}^2$	$\delta_Y = \delta_{X_1} - \delta_{X_2}$
$Y = X_1 \times X_2$	$(\frac{\sigma_Y}{Y})^2 = (\frac{\sigma_{X_1}}{X_1})^2 + (\frac{\sigma_{X_2}}{X_2})^2$	$\frac{\delta_Y}{Y} = \frac{\delta_{X_1}}{X_1} + \frac{\delta_{X_2}}{X_2}$
$Y = X_1 / X_2$	$(\frac{\sigma_Y}{Y})^2 = (\frac{\sigma_{X_1}}{X_1})^2 + (\frac{\sigma_{X_2}}{X_2})^2$	$\frac{\delta_Y}{Y} = \frac{\delta_{X_1}}{X_1} - \frac{\delta_{X_2}}{X_2}$
通式 $Y = f(X_1, X_2, \dots, X_n)$	$\sigma_Y^2 = \sum_{i=1}^n (\frac{\partial f}{\partial X_i})^2 \sigma_{X_i}^2$	$\delta_Y = \sum_{i=1}^n (\frac{\partial f}{\partial X_i}) \delta_{X_i}$

n_a 与 n_b 为标准差分别为:

$$S_{n_a} = \frac{S_{N_a}}{t_a} = \frac{\sqrt{N_a}}{t_a}, S_{n_b} = \frac{S_{N_b}}{t_b} = \frac{\sqrt{N_b}}{t_b} \quad (3.73)$$

净计数率的标准差为

$$S_{n_s} = \sqrt{S_{n_a}^2 + S_{n_b}^2} = \sqrt{\frac{N_a}{t_a^2} + \frac{N_b}{t_b^2}} = \sqrt{\frac{n_a}{t_a} + \frac{n_b}{t_b}} \quad (3.74)$$

以上各式中, N_a 、 N_b 为样品与本底总计数, t_a 、 t_b 为样品和本底计数时间。

3.7.2.4 测量结果总不确定度的估计

当测量过程中只存在系统误差时,由确定性误差 δ 的大小即可判断测量结果的可靠性;反之,当只存在随机误差时,可根据标准差 σ (或 S) 的大小判断测量结果的可靠性;当同时存在系统误差与随机误差时,测量结果可靠性的判断就十分复杂。

测量结果不确定度即为其误差的绝对值 $|\Delta|$ 的上界 U , 一般情况下无法求得 U 的准确值, 只能估计 $|\Delta| \leq U$ 的概率 P_U 。在这一意义上, 不确定度 U 与概率 P_U 的置信限是同义语。

测量结果的总不确定度 U 是系统不确定度与随机不确定度的综合, 一般将系统不确定度极限值 δ 与随机不确定度 99% 置信限 tS/\sqrt{n} 按平方和根法合并求得:

$$U = \sqrt{\delta^2 + (tS/\sqrt{n})^2} \quad (3.75)$$

式中,

δ ——系统不确定度(误差)极限值;

S ——测量结果的标准差;

n ——测量次数;

t ——概率为 99% 时的置信系数。

若将按统计方法求得的不确定度称为 A 类不确定度, 可用方差 S_i^2 (或标准差 S_i) 和自由度 df 表示, 用其它方法计算得到的不确定度称为 B 类不确定度, 并以 U_i 表示, 则总不确定度 U 可表示为:

$$U = \sqrt{S_i^2 + U_i^2} \quad (3.76)$$

必要时, 也可引入类似的分布置信系数 K , 即

$$U = K \sqrt{S_i^2 + U_i^2} \quad (3.77)$$

3.7.3 数据的处理

数据

3.7.3.1 有效数字及数字修约

测量结果的记录、运算和报告, 都应注意有效数字。有效数字表示测量中实际可测得的数字, 表示数字的有效意义。表示一个测量值的数字中, 除最末一位是不确定的可疑数字之外, 其余数字都应是可靠的。

加减运算中, 最后数值中小数点后有效数字位数应与参与运算各数值中小数点后有效数字位数最少的数值相同; 乘除运算中, 最后数值的有效数字位数应与参与运算各数值中有效数字位数最少的数值相同; 对数计算中, 所取对数的小数点后的位数(不包括首数)应和真数相同; 平方、立方和开方计算中, 结果的有效数字位数与原数相同; 当样本容量 $n \geq 4$ 时, 平均值的有效数字位数可比各测量值增加一位; 表示误差(如标准差)的数据有效数字位数一般只取一位(最多为二位); 分析结果的有效数字位数不可超过最低可测限的有效数字位数。

按上述原则确定有效数字位数后, 对位数过多的数字应根据四舍五入的原则进行修约。

3.7.3.2 可疑数据的取舍

当某一总体多个样本的自由度($df = n - 1$)相等时, 可按 Cochran 最大方差检验法进行

样本方差的一致性检验。

设有 L 组样本平均值(其中每组都包括 n 个测定值),其标准差分别为 S_1, S_2, \dots, S_L , 最大值为 S_{\max} ,可按下式计算统计量 C :

$$C = \frac{S_{\max}}{\sqrt{\sum_{i=1}^L S_i^2}} \quad (3 \cdot 78)$$

根据已知的 L, n 及设定的检验水平 α ,从 Cochran 最大方差检验临界值表查出相应的临界值 C_α 。如 $C > C_\alpha$,即认为标准差为 S_{\max} 的一组平均值的方差明显大于其它组,该组平均值应视为异常;如 $C \leq C_\alpha$,则表明各组平均值方差无显著差异。

此外,也可采用 Grubbs 检验法进行样本方差的一致性检验。对于各组平均值中的最大值 \bar{X}_{\max} 和最小值 \bar{X}_{\min} ,可按下式计算统计量 T_1 和 T_2 :

$$T_1 = \frac{\bar{X}_{\max} - \bar{\bar{X}}}{S_{\bar{X}}}, T_2 = \frac{\bar{\bar{X}} - \bar{X}_{\min}}{S_{\bar{X}}} \quad (3 \cdot 79)$$

式中, $\bar{\bar{X}}$ 为各组平均值 \bar{X}_i 的总平均值:

$$\bar{\bar{X}} = \sum_{i=1}^L \bar{X}_i / L \quad (3 \cdot 80)$$

$S_{\bar{X}}$ 为各组平均值 \bar{X}_i 的标准差:

$$S_{\bar{X}} = \frac{\sqrt{\sum_{i=1}^L (\bar{X}_i - \bar{\bar{X}})^2}}{L - 1} \quad (3 \cdot 81)$$

根据已知的 L 值和设定的检验水平 α ,可从 Grubbs 检验临界值表中查得相应的 $T(\alpha)$ (如相应于 $\alpha=0.05$ 的 $T(0.05)$ 及相应于 $\alpha=0.01$ 的 $T(0.01)$),一般情况下,如 T_1 及 T_2 值均小于 $T(0.05)$,表明各组平均值无统计差异;如 T_1 或 T_2 大于 $T(0.01)$,则应视为异常;如 T_1 或 T_2 值处于 $T(0.05)$ 及 $T(0.01)$ 之间,则应查找原因慎重处理。

对于同一组平均值中各单个测量值的一致性检验,也可采用 Dixon 检验法。

对于异常数据的取舍,应特别慎重,如因明显的系统误差或过失误差造成异常,可予以剔除,并查明误差来源,进行修正和改进;否则,即应对样本或总体作进一步的分析或测量,发现可能存在的异常污染。

3.7.4 检测下限

仪器的响应与被测量值之间的比值称为灵敏度,仪器能可靠地与空白试样区分所需的待测组分的量或浓度则称为检测下限(最低可测限)。

3.7.4.1 判断极限 L_C

对某一样品测得一次计数后,应判断此计数是属于本底涨落抑或样品中实际存在的放射性核素所致,为此,应引入对测量结果的最低判断极限 L_C ,

$$L_C = K_\alpha \sigma_0 \quad (3 \cdot 82)$$

式中,

L_C ——样品净计数的最低判断极限,计数;

K_α ——相应于显著水平为 α 的置信度系数值;

σ_0 ——样品活度为零($\mu_s=0$)时净计数的标准差,计数。

设样品总计数为 C_{s+b} ,本底计数为 C_b ,则样品净计数为 $C_{s+b} - C_b$,其方差为:

$$\sigma_s^2 = \sigma_{s+b}^2 + \sigma_b^2 = C_s + 2C_b \quad (3 \cdot 83)$$

取 $C_s=0$,则 $\sigma_0 = \sqrt{2C_b}$,故有:

$$L_C = K_\alpha \sqrt{2C_b} \quad (3 \cdot 84)$$

若取 $\alpha=0.05$,则 $K_\alpha=1.645$,故:

$$L_C = 2.33 \sqrt{C_b} \quad (3 \cdot 85)$$

该式适用于本底计数的数学期望值 μ_b 已知情况下的测量判断,如 μ_b 未知时,可对样品与本底一次成对测量的结果进行判断,这种情况下, $\sigma_0 = \sqrt{C_b}$,故有:

$$L_C = K_\alpha \sqrt{C_b} = 1.645 \sqrt{C_b} \quad (3 \cdot 86)$$

如图 3.16 所示,设置 $L_C = K_\alpha \sigma_0$ 为判断极限后,可保证 $\mu_s=0$ 的无污染样品因一次测量净计数 $C_s < L_C$ 而被判断为无放射性的置信度范围不小于 95%。

3.7.4.2 探测下限 L_D

即使样品净计数的数学期望值 $\mu_s = L_C$,由于计数的统计涨落,其一次测量的净计数仍有 50% 的概率低于 L_C ,以至被误断为不存在放射性。为避免这样大的误断概率,应引入一个大于 L_C 的探测下限 L_D ,以确保可按预定的置信度可靠地作出样品存在放射性的判断:

$$L_D = L_C + K_\beta \sigma_D \quad (3 \cdot 87)$$

在这种情况下,即可确保 $\mu_s = L_D$ 的样品因一次测量净计数 $C_s < L_D$ 而被误断为不存在放射性的概率 $\beta \leq 0.05$ (K_β 亦相应地取为 1.645)。式中 σ_D 为样品净计数的数学期望值 $\mu_s = L_D$ 时的标准差,在低水平测量中,可近似地认为 $\sigma_D \approx \sigma_0 = \sqrt{2C_b}$,故有

$$\begin{aligned} L_D &\approx (K_\alpha + K_\beta) \sqrt{2C_b} \\ &= 4.66 \sqrt{C_b} = 2L_C \end{aligned} \quad (3 \cdot 88)$$

3.7.4.3 定量测定极限 L_Q

按上述原则设定判断极限 L_C 和探测下限 L_D 后,对于 $\mu_s=0$ 的样品,可确保其一次测量净计数 $C_s < L_C$ 而作出其不含放射性的结论的置信度不小于 95%;反之,对于 $\mu_s \geq L_D$ 的样品,亦可确保其一次测量净计数 $C_s \geq L_D$ 而作出其含放射性的结论的置信度不小于 95%。实际应用中,对样品实际所含的放射性相应的净计数还应设置一个定量测定极限 L_Q ,以确保样品一次测量净计数 $C_s \geq L_Q$ 时,可按预定的精度(相对标准误差)要求计算实际的活度:

$$\sigma_Q/L_Q = 1/K_Q$$

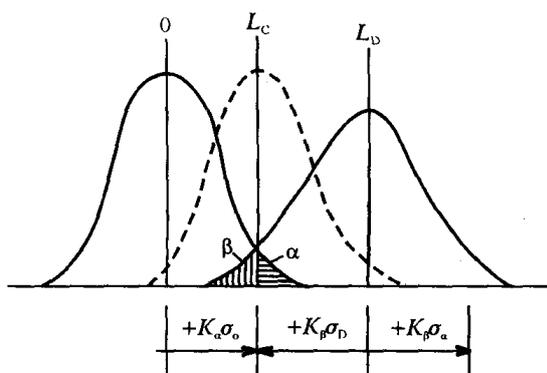


图 3.16 判断极限 L_C 和探测下限 L_D

或

$$L_Q = K_Q \sigma_Q \quad (3 \cdot 89)$$

式中, K_Q 由预定的相对标准误差要求而定(如要求 $1/K_Q \geq 10\%$, 则 $K_Q \leq 10$), σ_Q 为样品净计数 $C_S = L_Q$ 时的标准差。

当本底计数的数学期望值 μ_b 已知时, $\sigma_Q = \sqrt{L_Q + C_b}$, 则

$$L_Q = \frac{K_Q^2}{2} \left(1 + \sqrt{1 + \frac{4C_b}{K_Q^2}} \right) \quad (3 \cdot 90)$$

当本底计数的数学期望值 μ_b 未知时, $\sigma_Q = \sqrt{L_Q + 2C_b}$, 则

$$L_Q = \frac{K_Q^2}{2} \left(1 + \sqrt{1 + \frac{8C_b}{K_Q^2}} \right) \quad (3 \cdot 91)$$

3·7·5 监测结果的正确表达

环境监测通过对随机样本的监测结果推断样本所代表的总体, 因此, 监测结果的正确表达应包括被测量的数量值的最佳估计值 \bar{X} 及其在一定概率水平下的不确定度 U 。在辐射环境监测中最常见的低水平放射性测量情况下, 测量结果可能有以下三种情况:

- ① 样品净计数 C_S 大于或等于探测下限 L_D ;
- ② 样品净计数 C_S 小于 L_D , 但总计数(包括本底)大于零;
- ③ 零水平, 净计数 $C_S \leq 0$, 甚至长期计数期间 C_S 及 C_B 均为零。

3·7·5·1 $C_S \geq L_D$ 时的结果表达

当样品的净计数 C_S 大于或等于探测下限 L_D 时, 单次测量值为正值, 监测结果可用 $\bar{X} \pm U$ 的形式表达。

(1) 平均值 \bar{X} 一般情况下, \bar{X} 可采用算术平均值, 对于呈现对数正态分布的样本数据, 则可采用几何平均值。同一总体中若干组测量数据间不存在明显的系统误差时, 可采用加权平均值:

$$\bar{X}_w = \frac{\sum_{i=1}^L W_i \bar{X}_i}{\sum_{i=1}^L W_i} \quad (3 \cdot 92)$$

式中,

\bar{X}_w ——测量数据的加权平均值;

\bar{X}_i ——第 i 组数据的算术平均值或几何平均值;

W_i ——第 i 组数据的权重因子。

某一组测量数据的权重因子 W_i 可取该组数据的测量次数 n_i 或其方差的倒数 $1/S_i^2$ 。这时, 加权平均值 \bar{X}_w 的标准差为:

$$S_w = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^L W_i S_i^2}{\sum_{i=1}^L W_i}} \quad (3 \cdot 93)$$

当取 $W_i = 1/S_i^2$ 时, 即有

$$S_w = \sqrt{\frac{L}{\sum_{i=1}^L W_i}} \quad (3 \cdot 94)$$

式中 L 为数据组数。

各组数据之间肯定存在系统误差时,不能采用加权平均。

(2) 总不确定度 U 当系统不确定度可以忽略时,总不确定度 U 可用随机不确定度表达,其形式有:

- ① 单次测定值的标准差 S (包括测定次数和置信概率);
 - ② 平均值的置信限 tS/\sqrt{n} (包括置信水平和自由度);
 - ③ 单次测定值的统计容许限 KS (包括置信水平和测定次数)。
- 当系统不确定度不可忽略时,应采用前述总不确定度 U 表示。

3·7·5·2 $C_s < L_D$ 时的结果表达

当样品净计数 C_s 小于探测下限 L_D (但不等于零)时,不能轻易地判断其不含放射性而将该数据舍弃。可按实际情况选择以下几种形式表达测量结果:

- ① 要求数据偏保守时,可用 L_D 值表达;
- ② 测量值分布已知时,可以不理睬部分小于 L_D 的测量值,直接用该分布的数学期望值表达;
- ③ 通常可用 $0.5L_D$ 表达,但这未必是无偏估计;
- ④ 在同一测量点处测量值 C_s 有正值也有负值时,不应剔除负值,应取平均值表达。但负值不应出现在测量结果正式报表中。

3·8 环境监测质量保证

3·8·1 质量保证及其方法

环境监测质量保证意味着采取必要的、有计划的、系统的管理行动,确保监测结果达到预定的置信水平,使之能得到广泛认可。

环境监测质量主要是指监测结果的可靠性,即监测数据的准确度和精密度。此外也包括测量与分析方法、仪器的灵敏度,结果阐释的合理性以及整个监测计划在所需时间、代价与预期可获得的利益之间的正当性和最优化评价。

环境监测质量保证是涵盖监测全过程的全面的质量管理行动,涉及监测方案的制定、采样断面的设置、采样方法、样品的前处理和保存、测试仪器的选择和刻度、试剂和基准物的选用、分析测量方法、实验室内和实验室间质量控制程序、数据的记录、统计处理和正确表达等诸多方面。图 3.17 所示为环境监测质量保证的一般工作程序。

环境监测质量保证可分为质量控制和质量评价两个方面,质量控制是指为达到预期的质量要求而制定的方法和措施,目的在于确保监测数据具有以下 5 个方面良好的质量特征:

- ① 准确性,测定量与真值之间的符合;
- ② 精密性,对同一样品重复测定值之间的一致;

③完整性,有效监测数据总量满足预期的要求;

④代表性,样品采集在时间-空间分布上的代表性;

⑤可比性,监测方法,环境条件及数据表达方式的一致性。

用于仪器刻度、测量方法评价和作为比对标准的物质(如放射源和放射性物质)称为标准或参考物,必须具备良好的均匀性、稳定性和制备的再现性。标准物一般分为两级,一级标准物准确度高,经权威机构核准,附有证书并编入国家标准物目录;二级标准物是单位或部门自行制定的,但需要可靠方法定值。

分析方法标准分权威方法、标准方法、统一方法和等效方法四个层次。

权威方法一般是绝对测量法,包括测量7个基本物理量的完全基于物理定义的方法和某些基于物理标准的方法(如分析化学中的重量法、容量法等)。权威方法应具有坚实的理论基础,能以数学公式表达,主要测量参数是独立的,精密度和稳定性已得以论证,进行了系统误差分析,能给出测量结果的准确度。

标准方法又称方法标准,包括国家标准方法、等效的国际标准方法和国内外权威机构颁布执行的方法。标准方法必须确切、清楚地给出实验条件和过程,并经实验确定其精密度和准确度。标准方法可直接用于高准确度的测量,评价其它方法的准确度,方法比对和仲裁分析,二级标准物的定值等。

统一方法是经实践验证后建立的统一、实用、监测工作中普遍采用的方法。

等效方法是根据行业和地区环境特点建立的与标准方法或统一方法等效可比较的方法,须经有关技术主管部门核准后方可采用。

为了确保监测结果的一致性和可比性,环境监测必须采用国际单位制(SI)及相应的测量传递系统。

3.8.2 环境监测中的不确定度及其来源

如前所述,不确定度是正确表达监测结果的一个必不可少的组成部分,它以一定的置信水平为基础,对监测数据设置一定大小的数值区间,以说明总体真值所处的范围及其处于该范围内的概率水平。环境监测结果的总不确定度可以下式表示:

$$U_T = f(U_c, U_a, U_m, U_t \dots) \quad (3 \cdot 95)$$

式中,

U_T ——监测结果的总不确定度;

U_c ——样品采集、贮存中产生的不确定度;

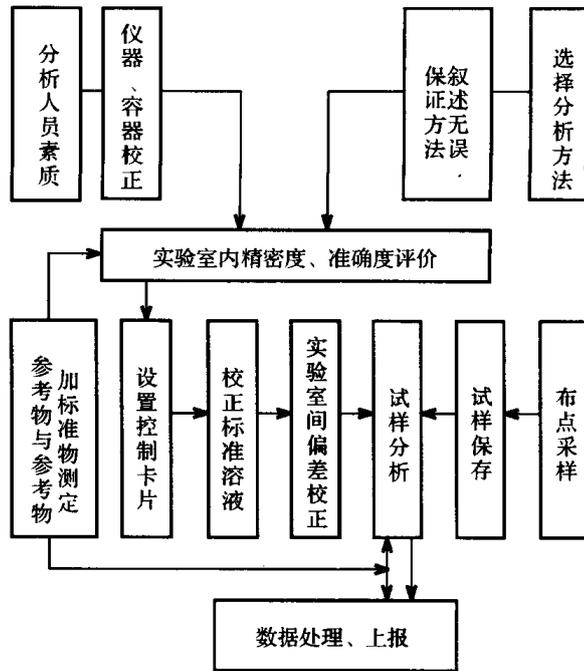


图 3.17 环境监测质量保证程序

- U_a ——样品处理、分离纯化中产生的不确定度；
- U_m ——样品测量中产生的不确定度；
- U_t ——结果计算和数据处理中产生的不确定度。

3.8.3 环境监测质量控制

环境监测质量控制包括监测人员自我进行的内部控制和有关人员、中心实验室、上级主管部门进行的外部监督控制。

质量控制应贯穿于环境监测全过程,主要包括如下几个环节。

3.8.3.1 采样的质量控制

采样计划的设计应确保能获得代表性的样品,采样点的布设、采样方法、样品的包装、储运和存放都要严格遵循标准的程序和方法。

3.8.3.2 室内分析测量的质量控制

室内分析测量的质量控制措施包括采用标准的分析测量方法,对空白样、检测限、校准曲线、准确度、精密度、盲样的控制,标准参考物质和质量控制样品的使用和实验室间的分析测量比对。

(1) 空白样测试 样品中的非被测组分,纯水和试剂中所含的杂质,样品采集、储运、存放和测定过程中的沾污,都会影响测量结果,为此,应作必要的空白样测试。

实验室空白样以水取代样品,采用完全相同的试剂和程序,在样品测试的同时进行测试;必要时,还应制备现场空白样进行测试。空白样测试中,不仅要控制其测量值的大小,更应控制其分散程度,因此,每测试6个以上的样品,至少应做两次空白样测试。

(2) 检测限的设定 在一定的置信水平下,某一分析测试方法能够检出的待测物质的最小量称为该方法的检测限。目前,不同分析测试方法中对检测限设定的原则尚不统一。放射性计量测量中,可取空白样品的计数值作为本底计数 C_b ,分别设定判断极限 L_C 、探测下限 L_D 和定量测定极限 L_Q ;当空白样测试次数大于20次,空白计数的期望值已知时,也可按下式确定相应置信水平为95%的检测限:

$$L_D = 4.6S_{wb} \quad (3 \cdot 96)$$

式中, S_{wb} 为空白平行样测定的批内标准差。

(3) 校准曲线 校准曲线用以描述样品中待测物质的浓度与仪器响应值之间的定量关系。绘制校准曲线时,实验点不应少于5个,并应在测量值范围内均匀分布。

校准曲线通常可用一元线性回归计算求得:

$$y = a + bX \quad (3 \cdot 97)$$

式中,

- y ——仪器响应值,如计数率, s^{-1} ;
- X ——样品中待测物质浓度,如比活度 $Bq \cdot g^{-1}$;
- a ——截距;
- b ——斜率。

校准曲线的控制主要体现在对截距 a 、斜率 b 及相关系数 r 的控制,大多数监测分析方法的 r 值可达0.999以上;截距 a 反映了空白样的平均测定值(显然,由校准曲线截距 a 估

计空白样测定值比按对少量空白样测定值更为合理);斜率 b 则反映监测方法的灵敏度,取决于化学分离的回收率及计算测量的探测效率。

(4) 精密度控制 在规定的条件下,对同一均匀样品多次重复分析测量结果之间的符合程度称为精密度。它反映了样品、分析方法和系统固有的随机不确定度。精密度可分为实验室内精密度和实验室间精密度,前者从整体上反映同一实验室内测量结果的平行性和重现性,后者则反映测量精密度在实验室间的再现性。

精密度控制最常用的方法是极差控制法,分析 20 对以上的平行双样,计算出每对平行双样的极差(两测定值之差) R_i ,即可按下式求得平均极差:

$$\bar{R} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n R_i \quad (3 \cdot 98)$$

式中,

\bar{R} ——平均极差;

n ——平行双样对数;

R_i ——第 i 对双样的极差。

而后,可按以下原则设置上控制限和上警告限:

上控制限 $UCL = 3.27\bar{R}$

上警告限 $UWL = 2.51\bar{R}$

常规监测中,某一样品的平行样测定值的极差 R_s 如小于 UWL ,即可认为测量结果的精密度符合要求;如 $R_s > UWL$,为可疑; $R_s > UCL$,则为异常。

同样,可对标准差或相对标准差设置上控制限和上警告限,对被测物含量相对恒定的样品监测的平均值 \bar{X} 则可设置上、下控制限和警告限。

(5) 准确度控制 在规定的条件下,对标准物或质量控制样品的单次分析测定值或重复分析测定平均值与其真值之间的符合程度称为准确度,可用误差、相对误差或对加标样品的全程回收率表示。

一般情况下,也可通过对回收率或加标回收率设置上、下控制限和警告限,以实施对准确度的控制。对同一总体样本分析测量 15 个以上的回收率或加标回收率,计算出平均回收率 \bar{Y} 及其标准差 S_Y ,则

$$\begin{aligned} UCL &= \bar{Y} + 3S_Y \\ UWL &= \bar{Y} + 2S_Y \\ LCL &= \bar{Y} - 3S_Y \\ LWL &= \bar{Y} - 2S_Y \end{aligned} \quad (3 \cdot 99)$$

(6) 盲样控制 盲样控制也称密码样控制,盲样可以是标准物、质量控制样品、实际试样或其加标样,甚至空白样。由于分析测试者预先不知道盲样中被测物含量的真值,因此,其测定值及相应的标准差都是比较客观可信的。

(7) 实验室间分析测量比对 实验室内如存在分析测量的系统误差,会对其测量结果造成相当大的偏差,但往往难以自我发现。为此,应通过实验室之间的分析比对或交叉核查,特别是可溯源到国家标准的比对,全面检查实验室分析测量工作的质量。

3·8·3·3 环境监测质量的其它控制措施

环境监测质量控制措施还包括统一的数据记录、复审及核查程序,监测人员资质考核和对监测机构的计量认证。

3·8·4 环境监测质量评价

环境监测质量评价是对监测结果的可靠性判断,通过评价及时发现和纠正监测过程中存在的问题,通常也可分为实验室内质量评价和实验室间质量评价。

3·8·4·1 实验室内质量评价

实验室内质量评价又称为性能评价,是对实验室技术水平和能力的综合评价。

一般情况下,参与质量考核评价的实验室、分析项目和分析测定方法均应属于常规监测范围,考核评价频度为每年1~2次;各分析测定项目和方法应设定精密性、准确度和系统误差的上、下控制限和警告限;考核结果可采用评分法或评价指数评定法进行评价。

对某一参评实验室的质量评价指数可按式(3·100)评定:

$$E = 100 - \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (|\mu_i - C_i| / S_i)^b \quad (3 \cdot 100)$$

式中,

E ——评价指数;

μ_i ——某评价项目考核样品的真值;

C_i ——实验室对该项目考核样品的测定值;

S_i ——该项目的总体标准差;

n ——评价项目总数;

b ——指数,评价标准定为一倍标准差时为3.5,二倍标准差时为5.5。

实验室质量评价应由中心实验室组织进行。

3·8·4·2 实验室间质量评价

规模较大的环境辐射监测项目往往有多个实验室共同承担,为确保总的监测质量,有必要进行实验室间质量评价。

在各实验室内质量评价的基础上,由中心实验室将相同的质量控制样品分发给各实验室,各室采用统一的方法,在规定的时间内完成分析测定和数据处理,并按规定的程序上报结果,中心实验室据此按有关规定对各实验室进行质量评价。

(1) R 检验 R 值的大小代表一个实验室对某一样品测定值的绝对误差与平均临界值之间的比值:

$$R = \frac{|\Delta|}{\frac{t_{0.01} \times S}{\sqrt{n}}} \quad (3 \cdot 101)$$

式中,

$\Delta = \bar{X} - u$,为该实验室测定值的均值与样品真值的偏差;

S ——该实验室测定值的标准差;

$t_{0.01}$ —— t 分布概率系数;

n ——实验室对样品的测定值数目。

当 $R < 1$ 时,可认为该实验室的测定结果不存在系统误差;反之,如 $R \geq 1$,则表明其存

在明显的系统误差。

(2) χ^2 检验 设有 $j=1, \dots, N$ 个实验室参加质量评价, 每一实验室对某一样品的测量次数为 $i=1, \dots, n$, 则

$$\chi^2 = \frac{\sum_{j=1}^N \sum_{i=1}^n (X_{i,j} - \bar{X})^2}{S^2} \quad (3 \cdot 102)$$

式中,

\bar{X} ——所有测定值 $X_{i,j}$ 的加权平均值;

S ——所有测定值 $X_{i,j}$ 的总体标准差。

给出一定的置信度 α , 查 χ^2 分布表可求得临界值 $\chi_{\alpha(N, n-N)}^2$, 如 $\chi^2 > \chi_{\alpha(N, n-N)}^2$, 表明各实验室的测量结果存在明显差异。

(3) 双样检验 向各实验室同时发放两个均匀、类似、浓度很接近的样品 A 和 B, 各室由同一分析人员在同一地点, 采用相同方法同时进行分析测量, 中心实验室根据所有测定结果绘制双样检验图(图 3.18)。

以 x 轴和 y 轴分别表示样品 A 和 B 的测定值, 各室的测定值 x_i 和 y_i 即决定了该室在双样图上所占有的位点。在 x 轴上通过平均值 \bar{x} 作平行于 y 轴的直线, 在 y 轴上通过平均值 \bar{y} 作平行于 x 轴的直线, 两线相交将双样图划分为 $++$ 、 $--$ 、 $+-$ 、 $-+$ 4 个象限。

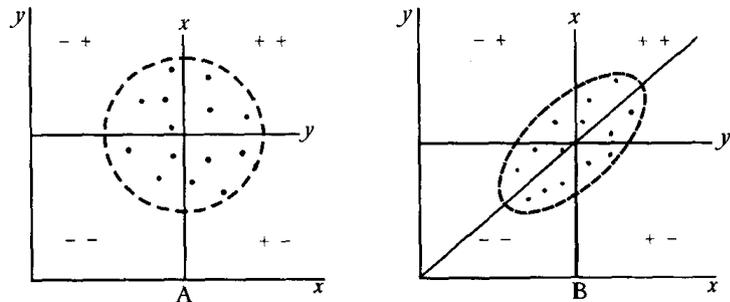


图 3.18 双样图

如各实验室间不存在系统误差, 各室的位点将随机地分布于 4 个象限中(图 3.18A), 其中 70% 位于以 $1.522S$ 为半径的圆内, 95% 位于以 $2.448S$ 为半径的圆内。

若各实验室间存在系统误差, 则同一实验室的两个测定值 x_i 及 y_i 将同时偏高或偏低, 故多数位点将存在于 $++$ 或 $--$ 象限内, 形成与 y 轴成 45° 角倾斜的椭圆分布(图 B)。根据椭圆长、短轴之差及其位置, 可直观地分析室间系统误差的大小和方向, 也可评判个别实验室测量值的离散程度及其不可靠性。

参 考 文 献

- 1 国务院环境保护办公室. 环境放射性监测规定, 国外辐射防护规程汇编, 第 5 册(下). 北京: 内部资料, 1984
- 2 陈竹舟等. 环境放射性监测与评价. 太原: 内部资料, 1991
- 3 刘书田等. 环境污染监测实用手册. 北京: 原子能出版社, 1997
- 4 俞誉福编著. 环境放射性概论. 上海: 复旦大学出版社, 1993
- 5 沃·阿·察里岭等. 航空、汽车及步行 γ 能谱测量法调查城镇及居民点放射性污染, 方法指南. 圣彼得堡: 内部资料, 1993
- 6 张锦由主编. 放射性方法勘查实验. 北京: 原子能出版社, 1992
- 7 章晔等. 放射性方法勘查. 北京: 原子能出版社, 1992

- 8 张哲编著. 氡的析出和排氡通风. 北京:原子能出版社,1982
- 9 山越和雄著. 低水平放射性测量. 姜德智等译. 北京:原子能出版社,1985
- 10 《海产食品放射性调查》编写组. 海产食品放射性调查. 北京:内部资料,1983
- 11 中华人民共和国国家标准. 地热水应用中的放射卫生防护标准:GB16367—1996. 北京:中国标准出版社,1997
- 12 中华人民共和国国家标准. 核设施流出物监测的一般规定:GB11217—89. 北京:中国标准出版社,1990
- 13 中华人民共和国国家标准. 环境空气中氡的标准测量方法:GB14582—93. 北京:中国标准出版社,1994
- 14 中华人民共和国国家标准. 核电厂环境辐射防护规定:GB6249—86. 北京:中国标准出版社,1987
- 15 吴慧山等. 氡测量方法和应用. 北京:原子能出版社,1995
- 16 中华人民共和国国家标准. 环境地表 γ 辐射剂量率测定规范:GB14583—93. 北京:中国标准出版社,1994
- 17 中国标准出版社第二编辑室编. 噪声测量和放射性物质测定方法国家标准汇编. 北京:中国标准出版社,1997
- 18 强亦忠等主编. 简明放射化学教程. 北京:原子能出版社,1989
- 19 J. H. Harley. Plutonium in Environment . J. Radist. Res. ,1980, 21(1)
- 20 中华人民共和国核行业标准. 土壤中铯-90的分析方法:EJ/T1035—96. 北京:原子能出版社,1996
- 21 国家环境保护局编. 环境辐射监测分析方法及管理标准汇编. 北京:中国标准出版社,1992
- 22 李德平等. 置信区间与探测下限. 辐射防护,1994,14(4):303~318

第二篇 放射性物质在环境中的行为

第4章 放射性物质在大气中的行为

地球大气层的厚度为2000~3000km,其底部1~2km内低层大气称为大气边界层或行星边界层,这部分大气的运动受下垫面(地面)的影响十分明显,其中下垫面以上100m左右范围内的最底层大气又称近地层或摩擦边界层,近地层以上至大气边界层顶之间称为过渡层。人为产生的气载污染物一般都排入大气边界层中。

放射性物质释入大气后的物理、化学行为与其本身的理化性质和大气的性质有关。一部分放射性气体可被大气中的尘埃或液体微滴吸收或溶解;氡一类惰性气体的衰变产物为固态金属微粒,可因扩散及静电吸附等作用与空气中的气溶胶颗粒结合而形成放射性气溶胶;有些放射性核素可与氧及二氧化碳发生氧化或碳酸化反应;气态氡可因氧化反应生成氡水蒸气(HTO); ^{14}CO 或 $^{14}\text{CH}_4$ 可与含氧自由基反应生成 $^{14}\text{CO}_2$ 。

污染物质释入大气后将随风的运动向下风向输运,污染物分布不均匀形成的浓度梯度导致其在水平和铅直方向上扩散,空气流场的切变(流速分布的不均匀)则导致污染物的弥散。

输运过程中放射性核素将逐渐衰变,其子体核素则逐渐积累;雨雪的清洗作用导致核素的湿沉积,粒径较大($>20\mu\text{m}$)的固体颗粒会因重力作用而沉降,粒径较小的气溶胶、蒸汽和气体成分则会因碰撞而被地面附着物截留,发生干沉积;风的作用又会导致沉积物的再悬浮,造成空气的二次污染。

空气的放射性污染将对人(尤其是皮肤及浅表组织)直接造成外照射;人会因吸入污染的空气而受到内照射;沉积造成的地面污染会造成外照射;沉积导致的农作物污染会经食物链途径对人造成内照射。

4.1 放射性物质在大气中的化学行为

大气又称大气圈,是维持和保护地球上一切生命所必需的,它的组成极其复杂,主要成分是氮和氧,此外还含有许多其它物质,如 CO_2 、水蒸气、稀有气体和飘尘等。高层大气中还可含有离子和电子激活的物质。流星进入大气层以及火山爆发、尘暴、森林大火、城市空气污染、飞机排气会使大气组成及其化学行为发生更为复杂的变化。

4.1.1 大气的化学组成

大气的总质量约为 $5.15 \times 10^{15}\text{t}$,是一个多组分的混合物,其主要成分是氮(78.09%,体积比,下同)、氧(20.95%)和氩(0.934%), CO_2 是一种可变成分,近地大气层中平均含量为0.033%,其它还有微量的稀有气体、 CO 、水蒸气、 CH_4 、 H_2 、 N_2O 、 O_3 、 CH_2O 和飘尘等(表4.1)。此外,大气中还会含有自由基、离子和其它含硫、卤素甚至金属(主要是流星引入的

Na、Ca、Li、Fe 等)微量组分,其中有些组分以气溶胶状态存在于大气中。由于地球重力场的作用,大气层各组分具有分层分布的结构特征。地面以上约 90km 范围内的大气层称为同质层或均匀层,其化学组成稳定,各组分相对比例基本不变。大气层 99.9% 以上的气体质量存在于地面以上 50km 的范围内。

表 4.1 中纬度地区大气的相对组成

组分	体积浓度(%或 10^{-6})	重量浓度(%或 10^{-6})	总质量($\times 10^{22}$ g)
N ₂	>8.09(%)	>5.51(%)	38.648
O ₂	20.95(%)	23.15(%)	11.841
Ar	0.934(%)	1.28(%)	0.655
CO ₂	0.033(%)	0.046(%)	0.0233
He	5.24	0.72	0.000037
Ne	18.18	12.5	0.000636
Kr	1.14	2.9	0.000146
Xe	0.087	0.36	0.000018
H ₂ O	可变	可变	0.015
CH ₄	1.4	0.9	0.000043
H ₂	0.5	0.03	0.000002
NH ₃	6×10^{-3}	-	-
N ₂ O	0.25	0.8	0.00004
CO	0.08	-	-
O ₃	0.025	0.6	0.000031
NO	2×10^{-3}	-	-
HNO ₃	≤ 0.02	-	-
NO ₂	4×10^{-3}	-	-

根据大气层内温度的垂直变化,可分为对流层、平流层、中间层和热层,其中前三层均属同质层;热层则为异质层(非均匀层),因受宇宙射线的影响,其中含有较高密度的带电粒子,故又称为电离层。热层以上为散逸层(见图 4.1)。其中,与人类关系最密切的是对流层和平流层。

4.1.2 大气中的一般化学过程

在太阳辐射、宇宙射线、X 射线和闪电引起的放电效应等因素的作用下,大气中会发生一系列化学反应,其中最重要的是光化学反应。

大气中的主要成分 N₂ 和 O₂,可以吸收太阳辐射而引起光致离解,产生氮

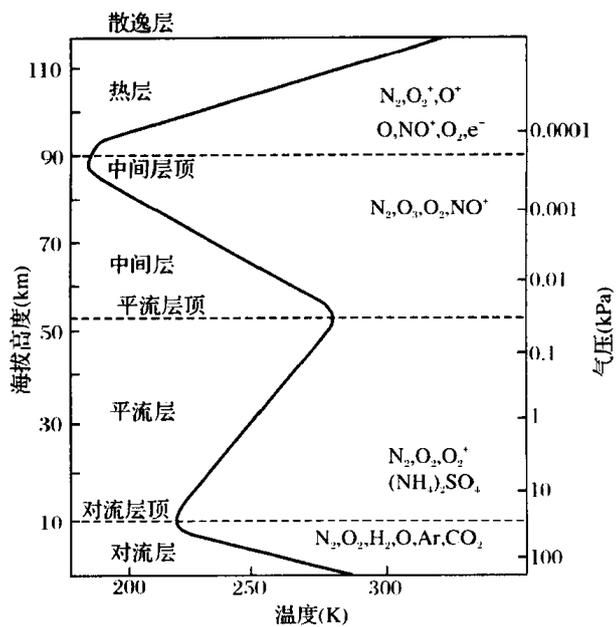
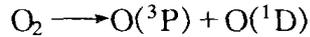
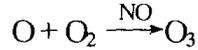


图 4.1 大气的分层结构

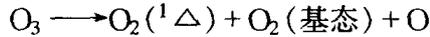
原子和两种氧原子,即基态 $O(^3P)$ 和第一激化电子态 $O(^1D)$:



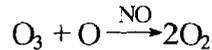
在平流层,氧通过紫外线的光化学反应生成 O_3 ,形成臭氧层:



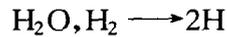
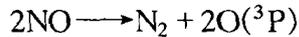
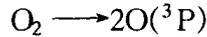
臭氧能强烈吸收紫外线,使外层空间射向地球表面的高能紫外线强度大为减弱,为地球上生物的生存、进化和繁衍创造了条件。另一方面,臭氧(层)对紫外线的吸收也会引起光致离解,形成氧分子第一激化电子态 $O_2(^1\Delta)$,基态 O_2 和原子氧:



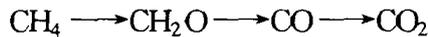
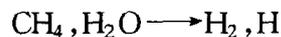
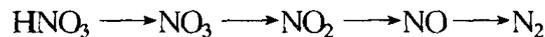
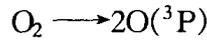
O_3 与原子氧反应也生成 O_2 :



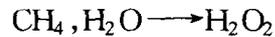
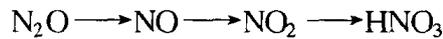
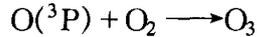
光化学反应在大气中生成的这些活性物质具有很强的化学反应能力,可进一步与其它大气组分反应。在热层,主要的光化学反应有



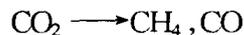
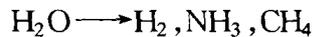
在中间层,主要的光化学反应有



在平流层,主要反应有



在对流层,主要反应有



宇宙射线、太阳紫外线和 X 射线等可引起大气组分电离,这主要发生在 60 km 以上的大气层,可形成 O^+ 、 NO^+ 和 O_2^+ ,也有少量的 N_2^+ ,还会形成一些负离子,如 O_2^- 、 NO_2^- 、 NO_3^- 、 CO_3^- 等,这些离子也可引起一系列的化学反应。

大气层中另一类重要的化学反应是由大气中的污染物质造成的,如低层大气中酸雨引起的化学反应,氮氧化物和烃类等污染物的光化学反应等。这些反应机理十分复杂,会形成

各种有毒产物,对人类威胁很大。

4.1.3 放射性物质在大气中的化学行为

大气中的放射性物质可发生一系列的化学变化,其中主要有氧化反应、光化学反应和同位素交换反应,气溶胶的形成和吸附现象,云雾、雨滴对放射性物质的溶解、吸收等。

4.1.3.1 放射性气溶胶的形成

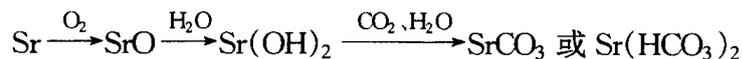
液态或固态放射性核素虽也能存在于大气中,但绝大部分均被大气气溶胶捕集而形成放射性气溶胶,飘浮在大气中。大气气溶胶主要包括微尘、有机碳化合物微粒和液态的雾。

核武器爆炸时生成的大量放射性物质,随高温气团上升到对流层顶部,然后被随温度逐渐下降而形成的固体微粒或水滴捕集,形成放射性气溶胶;由大地散逸到大气中的氡,经衰变生成钋、铋、铅等放射性子体,通过扩散或静电吸附而被大气气溶胶捕集,也能形成放射性气溶胶。一般认为,放射性核素大多被 $0.01 \sim 10 \mu\text{m}$ 的大气气溶胶所捕集。此外,核设施也向大气中释放放射性气溶胶。对切尔诺贝利核电厂事故释放的放射性核素 ^{103}Ru 、 ^{106}Ru 、 ^{106}Rh 、 ^{131}I 、 ^{132}Te 、 ^{132}I 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{99}Mo — $^{99}\text{Tc}^{\text{m}}$ 、 ^{140}Ba — ^{140}La 气溶胶进行的粒度分布测定发现,其中 $50\% \sim 80\%$ 的气溶胶粒径小于 $1.1 \mu\text{m}$ 。

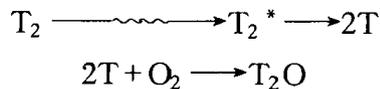
无论是哪一种途径形成的放射性气溶胶,在大气中随气流而迁移,或在高空成为雨、雪的凝聚核心,或通过溶解和化学反应与水滴结合,降落到地面。沉降于地面的放射性物质又可通过水的蒸发、风的作用而重新进入大气,形成放射性气溶胶。

4.1.3.2 化学反应

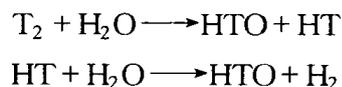
大气中的放射性物质在迁移、扩散过程中,因其本身的化学活性或大气中其它物质的化学活性而发生多种化学反应。其中,与 O_2 和 CO_2 的反应是大气中最容易发生的化学反应。核爆炸生成的许多放射性核素就经历了由氧化生成氧化物,再与 CO_2 反应生成碳酸盐的过程。例如,放射性元素锶(Sr)就有如下反应过程:

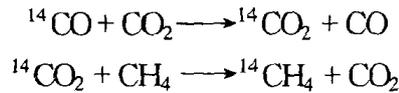


氚在自身 β 射线的激发下,也能与 O_2 发生氧化反应,生成氚水:



此外,大气中发生的化学过程与大气吸收太阳辐射引起的大气光化学过程有密切关系。大气中的某些放射性气体在太阳光的照射下,也可直接发生光化学反应。例如,气态氚在太阳光的作用下与大气中形成的 OH 自由基反应可生成氚水。此反应的速度与 OH 自由基的浓度成正比。大气中的 OH 自由基平均含量为每立方厘米 $10^5 \sim 4 \times 10^6$ 个自由基,且在一天中变化较大。在太阳光最强的中午达最大值,此时上述光化学反应也最强。平流层中的 $^{14}\text{CO}_2$ 在太阳光紫外线的作用下可转化为 ^{14}CO ;而 CO 、 CH_4 等气体与 OH 自由基反应也可转化为 CO_2 。从大气中 CO_2 — CO 之间的平衡来看, CO_2 浓度比 CO 高得多,因此后一种光化学反应占主导地位。此外, ^3H 与 ^1H , ^{14}C 与稳定碳之间还可发生同位素交换反应:





4.2 放射性物质在大气中的输运和弥散

4.2.1 大气边界层的温度场和风场

4.2.1.1 大气边界层的温度场

(1) 干绝热递减率 空气中一不含水蒸气的干空气团因随机运动而绝热上升时,一方面因周围气压降低而膨胀,另一方面,其位能亦因高度的增高而增大,这两个因素都将消耗该空气团的内能,导致其内部温度的降低;反之,干空气团绝热下降时,外压力增大引起的压缩和位能的减小将增大空气团的内能,使其内部温度上升。干空气团每绝热升降 100m 而导致其自身温度变化率的负值称为干绝热递减率,一般以 γ_d 表示,其理论值为 $0.98\text{K}/100\text{m}$ ($\approx 1.0\text{K}/100\text{m}$)。

实际大气多为含水蒸气的湿空气,未饱和湿空气绝热升降过程中,如其终态仍未达到饱和,其温度变化仍符合干绝热递减规律,即每升降 100 m 温度变化 1°C 。但是,湿空气绝热上升过程中,未饱和状态往往是短暂的,当其上升到一定高度时,水蒸气含量即达到饱和,如再继续上升,气团中水蒸气将发生凝结(这一高度称为凝结高度),凝结释出的潜热将部分抵消气团温度的下降。因此,湿空气团上升到凝结高度后如继续上升,其温度下降速率将小于 $1^\circ\text{C}/100\text{m}$ 。

(2) 大气的气温层结和静力稳定度 大气边界层中气温在铅直方向上的变化情况称为气温层结,其特征可用气温垂直递减率(简称为气温直减率)表示:

$$\gamma = -dT/dz \quad (4.1)$$

一般取单位高差(100 m)上气温变化速率的负值。因此,当气温随高度增高而降低时, $\gamma > 0$;反之, $\gamma < 0$ 则表示气温随高度增高而上升。

大气边界层中气温层结有四种典型情况。气温随高度增高而递减,且其递减率大于干绝热递减率($\gamma > \gamma_d$)时,为正常分布层结或超绝热递减层结;气温直减率等于或接近干绝热递减率($\gamma \approx \gamma_d$)时,为中性层结;气温随高度增高而上升($\gamma < 0$)时,为逆温层结;气温在高度方向上无任何变化($\gamma = 0$)时,为等温层结。

在各种气温层结条件下,空气团的上下运动会呈现不同的情况。白天正常日照条件下,由于地面吸收了太阳辐射热,其温度明显高于气温,使近地层空气温度亦明显高于上层空气,导致气温直减率大于干绝热递减率($\gamma > \gamma_d$)。在这种超绝热递减层结(图 4.2)条件下,一个原先在 H_1 高度上的空气团(其温度为 T_1)因随机运动而绝热上升到 H_2 高度时,其温度(T_2)将高于周围的气温(T_2^*),因此,仍将在热浮力作用下继续上升;反之,在超绝热递减条件下,空气团因随机运动而绝热下降时,其密度将大于周围空气的密度,亦将继续下降。这种情况下大气运动显然呈现不稳定状态。

傍晚日落以后,地面开始向空气散热,其温度逐渐下降以至低于气温,由此导致气温随高度的增高而上升($\gamma < 0$),在这种逆温层结(图 4.3)条件下,一个原先在 H_1 高度上的空气

团(其温度为 T_1) 因随机运动而绝热上升到 H_2 高度时,其温度(T_2)将低于周围的气温(T_2^*),其向上运动即受到遏制;反之,空气团因随机运动而绝热下降时,其密度将小于周围空气的密度,外力去除后其向下运动亦受遏制。这种情况下大气运动显然呈现稳定状态。

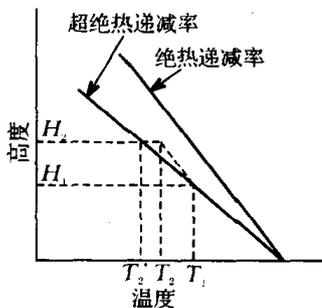


图 4.2 超绝热递减示意图

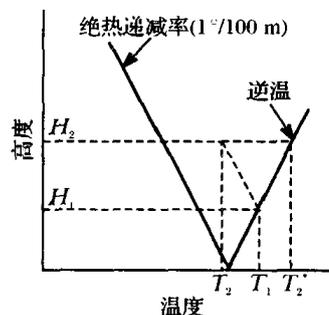


图 4.3 逆温示意图

在中性气温层结条件下,空气团作随机的升降运动时,气团将随遇而安,或作等速直线运动。这种情况下大气运动呈现中性状态。

大气静力稳定度只考虑气温差异产生的净力所导致空气团的升降运动,故又称为热力稳定度。对于饱和湿空气,升降过程中如伴有相变和相变热交换,就不能简单地以静力稳定度判别大气运动的状态;对于常见的未饱和湿空气,上述判别原则依然适用。

大气静力稳定度对气载流出物的烟羽形状有极大的影响(图 4.4),必然会影响烟囱下风向空气中污染物浓度的分布。

不稳定大气条件($\gamma > \gamma_d$)下,烟羽呈波浪形状,污染物弥散情况良好,烟羽落地点距烟囱近,相应的近地空气最大污染浓度高,下风向空气污染浓度随距离的变化大,高污染区范围较小。

弱递减或中性层结的大气条件($\gamma \approx \gamma_d$)下,烟羽呈圆锥形状,污染物弥散情况差于波浪形而优于扇形。

逆温层结的大气条件($\gamma < 0$)下,烟羽基本上只在水平方向上扩展,铅直方向扩展范围很小,故称为扇形或平展形。其时下风向空气污染情况因有效释放高度不同而异,有效源高很高时,近距离内近地空气污染浓度很低,但空

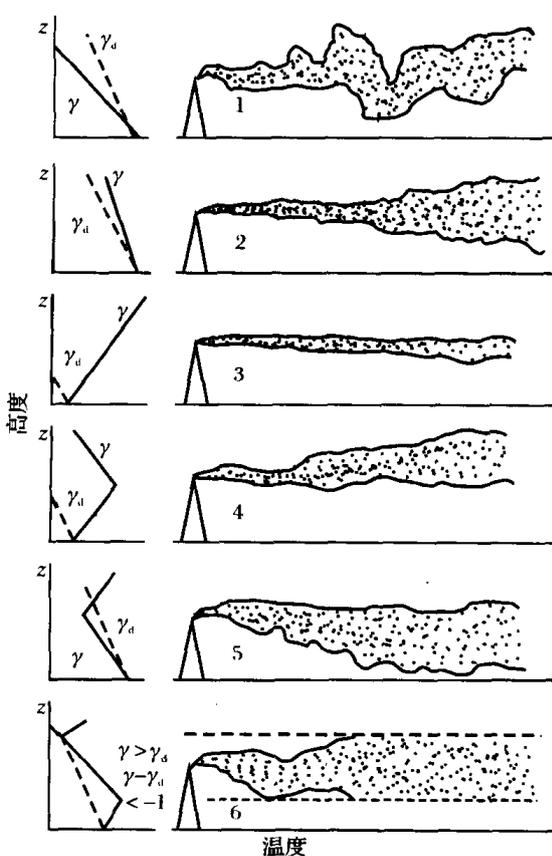


图 4.4 不同气温层结时的烟羽形状

中高污染区范围很大;有效源高很低时,会在近距离内造成近地空气的严重污染。

日落前后较短的一段时间内,烟羽上方气温呈递减层结而下方呈逆温层结,其向下扩展受到遏制而呈现屋脊形,其时近距离内近地空气污染浓度很小。

日出后较短的一段时间内,烟羽上方气温呈逆温层结而下方呈递减层结,其向上扩展受到遏制而导致熏烟,其时烟羽强烈的向下扩展造成近距离内近地空气的严重污染。

烟羽所处高度范围内气温呈递减层结而其上下方均呈逆温层结时,烟羽向上下的扩展都受到遏制而呈现上下受限形,这种情形多出现于易形成上部逆温的地区日落前后,其时近地空气几乎不受污染;当贴地逆温层被破坏后,即转为熏烟形,导致近地空气的严重污染。

4.2.1.2 大气边界层的风场

(1) 作用于大气的水平力 作用于大气的各种水平力造成大气水平运动而形成风,对污染物在大气中的输运、扩散和弥散具有十分重要的影响。

只要大气水平方向上存在着气压差异,就有水平气压梯度力作用于空气质点上,使之沿该力的方向由高压区向低压区作加速运动,直至有其它力与之平衡为止,其大小与水平气压梯度成正比。因此,水平气压梯度力是导致空气水平运动的原动力。

地球的转动使之与大气之间产生相对运动而造成旋转效应,由此而产生的地球偏转力(科里奥利力)使大气的水平运动偏离气压梯度力的方向,其大小与水平风速、地球自转速度及地球纬度等因素有关。地球偏转力始终伴随着空气的运动而存在,风一旦停止,该力即随之消失,它与气压梯度力的共同作用决定了实际的风向,但并不改变风速的大小,其自身方向始终与实际风向相垂直(在北半球指向风向的右方,在南半球则指向其左方)。

近地层空气运动还会受到下垫面(地面)的摩擦阻力(外摩擦力)的作用,运动方向及速度不同的相邻两层空气之间则存在着内摩擦力。摩擦力的方向与实际风向相反,它阻碍气层间的相对运动,从而降低了风速。

作曲线运动的大气还会受到惯性离心力的作用,其方向亦与实际风向垂直。

(2) 大气边界层中的风场 自由大气中,摩擦力一般可忽略不计,但在大气边界层中,气压梯度力(G)、科氏力(D)及摩擦力(F)三者处于同一数量级,这三种力(弯曲等压线的大气中还包括离心力)的共同作用形成了大气边界层中的风场。

在大气等压线为平行直线(图 4.5)的条件下,水平气压梯度力 G 垂直于等压线由高压指向低压,水平科氏力 D 则使风向偏向梯度力的右侧(在北半球),其本身则与实际风向 U 垂直,内外摩擦力 F 与风向 U 方向相反,三种力之间的平衡决定了实际的风向和风速大小。这种情况下,风向既不垂直、也不平行于等压线,而是斜穿等压线由高压区吹向低压区。

在同心圆等压线风场(图 4.6)中,水平气压梯度力 G 、水平科氏力 D 、离心力 C 及摩擦力 F 的共同作用使风向斜穿等压线而由高压吹向低压一方。因此,在北半球的大气边界层中,低压区空气反时针旋转向内辐合,高压区空气则顺时针旋转向外辐散。

在大气边界层中,由于摩擦力随高度增高而减小,因此,当水平气压梯度力不随高度变化时,风速随高度增高而增大。风向与等压线之间的夹角则随高度增高而减小,在边界层顶,实际的风向即与等压线平行。

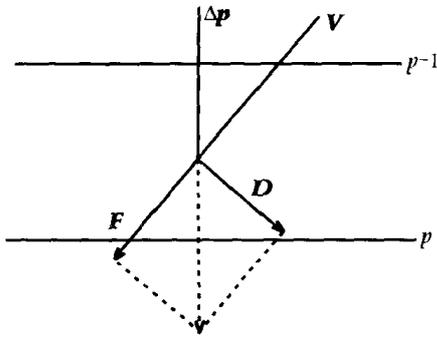


图 4.5 平行等压线理想风型

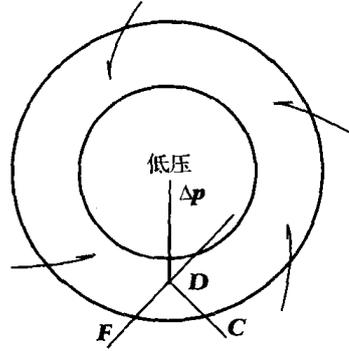


图 4.6 同心圆等压线理想风型

4.2.2 湍流扩散的基本理论

4.2.2.1 大气湍流的基本概念

低层大气中,空气的运动表现为接连不断的阵风起伏,其速度与方向随时都在变化,呈现极端不规则的湍流运动。大气湍流是导致烟羽扩散的主要原因,其扩散速率比分子扩散大 $10^5 \sim 10^6$ 倍。

大气湍流的形成和发展取决于两个因素,由机械或动力因素形成的为机械湍流,如近地空气与静止地面之间的相对运动导致地面风的切变而形成的湍流,空气流经地面障碍物时风向、风速的突然改变而形成的局地湍流;热力湍流则主要是因地面受热不均匀或大气的不稳定气温层结造成的。

大气湍流可视为是由无数个尺度大小不同的湍涡(涡旋)构成的,每一个湍涡都有不同的运动速度和方向,大湍涡中往往又包含许多大小不同的小湍涡,烟羽的扩散与弥散正是在这些湍涡的运动过程中完成的。当湍涡尺度比烟羽小得多时,烟羽在向下风向输运的过程中,小湍涡对其边缘的扰动作用使之与四周空气混合并缓慢膨胀,浓度逐渐降低,烟羽基本上以直线形状向下风向流动;当湍涡尺度比烟羽大得多时,烟羽基本上被湍涡夹带而整体转移,本身膨胀不大,烟羽呈长蛇形曲线运动;湍涡尺度与烟羽相当时,烟羽被湍涡拉开撕裂而强烈变形,其扩散最为迅速、有效。

气象观测中瞬时的风速脉动(涨落)和风向摆动是大气湍流的结果,其数值的大小间接反映了大气湍流的强度。空间直角坐标系中,任意点处 t 时刻的瞬时风速可表示为平均风速与脉动风速(涨落量)之和,即 $u = \bar{u} + u'$, $v = \bar{v} + v'$, $w = \bar{w} + w'$,脉动速度 u' 、 v' 、 w' 值可正可负,并随时间而变化。

在空间某一点处一定的时间段内以相等的时间间隔测得 x 、 y 、 z 方向上一系列的风速分量,并求其标准差,可求得该点处在测量时间段内相应方向上的大气湍流强度,如 x 方向为:

$$\sigma_u^2 = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (u_i - \bar{u})^2 = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (u'_i)^2 = \overline{(u')^2} \quad (4.2)$$

同样, y 、 z 方向分别为 $\sigma_v^2 = \overline{(v')^2}$, $\sigma_w^2 = \overline{(w')^2}$, 而相对湍流强度为:

$$i_x = \frac{\sigma_u}{u}, i_y = \frac{\sigma_v}{u}, i_z = \frac{\sigma_w}{u} \quad (4 \cdot 3)$$

风向的摆动则可用风向方位角的方差或标准差表示:

$$\sigma_\theta^2 = i_y^2 \quad (4 \cdot 4)$$

显然, i_x 、 i_y 、 i_z 及 $\sigma_\theta (= i_y)$ 数值的大小不仅与风场的性质有关, 还与测风时间及其间隔长短有关。

湍流强度及相对湍流强度不随时间改变时, 为平稳或定常的湍流场; 不随空间位置改变时, 为均匀湍流场; 时间与空间上均无变化时, 为平稳均匀湍流场, 这是湍流扩散理论的基本假设前提。

4·2·2·2 梯度扩散理论

如图 4.7 所示, 在烟羽中取一微小体积元 $dx dy dz$, 单位时间内, 从微元左边 ABCD 面进入微元的污染核素活度为 $\chi u dy dz$ (χ 为瞬时浓度, u 为 x 方向的瞬时风速分量), 从右边 A'B'C'D' 面流出的核素活度为 $[\chi u + \frac{\partial(\chi u)}{\partial x} dx] dy dz$, 因此, 单位时间内 x 方向上微元内核素活度的净增量为:

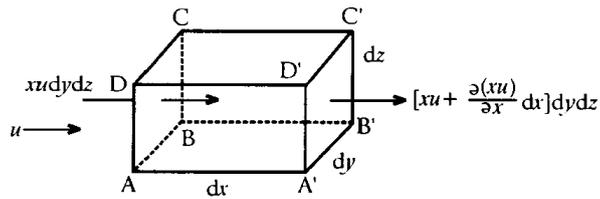


图 4.7 单位时间内微体积元中污染物质量的变化

$$- \frac{\partial}{\partial x} (\chi u) dx dy dz$$

同理, y 及 z 方向为:

$$- \frac{\partial}{\partial y} (\chi v) dx dy dz$$

$$- \frac{\partial}{\partial z} (\chi w) dx dy dz$$

则单位时间微元内核素活度的净增量为:

$$- \left[\frac{\partial(\chi u)}{\partial x} + \frac{\partial(\chi v)}{\partial y} + \frac{\partial(\chi w)}{\partial z} \right] dx dy dz \quad (4 \cdot 5)$$

另一方面, 微元内原有的核素活度为 $\chi dx dy dz$, 因此, 单位时间的净增量又可用下式表示:

$$\frac{\partial \chi}{\partial t} dx dy dz \quad (4 \cdot 6)$$

根据质量守恒定律, 式(4.5)应等于式(4.6), 即

$$\frac{\partial \chi}{\partial t} = - \left[\frac{\partial}{\partial x} (\chi u) + \frac{\partial}{\partial y} (\chi v) + \frac{\partial}{\partial z} (\chi w) \right] \quad (4 \cdot 7)$$

式中, χ ——微体积元中 t 时刻空气中污染核素的浓度;

u 、 v 、 w —— t 时刻瞬时风速在 x 、 y 、 z 方向的分量。

考虑到湍流引起的污染核素浓度及风速的波动, 将 $\chi = \bar{\chi} + \chi'$, $u = \bar{u} + u'$, $v = \bar{v} + v'$, $w = \bar{w} + w'$ 代入该式中, 并对两边取平均, 即有

$$\frac{\partial \bar{\chi}}{\partial t} + \bar{u} \frac{\partial \bar{\chi}}{\partial x} + \bar{v} \frac{\partial \bar{\chi}}{\partial y} + \bar{w} \frac{\partial \bar{\chi}}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial x}(-\overline{\chi' u'}) + \frac{\partial}{\partial y}(-\overline{\chi' v'}) + \frac{\partial}{\partial z}(-\overline{\chi' w'}) \quad (4 \cdot 8)$$

假设湍流引起的局地扩散通量与局地的浓度梯度成正比,其方向则与梯度方向相反,即有:

$$-\overline{\chi' u'} = K_x \frac{\partial \bar{\chi}}{\partial x}, \quad -\overline{\chi' v'} = K_y \frac{\partial \bar{\chi}}{\partial y}, \quad -\overline{\chi' w'} = K_z \frac{\partial \bar{\chi}}{\partial z} \quad (4 \cdot 9)$$

式中 K_x 、 K_y 、 K_z 为 x 、 y 、 z 方向的湍流扩散系数。将该关系式代入式 4·8 中,即有

$$\frac{\partial \bar{\chi}}{\partial t} + (\bar{u} \frac{\partial \bar{\chi}}{\partial x} + \bar{v} \frac{\partial \bar{\chi}}{\partial y} + \bar{w} \frac{\partial \bar{\chi}}{\partial z}) = \frac{\partial}{\partial x}(K_x \frac{\partial \bar{\chi}}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y}(K_y \frac{\partial \bar{\chi}}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z}(K_z \frac{\partial \bar{\chi}}{\partial z}) \quad (4 \cdot 10)$$

若选取空间坐标系的 x 轴与平均风向一致, y 轴为侧风方向, z 轴为铅直方向,则 $\bar{v} = \bar{w} = 0$,对于平稳均匀湍流场, K_x 、 K_y 、 K_z 均为常数,上式即可简化为

$$\frac{\partial \bar{\chi}}{\partial t} + \bar{u} \frac{\partial \bar{\chi}}{\partial x} = K_x \left(\frac{\partial^2 \bar{\chi}}{\partial x^2} \right) + K_y \left(\frac{\partial^2 \bar{\chi}}{\partial y^2} \right) + K_z \left(\frac{\partial^2 \bar{\chi}}{\partial z^2} \right) \quad (4 \cdot 11)$$

实际上扩散系数 K 的数值与大气湍流的尺度有关,并随时间不断变化,不可能直接求得。因此,该梯度扩散方程不能直接求解,只能针对具体条件对该式给出解析解。求解结果表明,烟羽中污染物浓度在侧风及铅直方向均呈高斯分布。

4·2·2·3 湍流统计理论

泰勒首先应用统计学方法研究湍流扩散问题,在平稳均匀的湍流场中建立起湍流扩散参数 $Y^2(t)$ 与另一个具有统计特征的相关系数 R 之间的关系,这样,只要求得 R 的具体函数式,通过积分即可求得扩散参数 $Y^2(t)$,进而求解污染物的湍流扩散问题。此后,萨顿首先求解了相关系数 R 的具体表达式,应用泰勒公式提出了求解污染物大气弥散的实用模式。

4·2·2·4 相似扩散理论

相似扩散理论认为,湍流由许多大小不同的湍涡构成,大湍涡失去稳定而分裂为小湍涡的同时发生了能量转移,这一过程一直持续到最小的湍涡转化为热能为止。从这一基本观点出发,利用量纲分析理论,建立某种统计物理量的函数关系及具体表达式,用以求解湍流扩散问题。

4·2·3 点源弥散的高斯模式

在统计分析大量实测资料的基础上,根据湍流理论可导出点源弥散模式,该模式有如下几个基本假设:

- ① 污染物浓度呈高斯(正态)分布;
- ② 风速是均匀稳定的,且大于 $1\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$;
- ③ 源强是均匀连续的;
- ④ 弥散过程中污染物质质量(或核素活度)是守恒的;
- ⑤ 湍流场是平稳均匀的。

4·2·3·1 连续点源的基本弥散方程

对于一个源强为 Q 的无界空间连续点源,可认为扩散与弥散过程为定常态,即空间某

一固定点处空气污染浓度不随时间改变($\frac{\partial \bar{\chi}}{\partial t} = 0$), 而仅为空间坐标的函数。而且, 当风速 $\bar{u} > 1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时, 可认为 x 方向上风的平流输运引起的污染物传输远远超过扩散过程所起的作用($\bar{u} \frac{\partial \bar{\chi}}{\partial x} \gg K_x \frac{\partial^2 \bar{\chi}}{\partial x^2}$), 故 $K_x \frac{\partial^2 \bar{\chi}}{\partial x^2}$ 项可忽略不计。因此, 梯度扩散方程[式(4·11)]可进一步简化为

$$\bar{u} \frac{\partial \bar{\chi}}{\partial x} = K_y \frac{\partial^2 \bar{\chi}}{\partial y^2} + K_z \frac{\partial^2 \bar{\chi}}{\partial z^2} \quad (4 \cdot 12)$$

该方程的边界条件为: $x = y = z = 0$ 时, $\bar{\chi} \rightarrow \infty$; $x, y, z \rightarrow \infty$ 时, $\bar{\chi} \rightarrow 0$ 。连续条件为污染物质量(活度)在输运过程中无耗减或增生而保持恒定, 即单位时间内通过下风向任意 $y-z$ 平面的物质量等于源强 \dot{Q} , 即

$$\dot{Q} = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \bar{\chi} \bar{u} \, dy \, dz \quad (4 \cdot 13)$$

在上述条件下, 式 4·12 的解为

$$\bar{\chi}(x, y, z) = \frac{\dot{Q}}{4\pi x (K_y K_z)^{1/2}} \exp\left[-\frac{\bar{u}}{4x} \left(\frac{y^2}{K_y} + \frac{z^2}{K_z}\right)\right] \quad (4 \cdot 14)$$

若取 $\sigma_y^2 = 2K_y x = \frac{2K_y x}{\bar{u}}$, $\sigma_z^2 = 2K_z x = \frac{2K_z x}{\bar{u}}$, 则有

$$\bar{\chi}(x, y, z) = \frac{\dot{Q}}{2\pi u \sigma_y \sigma_z} \exp\left[-\frac{1}{2} \left(\frac{y^2}{\sigma_y^2} + \frac{z^2}{\sigma_z^2}\right)\right] \quad (4 \cdot 15)$$

式中,

$\bar{\chi}$ ——空间 $P(x, y, z)$ 点处空气中污染物平均浓度, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;

\dot{Q} ——源强, 核素活度释放率, $\text{Bq} \cdot \text{s}^{-1}$;

σ_y, σ_z ——下风向 $x(\text{m})$ 距离处侧风方向及铅直方向烟羽浓度分布的标准差, m 。

式 4·15 中坐标原点为源释放点, x 轴为平均下风向, y 轴为侧风方向, z 轴为铅直方向。图 4.8 所示为高斯方程的坐标系(a)及弥散系数 σ_y, σ_z 的物理含义(b)示意图。

4·2·3·2 高位连续点源的弥散公式

当污染物通过高烟囱释放时, 可采用高位连续点源的弥散公式计算下风向空间任意点处的空气污染浓度, 这时, 坐标原点取释放点在地面上的投影点。由于烟羽的抬升, 应取有效烟囱高度 $h = h_s + \Delta h$ 作为释放高度。

(1) 空间任意点处的空气污染浓度 对于释放高度为 h 的高位连续点源, 其弥散公式是在假设地面完全反射的条件下由式(4·15)导出的, 空间 P 点处污染物的实际浓度可视为由两部分构成, 其中一部分是不受地面干扰条件下按式(4·15)求得的浓度, 另一部分是地面对烟羽的反射而增加的浓度。因此, P 点处空气污染浓度相当于地面上方一个位于 $(0, 0, h)$ 点上的实源和地面下方一个位于 $(0, 0, -h)$ 点上的像源在该点处造成的浓度之和, 故有

$$\bar{\chi}(x, y, z) = \frac{\dot{Q}}{2\pi u \sigma_y \sigma_z} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \left\{ \exp\left[-\frac{(z-h)^2}{2\sigma_z^2}\right] + \exp\left[-\frac{(z+h)^2}{2\sigma_z^2}\right] \right\} \quad (4 \cdot 16)$$

式中大括号中的第二项为地面反射源(像源)的贡献份额。

(2) 近地空气污染浓度 对气载流出物的环境影响评价中, 人们通常更关心近地面处

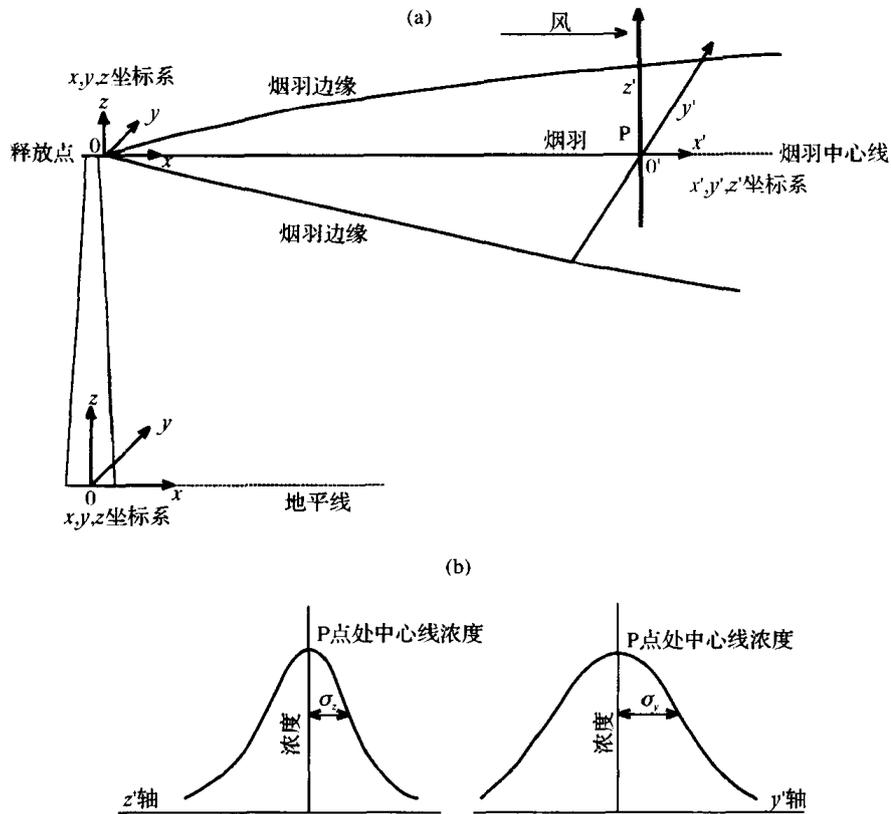


图 4.8 (a)高斯方程相应的坐标系
(b)弥散系数 σ_y 及 σ_z 物理含义示意图

空气的污染浓度,取 $z=0$ 代入式(4·16),即得到高位连续点源下风向近地空气污染浓度公式

$$\bar{\chi}(x, y, 0) = \frac{Q}{\pi u \sigma_y \sigma_z} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \exp\left(-\frac{h^2}{2\sigma_z^2}\right) \quad (4 \cdot 17)$$

(3) 烟羽中心轴线下近地空气污染浓度 由式(4·17)计算结果可知,近地空气污染浓度在 x 轴两侧呈对称分布,轴上浓度最大,向 $+y$ 、 $-y$ 两侧逐渐降低。取 $y=0$ 代入式(4·17),即可求得烟羽中心轴线下近地空气污染浓度

$$\bar{\chi}(x, 0, 0) = \frac{Q}{\pi u \sigma_y \sigma_z} \exp\left(-\frac{h^2}{2\sigma_z^2}\right) \quad (4 \cdot 18)$$

(4) 近地空气最大污染浓度及最大浓度点 图 4.9 为按式(4·18)求得的不同大气稳定度条件下一个释放高度为 100m 的高位连续点源下风向中心轴线下近地空气污染浓度随距离 x 的变化。从图中可见,对于高位源来说,开始时空气污染浓度随距离 x 增加而增大,当达到最大值($\bar{\chi}_{\max}$)后,又逐渐减小。在 σ_y/σ_z 比值变化不大的情况下,近地空气最大污染浓度为

$$\bar{\chi}_{\max} \approx \frac{2Q}{\pi e u h^2} \frac{\sigma_z}{\sigma_y} \quad (4.19)$$

式中, e 为自然对数的底(2.718)。

最大浓度点在 x 轴上的位点 χ_{\max} 相应于

$$\sigma_z \Big|_{\bar{\chi}_{\max}} = \frac{h}{\sqrt{2}} \quad (4.20)$$

例如, 当 $h = 100\text{m}$ 时, 最大污染点位于相应于 $\sigma_z = 71\text{m}$ 的距离处, 在 D 类天气条件下, $\chi_{\max} \approx 1000\text{m}$ 。

4.2.3.3 地面连续点源的弥散公式

厂房建筑物局部通风系统的无组织排放一般按地面连续点源的条件考虑, 对式(4.16)取 $h = 0$, 即有

$$\bar{\chi}(x, y, z) = \frac{Q}{\pi \bar{u} \sigma_y \sigma_z} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{y^2}{\sigma_y^2} + \frac{z^2}{\sigma_z^2}\right)\right] \quad (4.21)$$

取 $z = 0$, 即得到近地空气污染浓度

$$\bar{\chi}(x, y, 0) = \frac{Q}{\pi \bar{u} \sigma_y \sigma_z} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \quad (4.22)$$

再取 $y = 0$, 即得到中心轴线上近地空气污染浓度

$$\bar{\chi}(x, 0, 0) = \frac{Q}{\pi \bar{u} \sigma_y \sigma_z} \quad (4.23)$$

由式(4.23)可见, 地面点源条件下, 下风向空气污染浓度随距离增大而呈幂函数下降。

4.2.3.4 短期释放的时间积分浓度

意外或事故性释放的持续时间是有限的, 一般很难确定释放期间污染物的释放率, 只能大致估算核素的总释放量。这时, 计算空间某点处的时间积分浓度对于空气污染导致的外照射及吸入内照射剂量估算往往更为方便。将一次释放的核素总量 Q (Bq) 取代式(4.16)~式(4.23)中的 Q , 即可求得烟羽完全通过空间 P 点所致的时间积分浓度 ψ_c (Bq·s·m⁻³)。

如果整个释放、输运期间气象条件(风向、风速和稳定度)保持不变, 设释放持续时间为 t_r , 烟羽长度即近似等于 $\bar{u}t_r$ 。实际情况下, 在释放开始后 x/\bar{u} 时刻, 烟羽前沿才到达下风向距离为 x 的 P 点处, 因此, 如要估算从释放开始到某一时刻 t (如当地公众从现场撤离)这一特定时间段内的时间积分浓度, 则有

$$\psi_t = \frac{1}{t_r} \left(t - \frac{x}{\bar{u}}\right) \psi_c \quad (4.24)$$

对于长达数小时以至数天的释放, 释放期间风速、风向和稳定度会有所变化, 源强也逐渐变小, 这时, 可将整个释放时段按气象参数及源强的变化划分为几个小段, 对每一小段按上述方法求时间积分浓度而后求和, 即为整个释放期间总的时间积分浓度。

4.2.3.5 长期释放的年平均浓度

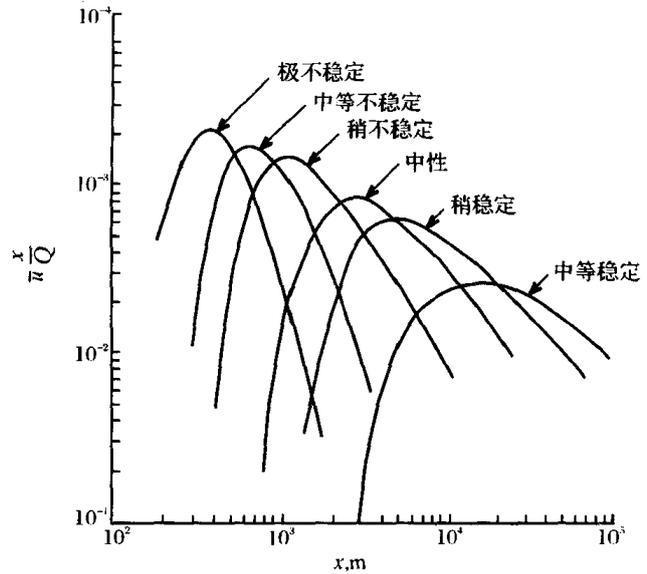


图 4.9 100m 高烟囱下风向的浓度分布

估算气载流出物释放造成的公众年照射剂量,需要估算在假设源强 Q 为常数的前提下整个日历年内烟囱周围不同地点处空气的年平均污染浓度。

对于全年气象条件的变化,可通过对风向、风速、稳定度联合频率的统计计算加以描述。当气象资料中采用 16 个风向方位时,释放点周围 $0^\circ \sim 360^\circ$ 范围内相应地划分为 16 个扇形区,每一个扇形区的角宽度等于 $\pi/8$ 弧度(22.5°),其中心线按顺时针方向依次对应于风向方位 N、NNE、NE、……、NNW(图 9.2)。首先根据全年的风向统计资料,分别求得每一方位风向的出现频率 P_i ($i=1 \sim 16$,为相应的扇形区编号);然后,对每一风向方位,按帕斯奎尔大气稳定度分类表(表 4.3)内采用的风速分级,求得每一风速级的出现频率 $P_{i,k}$ ($k=1 \sim 5$,为风速分级数);最后,根据日射强度或云量等参数,按该表确定各类大气稳定度的出现频率 $P_{i,j,k}$ ($j=1 \sim 6$,为稳定度类别数),由此求得的 $P_{i,j,k}$ 称为风向、风速、稳定度联合频率。

考虑到 1 年中同一扇区内风向的摆动,可假设扇形区内空气污染浓度只随距离 x 变化,同一距离的圆弧上各点的浓度呈均匀分布,则 i 方位扇形区内距烟囱不同距离处近地空气的年平均污染浓度为

$$\bar{\chi}_{a,i}(x) = \frac{2.032 \bar{Q}_a}{x} \sum_{j=1}^6 \sum_{k=1}^5 \frac{P_{i,j,k}}{\sigma_{z,j} u_{j,k}} \exp\left(-\frac{h_{j,k}^2}{2\sigma_{z,j}^2}\right) \quad (4 \cdot 25)$$

式中,

$\bar{\chi}_{a,i}(x)$ —— i 扇形区内 x 距离处近地空气的年平均污染浓度, $Bq \cdot m^{-3}$;

\bar{Q}_a ——核素的年平均释放率, $Bq \cdot s^{-1}$;

$\sigma_{z,j}$ —— j 类稳定度时的垂直弥散系数, m;

x ——距烟囱中心点的距离, m;

$\bar{u}_{j,k}$ —— j 稳定度、 k 风速级时有效释放高度上的平均风速, $m \cdot s^{-1}$;

$h_{j,k}$ —— j 稳定度、 k 风速级时的有效释放高度, m。

其中, $h_{j,k} = h_s + \Delta h_{j,k}$, $\Delta h_{j,k}$ 为 j 稳定度、 k 风速级时的烟羽抬升高度,为简化计算,有时可取 $h_{j,k} \approx h_s$ 。

表 4.2 为对苏州市 1980 年全年气象资料统计处理后求得的 $P_{i,j,k}$ 的数值分布^[11],图 4.10 为按上述方法求得的该市一燃煤电厂煤烟排放所致半径 60km 范围内环境近地空气中天然铀年平均浓度的分布^[11]。

表 4.2 苏州市 1980 年全年的风向、风速、稳定度联合频率^[11]

风速 ($m \cdot s^{-1}$)	稳定度	风 向																
		N	NNE	NE	ENE	E	ESE	SE	SSE	S	SSW	SW	WSW	W	WNW	NW	NNW	静风
$u_{10} < 2$	A	0.21	0.14	0.14	-	-	0.07	0.07	0.07	0.21	-	-	0.07	0.07	0.07	0.14	0.07	1.83
	B	0.14	-	0.14	0.07	0.07	-	0.07	-	0.14	0.14	-	0.14	-	-	0.07	0.14	1.88
	D	0.07	0.14	0.34	0.14	0.28	0.07	0.14	0.07	0.07	0.07	-	-	-	0.07	0.14	0.21	3.96
	F	0.07	0.14	0.35	0.21	0.27	0.41	0.21	0.27	0.21	0.21	0.07	0.07	0.21	0.14	0.41	0.14	9.73

风速 ($m \cdot s^{-1}$)	稳定度	风 向																	
		N	NNE	NE	ENE	E	ESE	SE	SSE	S	SSW	SW	WSW	W	WNW	NW	NNW	静风	
$2 \leq u_{10} < 3$	A	0.21	0.27	0.34	0.48	0.21	0.21	0.34	0.48	0.34	0.27	0.07	0.14	0.07	0.14	0.41	0.34		
	B	0.07	0.21	0.21	0.34	0.21	0.07	0.41	0.27	0.14	0.21	-	0.07	0.07	0.07	0.07	0.14		
	C	0.48	0.21	0.61	0.88	0.55	0.82	0.68	0.62	0.55	0.35	0.14	-	0.34	0.14	1.50	0.55		
	D	0.89	0.96	1.24	0.84	1.65	1.17	0.96	0.89	0.82	0.75	0.34	0.07	-	0.69	1.17	1.10		
	E	0.55	0.48	0.68	0.61	0.88	1.10	0.68	0.69	0.55	0.27	0.21	0.07	-	0.07	0.62	0.41		
	F	0.34	0.27	0.27	0.82	1.23	0.48	0.89	0.75	0.75	0.34	0.14	0.07	0.07	0.14	0.62	0.62		
$3 \leq u_{10} < 5$	B	-	0.07	0.27	0.07	0.14	0.21	0.48	0.48	0.62	0.34	0.21	-	0.14	0.21	0.89	0.21		
	C	0.27	0.14	0.55	0.34	0.61	0.48	0.61	0.61	0.48	0.48	0.21	0.07	-	0.35	0.41	0.28		
	D	0.27	0.48	1.37	0.82	1.10	0.82	0.82	0.76	0.34	0.28	0.21	0.07	-	0.68	1.10	0.82		
	E	-	0.07	-	0.07	0.14	0.14	0.34	0.34	0.14	0.07	-	-	-	0.07	0.07	0.42	0.14	
$5 \leq u_{10} < 6$	C	-	-	-	-	0.07	0.07	0.07	0.07	-	0.07	-	-	-	0.21	0.07	0.21		
	D	0.14	-	0.27	0.14	0.48	0.21	0.34	0.48	-	0.14	-	-	-	0.14	0.49	0.49		
$u_{10} \geq 6$	C	0.07	-	-	0.07	-	-	0.21	-	0.14	-	-	-	0.07	0.07	0.48	0.07		
	D	0.07	0.07	0.07	0.14	0.21	0.14	0.55	0.34	0.14	0.14	-	-	-	0.34	0.62	0.21		
合 计		3.85	3.65	6.85	6.04	8.10	6.47	7.87	7.19	5.64	4.13	1.60	0.84	1.11	3.60	9.63	6.15	17.40	

4.2.4 高斯模式中各项参数值的选定

高斯模式用于大气弥散计算,必须正确选定模式中各项参数的数值,首先应对气象资料进行必要的分析,确定大气的稳定度类型。

4.2.4.1 大气稳定度的分类

(1) 日射-云量和风速方法 帕斯奎尔和特纳提出的日射-云量和风速方法最大的优点是可根据常规气象观测资料进行大气稳定度分类(表 4.3)。它将大气稳定度划分为 A—F 六个等级,其中, A 为极不稳定条件, B 为不稳定条件, C 为稍不稳定条件, D 为中性条件, E 为稍稳定条件, F 为稳定条件。由 A 至 F 表示大气弥散强度逐渐减弱。

日落至次日日出之间为夜晚,无论何种天气状况,夜晚前后 1h 内稳定度均定为 D 类条件。凡阴雨天,无论昼夜亦均定为 D 类条件。

白天按地面风速与日射强弱的不同

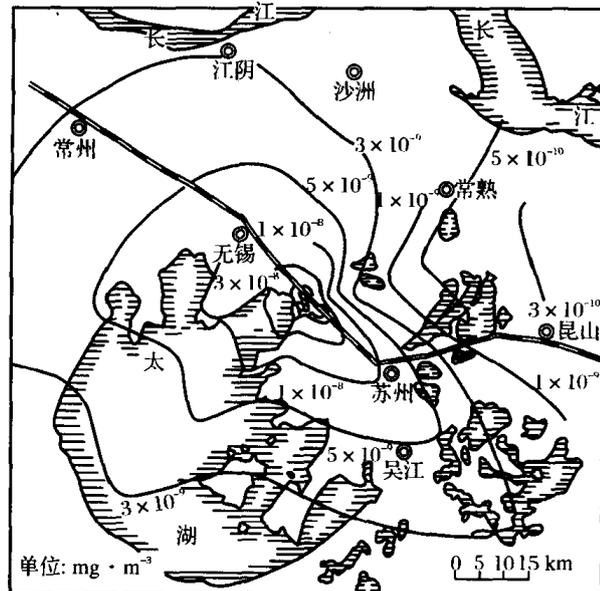


图 4.10 某燃煤电厂周围环境空气中天然铀年平均污染浓度分布

组合进行分类,强日射相当于碧空下太阳高度角大于 60° 的条件,弱日射相当于碧空下太阳高度角小于 35° 的条件。在中纬度地区,仲夏晴天中午为强日射,隆冬晴天中午为弱日射。确定日射强弱还应考虑云量,6/10~9/10 的碎中云将使日射由强减弱为中,6/10~9/10 的碎低云则使减至弱。

表 4.3 帕斯奎尔大气稳定度分类表

10m 高处风速 u_{10} (地面风速, $m \cdot s^{-1}$)	白天日射强度			夜晚天空云量	
	强	中	弱	满天薄云或云量 $\geq 5/10$	云量 $\leq 4/10$
$u_{10} < 2$	A	A-B	B	-	-
$2 \leq u_{10} < 3$	A-B	B	C	E	F
$3 \leq u_{10} < 5$	B	B-C	C	D	E
$5 \leq u_{10} < 6$	C	C-D	D	D	D
$u_{10} \geq 6$	C	D	D	D	D

夜晚按地面风速及云量的不同组合进行分类,晴夜 $u_{10} < 2m \cdot s^{-1}$ 时,稳定度可定为 F 类。

帕斯奎尔方法一般适用于开阔的乡村地区,用于对城市地区进行大气分类不十分可靠。

我国国家标准《制定地方大气污染物排放标准的技术原则和方法》(GB3840-83)推荐采用经特纳修订后的帕斯奎尔分类方法,并根据国情作了必要的变动。分类的具体步骤是:

① 太阳高度角的计算

$$h_0 = \arcsin[\sin\Phi \sin\delta + \cos\Phi \cos\delta \cos(15t + \lambda - 300)] \quad (4 \cdot 26)$$

式中,

Φ ——当地的纬度;

λ ——当地的经度;

δ ——太阳倾角,按所用气象资料相应的月、日,按表 4.4 求得;

t ——气象资料采集的北京时间。

② 确定日射强度等级,由云量和太阳高度角 h_0 ,按表 4.5 确定之。

③ 确定大气稳定度类型,由日射强度和地面风速,按表 4.6 确定之。

日射强度也可直接用日射强度仪或其它类似的仪器测得,当有这类测量资料可利用时,可按表 4.7 确定白天的稳定度,夜晚则用净辐射仪测得的净辐射通量按同表确定稳定度。

表 4.4 太阳倾角 δ (4 年平均值)⁽⁸⁾

日期	1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月
1	-23.1	-17.2	-7.80	4.30	15.0	22.0	23.1	18.2	8.40	-3.00	-14.3	-21.8
2	-23.0	-16.9	-7.40	4.70	15.3	22.2	23.1	17.9	8.10	-3.40	-14.6	-21.9
3	-22.8	-16.6	-7.00	5.10	15.6	22.3	23.0	17.6	7.70	-3.80	-15.0	-22.1
4	-22.7	-16.3	-6.60	5.50	15.9	22.4	22.9	17.4	7.40	-4.10	-15.3	-22.2
5	-22.6	-16.0	-6.20	5.90	16.2	22.5	22.8	17.1	7.00	-4.50	-15.6	-22.3
6	-22.5	-15.7	-5.80	6.30	16.4	22.6	22.7	16.8	6.60	-4.90	-15.9	-22.4
7	-22.4	-15.4	-5.40	6.60	16.7	22.7	22.6	16.5	6.20	-5.30	-16.2	-22.6
8	-22.3	-15.1	-5.10	7.00	17.2	22.8	22.5	16.3	5.90	-5.79	-16.5	-22.7

续表

日期	1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月
9	-22.1	-14.8	-4.70	7.40	17.2	22.9	22.4	16.1	5.50	-6.10	-16.7	-22.8
10	-22.0	-14.5	-4.30	7.80	17.5	23.0	22.3	15.7	5.10	-6.50	-17.0	-22.9
11	-21.8	-14.2	-3.90	8.10	17.8	23.1	22.2	15.4	4.70	-6.80	-17.3	-23.0
12	-21.7	-13.8	-3.50	8.50	18.0	23.2	22.0	15.1	4.40	-7.20	-17.6	-23.1
13	-21.5	-13.5	-3.10	8.90	18.3	23.2	21.9	14.8	4.00	-7.60	-17.9	-23.1
14	-21.4	-13.2	-2.70	9.20	18.5	23.3	21.7	14.5	3.60	-8.00	-18.1	-23.2
15	-21.2	-12.8	-2.30	9.60	18.8	23.3	21.6	14.2	3.20	-8.30	-18.4	-23.3
16	-21.0	-12.5	-1.90	10.0	19.0	23.4	21.5	13.9	2.80	-8.70	-18.6	-23.3
17	-20.8	-12.1	-1.50	10.3	19.2	23.4	21.3	13.5	2.50	-9.10	-18.9	-23.4
18	-20.6	-11.8	-1.10	10.7	19.5	23.4	21.1	13.2	2.10	-9.40	-19.1	-23.4
19	-20.4	-11.4	-0.80	11.0	19.7	23.4	20.9	12.9	1.70	-9.80	-19.4	-23.4
20	-20.2	-11.0	-0.40	11.4	19.9	23.4	20.7	12.6	1.30	-10.2	-19.6	-23.4
21	-20.0	10.7	0.00	11.7	20.1	23.4	20.5	12.3	0.90	-10.5	-19.8	-23.4
22	-19.8	-10.4	0.40	12.1	20.3	23.4	20.3	11.9	0.50	-11.0	-20.1	-23.4
23	-19.5	-10.0	0.80	12.4	20.5	23.4	20.1	11.6	0.10	-11.3	-20.3	-23.4
24	-19.3	-9.60	1.30	12.7	20.6	23.4	19.9	11.2	0.00	-11.6	-20.5	-23.4
25	-19.1	-9.30	1.70	13.0	20.8	23.4	19.7	10.9	-0.60	-12.0	-20.7	-23.4
26	-18.8	-8.90	2.10	13.4	21.1	23.4	19.5	10.6	-1.10	-12.3	-20.9	-23.4
27	-18.6	-8.50	2.46	13.6	21.2	23.4	19.3	10.2	-1.50	-12.6	-21.1	-23.3
28	-18.3	-8.10	2.80	14.0	21.4	23.3	19.1	9.90	-1.90	-13.0	-21.3	-23.3
29	-18.0		3.20	14.4	21.0	23.3	18.9	9.50	-2.20	-13.3	-21.4	-23.3
30	-17.8		3.60	14.7	21.7	23.3	18.6	9.20	-2.60	-13.7	-21.6	-23.2
31	-17.5		4.00		21.9		18.4	8.80		-14.0		-23.2

表 4.5 日射强度的等级划分

云量(1/10)	太阳高度角 h_0				
	夜间	$h_0 \leq 15^\circ$	$15^\circ < h_0 \leq 35^\circ$	$35^\circ < h_0 \leq 65^\circ$	$h_0 > 65^\circ$
$\leq 4 / \leq 4$	-2	-1	+1	+2	+3
5~7 / ≤ 4	-1	0	+1	+2	+3
$\geq 8 / \leq 4$	-1	0	0	+1	+1
$\geq 5 / 5 \sim 7$	0	0	0	0	+1
$\geq 8 / \geq 8$	0	0	0	0	0

表 4.6 大气稳定度分类

地面风速 u_{10} ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)	日射强度等级					
	+3	+2	+1	0	-1	-2
≤ 1.9	A	A-B	B	D	E	F
2~2.9	A-B	B	C	D	E	F
3~4.9	B	B-C	C	D	D	E
5~5.9	C	C-D	D	D	D	D
≥ 6	C	D	D	D	D	D

表 4.7 按日射强度及净辐射通量确定大气稳定度

地面风速 $u_{10}, \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	白天日射强度 $R_D(\text{Ly}\cdot\text{h}^{-1})^*$				夜晚净辐射 $R_N(\text{Ly}\cdot\text{h}^{-1})^\text{①}$		
	≥ 50	25~50	12.5~25	≤ 12.5	> -1.8	-1.8~-3.6	≤ -3.6
$u_{10} < 2$	A	A-B	B	D	D	-	-
$2 \leq u_{10} < 3$	A-B	B	C	D	D	E	F
$3 \leq u_{10} < 5$	B	B-C	C	D	D	D	E
$5 \leq u_{10} < 6$	C	C-D	D	D	D	D	D
$u_{10} \geq 6$	C	D	D	D	D	D	D

① $1\text{ly} = 1\text{Cal}\cdot\text{cm}^{-2} = 4.187\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$ 。

采用日射-云量和风速方法确定大气稳定度时需要的基本仪器是风速计。云量和日射强度可根据观测结果或按当地的经纬度位置、气象资料相应的月、日、时计算,或采用直接日射强度仪及净辐射仪测量,有时可采用附近气象站的资料。

(2) 气温直减率方法 美国原子能委员会(USAEC)通过大量的现场弥散实验,得到了气温直减率和示踪物浓度分布之间的关系式,进而得到了气温直减率与帕斯奎尔稳定度之间的对应关系,据此提出了根据气温直减率确定大气稳定度的方法(表 4.8)。

表 4.8 气温直减率 γ 与大气稳定度

$\gamma(\text{K}/100\text{m})$	< -1.9	-1.9~-1.7	-1.7~-1.5	-1.5~-0.5	0.5~1.5	> 1.5
	A	B	C	D	E	F

即使在风速很小的情况下, $\gamma(\Delta T/\Delta z)$ 的测量也是比较简单的。经验表明,在十分不利于低位释放弥散的稳定大气状态下,这是确定大气湍流强度最可靠的方法,但一般不适用于不稳定条件及高位释放的情况。

(3) 风向脉动法 风向脉动直接反映大气的湍流强度,测得风向脉动在横向和铅直方向的标准偏差 σ_θ 和 σ_φ 后,即可求得相应的 σ_y 和 σ_z 值。一般情况下,对铅直方向上风向脉动的标准偏差 σ_φ 的测量比较困难,因此斯莱德提出了按风向水平脉动的标准差 σ_θ 确定大气稳定度的方法(表 4.9),他建议按下式计算 σ_θ :

$$\sigma_\theta = \frac{\theta_{\max} - \theta_{\min}}{6} \quad (4.27)$$

式中,

θ_{\max} —— 1h 内风向最大脉动角度;

θ_{\min} —— 1h 内风向最小脉动角度。

表 4.9 σ_θ 与大气稳定度

σ_θ	25°	20°	15°	10°	5°	2.5°
	A	B	C	D	E	F

(4) “分离西格马”方法 该方法以气温直减率 γ 表征大气的垂直湍流强度,以风向脉动 σ_θ 表征水平湍流强度,其基本原理是 γ 只对应于热力湍流, σ_θ 则表征了机械湍流。显然,按该方法确定大气稳定度需要 γ 和 σ_θ 两项参数,按 γ 值采用表 4.8 确定的大气稳定度用于确定 σ_z 值,按 σ_θ 值采用表 4.9 确定的大气稳定度用于确定 σ_y 值。

4.2.4.2 弥散系数 σ_y 及 σ_z 值的选定

如前所述,弥散系数 σ_y 、 σ_z 分别表示侧风方向与铅直方向上污染物浓度分布的标准差,某种意义上说明烟羽在这两个方向上扩展范围的大小,其数值的大小与下风向距离及大气湍流强度(稳定度)有关。此外,还应考虑地形特征、地表粗糙度、释放高度及建筑物尾流效应等因素的影响。

(1) 帕斯奎尔-吉福特方法 帕斯奎尔最早提出了不同稳定度条件下 σ_y 、 σ_z 值与下风向距离 x 之间的关系曲线,吉福特根据众多实验结果对其作了必要的修正。这两组曲线(图 4.11)与帕斯奎尔-特纳大气稳定度分类表相结合,在大气弥散计算中得到了广泛的应用。应该指出,帕斯奎尔的稳定性分类及弥散系数曲线是在平坦地形和地面释放的实验条件下求得的,而且一般只适用于 20km 以内的距离范围,用于高位释放及远距离空气污染浓度估

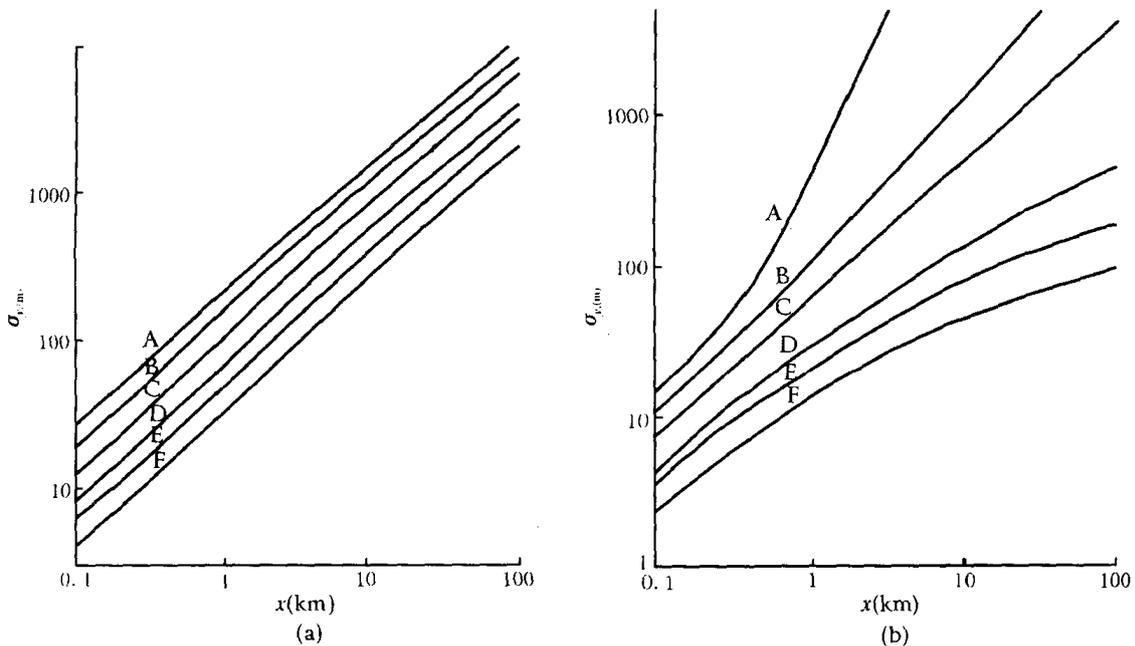


图 4.11 (a) σ_y 随距离的变化; (b) σ_z 随距离的变化

算时尤须慎重。

(2) 沃格特方法 对于地面粗糙度较大的丘陵地区,可按沃格特公式计算 σ_y 及 σ_z 值。

$$\begin{aligned}\sigma_y &= P_y x^{q_y} \\ \sigma_z &= P_z x^{q_z}\end{aligned}\quad (4 \cdot 28)$$

对应于不同稳定度的 P_y 、 q_y 、 P_z 、 q_z 值见表 4.10。

(3) 布里格斯方法 帕斯奎尔-吉福特方法、沃格特方法及其它各种用于选定弥散系数

值的方法都是根据具体的研究对象及实验条件下得到的结果提出的,有相当大的局限性。为此,布里格斯试图求得可广泛适用的弥散系数表达式,他应用关于公式渐近线的理论,用内插公式将包括帕斯奎尔曲线在内的几种弥散系数曲线统一起来,提出了可广泛适用的公式(表 4.11)。这些公式适用于 $h_s \leq 100\text{m}$ 的高位源,下风向距离 $x < 10\text{km}$ 的范围。

表 4.10 丘陵地区弥散系数计算中各系数的值

烟囱高度 h_s (m)	系数	稳定度类型					
		A	B	C	D	E	F
50	p_y	1.053	0.876	0.659	0.640	0.801	1.294
	q_y	0.833	0.823	0.807	0.784	0.754	0.718
	p_z	0.151	0.127	0.165	0.215	0.264	0.241
	q_z	1.129	1.108	0.996	0.885	0.774	0.662
100	p_y	0.170	0.324	0.466	0.504	0.411	0.253
	q_y	1.296	1.025	0.866	0.818	0.882	1.057
	p_z	0.051	0.070	0.137	0.265	0.487	0.717
	q_z	1.317	1.151	0.985	0.818	0.652	0.486
180	p_y	0.671	0.415	0.232	0.218	0.345	0.671
	q_y	0.903	0.903	0.903	0.903	0.903	0.903
	p_z	0.0245	0.0330	0.104	0.307	0.546	0.484
	q_z	1.50	1.32	0.997	0.734	0.557	0.500

表 4.11 布里格斯提出的 σ_y 、 σ_z 系数值公式($10\text{m} < x < 10^4\text{m}$)^①

稳定度	σ_y	σ_z
	开阔的农村地区	
A	$0.22x(1+0.0001x)^{-1/2}$	$0.20x$
B	$0.16x(1+0.0001x)^{-1/2}$	$0.20x$
C	$0.11x(1+0.0001x)^{-1/2}$	$0.05x(1+0.0002x)^{-1/2}$
D	$0.08x(1+0.0001x)^{-1/2}$	$0.06x(1+0.0015x)^{-1/2}$
E	$0.06x(1+0.0001x)^{-1/2}$	$0.03x(1+0.0003x)^{-1}$
F	$0.04x(1+0.0001x)^{-1/2}$	$0.01x(1+0.0003x)^{-1}$
	城市地区	
A-B	$0.32x(1+0.0004x)^{-1/2}$	$0.24x(1+0.0001x)^{-1/2}$
C	$0.22x(1+0.0004x)^{-1/2}$	$0.20x$
D	$0.16x(1+0.0004x)^{-1/2}$	$0.14x(1+0.0003x)^{-1/2}$
E-F	$0.11x(1+0.0004x)^{-1/2}$	$0.08x(1+0.0015x)^{-1/2}$

① x 以 m 为单位, σ_y 及 σ_z 的单位亦为 m。

4.2.4.3 烟羽抬升和有效释放高度

从烟囱口排出的烟流一般先沿铅直方向继续上升,经过一段距离输运后逐渐变平,因此,烟羽的最终高度一般都比烟囱更高,计算中必须考虑烟羽的抬升高度及有效释放高度

$$h = h_s + \Delta h \quad (4.29)$$

式中,

h ——有效释放高度, m;
 h_s ——烟囱高度, m;
 Δh ——烟羽抬升高度, m。

造成烟羽抬升的原因, 一是烟囱出口处烟流具有一定的初始动量, 二是烟流温度高于周围空气温度而产生的浮力效应。对这两种作用的影响因素包括排放因素及气象因素两类, 前者如烟囱出口处烟流的初速度、烟流温度及烟囱的内外直径; 后者包括烟囱高度 h_s 处的平均风速、气温、风速垂直切变、湍流强度(稳定度)等。

一般情况下, 核设施气载放射性流出物的温度都不高, 可不考虑浮力效应对烟羽抬升的影响; 当与动力厂蒸汽合并排放或伴有高温放射性的释放时, 就应考虑浮力的影响。

烟囱附近建筑物造成的风场畸变会使烟羽下沉, 降低有效释放高度, 为避免这种影响, 烟囱高度 h_s 至少应为邻近最高建筑物的 2~2.5 倍, 烟流的初速度应尽可能地大。

(1) 高烟囱的烟羽抬升 对于高度为邻近最高建筑物的 2~2.5 倍以上的烟囱, 在中性或不稳定(稳定度 A~D)条件下, 过渡段内烟羽抬升高度 Δh 可用下式计算

$$\Delta h = 1.44 D_i \left(\frac{W_0}{u_s} \right)^{2/3} \left(\frac{x}{D_i} \right)^{1/3} - C \quad (4 \cdot 30)$$

式中,

W_0 ——烟羽出口初速度, $m \cdot s^{-1}$;
 x ——下风向距离, m;
 \bar{u}_s ——烟囱高度 h_s 处平均风速, $m \cdot s^{-1}$;
 D_i ——烟囱出口内径, m。

其中 C 为烟羽下沉修正因子(m), $W_0/\bar{u}_s \geq 1.5$ 时, 取 $C = 0$; $W_0/\bar{u}_s < 1.5$ 时, 取 $C = 3(1.5 - \frac{W_0}{\bar{u}_s}) D_e$, D_e 为烟囱出口外径(m)。

此外, 还应同时按下式估算 Δh

$$\Delta h = 3 \frac{W_0}{u_s} D_i \quad (4 \cdot 31)$$

取两式估算值中较小的 Δh 值作为烟羽抬升高度。经下沉修正后烟羽有效高度 h 如低于邻近任一建筑物的 2~2.5 倍, 则应慎重考虑。

在稳定条件(稳定度 E、F)下, 按式(4.31)估算的 Δh 值应与按下列两式的估算值作比较, 取其中最小值为烟羽抬升高度

$$\Delta h = 4 \left(\frac{F_m}{S} \right)^{1/4} \quad (4 \cdot 32)$$

$$\Delta h = 1.5 S^{-1/6} \left(\frac{F_m}{u_s} \right)^{1/3} \quad (4 \cdot 33)$$

式中, F_m 为动量通量参数

$$F_m = W_0^2 \left(\frac{D_i}{2} \right)^2 \quad (4 \cdot 34)$$

S 为稳定度参数, 对 E 类稳定度, $S = 8.7 \times 10^{-4}$, 对 F 类稳定度, $S = 1.75 \times 10^{-3}$ 。

(2) 低烟囱的烟羽抬升 对于高度低于邻近最高建筑物的 2~2.5 倍的烟囱, 当 h_s 低

于最高建筑物高度时,按地面源考虑,取 $h = 0$; 当 h_s 高于最高建筑物高度但不超过其 2.5 倍时,可根据 W_0/\bar{u}_s 比值的大小,分三种情况考虑。

① $W_0/\bar{u}_s > 5$, 按高位源考虑;

② $W_0/\bar{u}_s < 1$ 或未知时,按地面源考虑;

③ $W_0/\bar{u}_s = 1 \sim 5$ 时,假设一个混合模式,将其中一段时间视为高位释放,其余时间内视为地面释放。为此,按下列两式确定夹带系数 E_t :

$$E_t = 2.58 - 1.58(W_0/\bar{u}_s), W_0/\bar{u}_s = 1 \sim 1.5 \quad (4 \cdot 35)$$

$$E_t = 0.3 - 0.06(W_0/\bar{u}_s), 1.5 < W_0/\bar{u}_s \leq 5.0 \quad (4 \cdot 36)$$

在整个释放期间, $100(1 - E_t)\%$ 的时段视为高位释放,其余时段视为地面释放,按两时段的相对长短,将按两种释放条件求得的空气污染浓度加权求和。

4.2.4.4 有效释放高度处的平均风速

高位源释放条件下,烟羽有效释放高度处的平均风速决定了其向下风向输运的快慢。因此,采用高斯模式进行大气弥散计算时,应采用适当的风速廓线模式,根据地面风速 \bar{u}_{10} 计算之。

风速廓线模式是描述风速随高度变化的数学表达式,目前常用的有对数律风速廓线模式及幂函数风速廓线模式。

幂函数风速廓线模式是在近地层、中性气温层结及平坦下垫面的前提下推导求得的,其数学表达式为

$$\bar{u}_h = \bar{u}_{10} \left(\frac{h}{10}\right)^m \quad (4 \cdot 37)$$

式中,

\bar{u}_h ——有效源释放高度(h)处的平均风速, $m \cdot s^{-1}$;

\bar{u}_{10} ——离地面 10m 高处的平均风速(地面风速), $m \cdot s^{-1}$;

h ——有效源释放高度, m;

m ——风速廓线系数,无量纲,其数值与地面粗糙度及气温层结有关。

表 4.12 为不同下垫面及稳定度条件下的风速廓线系数值。

4.2.5 特殊条件下的弥散计算

4.2.5.1 混合层高度的影响

许多情况下,大气温度层结会呈现下部递减、上部逆温的状态,即低层为不稳定大气,离地几百米至 1~2km 以上则存在一个明显的逆温层。这时,长距离输运的烟羽在铅直方向扩展的上界到达逆温层底后(图 4.12),污染物的向上弥散将受到遏制,只局限于地面与逆温层底之间厚度为 H_m 的一层不稳定大气(混合层)内, H_m 称为混合层高度。

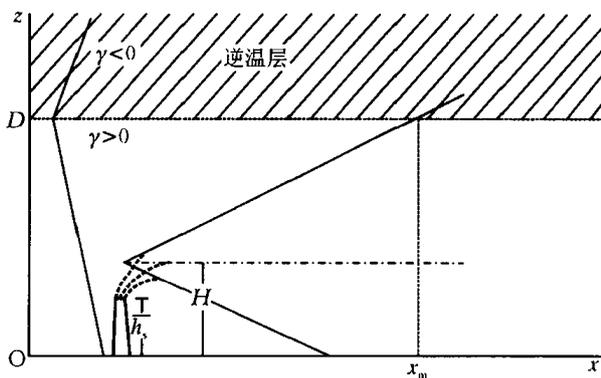


图 4.12 混合层内封闭型弥散示意图

表 4.12 风速廓线系数 m 值

下垫面	稳 定 度 类 型					
	A	B	C	D	E	F
海 或 湖	0.03	0.05	0.06	0.08	0.10	0.12
农 田	0.10	0.15	0.20	0.25	0.35	0.40
丘 陵	0.11	0.12	0.14	0.25	0.39	0.44
山区或城市	0.16	0.24	0.32	0.40	0.56	0.64

对于在有限高度的混合层内的这类封闭型弥散,可将逆温层底和地面都视为起完全反射作用的镜面,污染源在上下两个镜面上形成无穷多对像源,混合层内空气污染浓度为实源与无穷多对像源作用之和。

按这一模式导出的浓度计算公式十分复杂,实际应用时可按简化的经验方法进行估算。

- ① 根据气象资料,确定混合层高度 H_m ,缺乏可靠的气象数据时,可取 $H_m = 1000\text{m}$;
- ② 估算烟羽上界与逆温层底相遇处的铅直方向弥散系数 σ_z^m :

$$\sigma_z^m = \frac{H_m - h_s}{2.15} \quad (4 \cdot 38)$$

根据当时混合层中大气稳定度类型,按适当的弥散系数值曲线或计算公式,可确定相应于 σ_z^m 值的下风向距离 X_m ;

- ③ 下风向距离 $X \leq X_m$ 范围时,烟羽上界尚未接触逆温层底,仍按式 4.17 估算近地空气污染浓度 $\bar{\chi}$ 或时间积分浓度 ψ_c 。

下风向距离 $X \geq 2X_m$ 范围内,经过上下两镜面的多次反射,铅直方向污染物浓度已接近均匀分布:

$$\bar{\chi}(x, y, 0) = \frac{Q}{\sqrt{2\pi u H_m \sigma_y}} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \quad (4 \cdot 39)$$

以 $Q(\text{Bq})$ 取代式中的 Q ,则可求得短期释放的时间积分浓度。

下风向距离 $X = X_m \sim 2X_m$ 范围内,取 X_m 及 $2X_m$ 两点处 $\bar{\chi}$ 或 ψ_c 的对数内插值。

4.2.5.2 熏烟条件下的弥散计算

夜间近地层大气呈逆温层结时,高位连续点源释放的烟羽上下扩展都受到遏制,在烟囱高度 h_s 附近形成一条狭长的高浓区(图 4.4,③),次日早晨太阳升起后的短时间内,太阳辐射逐渐增强,地面逐渐变暖,逆温层从地面开始受到破坏,被中性或不稳定大气层所取代,并逐渐向上扩展。当不稳定大气层达到烟囱高度水平时,其上方的逆温层犹如一个盖子,使烟羽局限于高度为 h_s 的一层低层大气内弥散,呈现熏烟状态(图 4.4,⑤)。这种状态下,烟囱附近近地空气浓度在几十分钟的时间内急剧上升,如不稳定层向上扩展缓慢或完全不扩展,情况将更为严重,沿烟羽长度方向相当大范围内熏烟状态可能持续好几个小时。

逆温层底恰好回升到烟囱高度 h_s 处时,可认为烟羽的上半部仍留在逆温层中,下半部则向下弥散,这时,近地空气污染浓度为

$$\bar{\chi}(x, y, 0) = \frac{Q}{2\sqrt{2\pi u h_s \sigma_{yF}}} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_{yF}^2}\right) \quad (4 \cdot 40)$$

逆温层底回升到烟羽扩展的上界高度($h_i = h_s + 2\sigma_z$)处时,烟羽全部向下弥散,可认为

铅直方向上空气污染浓度呈均匀分布,侧向仍呈高斯分布,近地空气污染浓度达到最大值

$$\bar{\chi}(x, y, 0) = \frac{Q}{\sqrt{2\pi u} h_i \sigma_{yF}} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_{yF}^2}\right) \quad (4.41)$$

以上两式中, σ_{yF} 为熏烟条件下的侧向弥散系数

$$\sigma_{yF} = \sigma_y + \frac{h_s}{8} \quad (4.42)$$

式中, σ_y 为发生熏烟前稳定条件下的侧向弥散系数。

4.2.5.3 建筑物的尾流效应

建筑物发生泄漏或低烟囱按地面释放源处理时,应考虑下风向邻近建筑物所导致的尾流效应,由图 4.13 可见,在一个圆形建筑物附近,气流存在着三个明显不同的地带:位移带、空穴和尾流区。位移带是空气沿建筑物外围的偏流区,紧靠建筑物的背风侧为环形循环的空穴(涡旋区),其外沿是一个真实的旋涡,尾流区内气流已恢复正常流动状态。空穴内可能

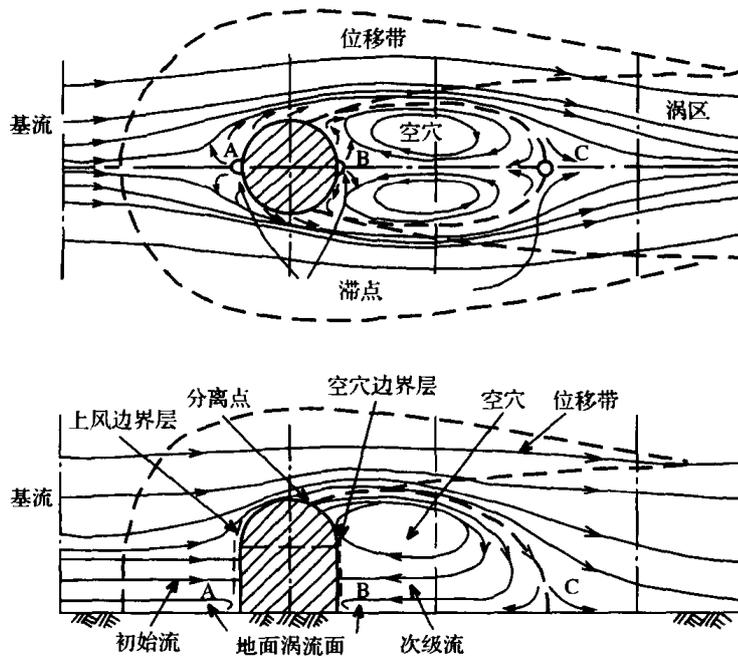


图 4.13 圆形建筑物附近的尾流效应

累积很高的污染浓度,短期释放条件下,涡旋区内时间积分浓度的最大值可粗略估计如下:

$$\psi_{c, \max}^A = \frac{Q}{A \bar{u}} \quad (4.43)$$

式中,

$\psi_{c, \max}^A$ —— 涡旋区内最大时间积分浓度, $Bq \cdot s \cdot m^{-3}$;

A —— 建筑物的迎风截面积, m^2 。

尾流效应增加了建筑物下风侧大气的湍流强度,因此,烟羽经过涡旋区后,尾流区内不同距离处的时间积分浓度比无尾流效应时为大:

$$\psi_c^A(x, y, 0) = \frac{Q}{u(\pi\sigma_y\sigma_z + C_w A)} \quad (4.44)$$

式中, C_w 为建筑物形状系数($C_w = 0.5 \sim 2$), 常偏保守地取为 0.5, ϕ_c^A 一般限制不小于未经修正的 ϕ_c 值的 1/3。

地面源长期常规释放条件下, 以 $\Sigma_{z,j}$ 取代扇形区弥散方程[式(4.25)]中的 $\sigma_{z,j}$, 以考虑对尾流效应的修正:

$$\Sigma_{z,j}(x) = [\sigma_{z,j}^2(x) + 0.5 D_z^2/\pi]^{1/2} \quad (4 \cdot 45)$$

式中,

D_z ——释放点上、下风向邻近最高建筑物的高度, m;

x ——自释放点到所考虑的下风点之间的距离(自邻近建筑物背风侧边缘算起), m。

同时, 应限制 $\Sigma_{z,j}(x) \leq \sqrt{3}\sigma_{z,j}(x)$ 。

4.2.5.4 长期释放时对静风影响的考虑

有些地区一年中无风天气($\bar{u}_{10} < 0.5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$)占相当大的时间份额, 在这种静风条件下, 风向紊乱, 烟流在大气中向上和向四周缓慢扩散, 其水平扩散已无明显的方向性, 因此, 高位连续点源近地空气污染浓度模式应作相应的修正。假设烟羽污染浓度沿铅直方向仍呈高斯分布, 水平方向则在以释放点为圆心的同心圆上均匀分布, 然后利用连续性条件积分整理后求解。据此, 长期释放条件下, 当静风频率不可忽略时, 对静风条件取释放高度处平均风速 $\bar{u}_h = 0.5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, 按最小风速级确定大气稳定度, 据以求得相应的弥散系数 σ_y 及 σ_z 的数值, 按此条件求得的近地空气污染浓度除以扇形区数 n (16) 后, 计入每一个扇形区。根据这一原理, 式(4.25)可改写为

$$\bar{\chi}_{a,i}(x) = \frac{2.032 \bar{Q}_a}{x} \sum_{j=1}^6 \frac{1}{\sigma_{z,j}} \left[\frac{P_{i,j}^c}{0.5} + \sum_{k=2}^5 \frac{P_{i,j,k}^w}{u_{j,k}} \right] \exp\left(\frac{-h_{j,k}^2}{2\sigma_{z,j}^2}\right) \quad (4 \cdot 46)$$

式中,

$P_{i,j}^c$ ——对应于静风的联合频率;

$P_{i,j,k}^w$ ——对应于有风的联合频率;

0.5——静风时所取代表性风速, $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

静风频率 $P_{i,j}^c$ 按下式计算:

$$P_{i,j}^c = \frac{N_{i,j}}{\sum_{i=1}^{16} N_{i,j}} \times \frac{N_j^c}{N} \quad (4 \cdot 47)$$

式中,

$N_{i,j}$ ——可测量的最小风速级($k=1$)出现 i 风向、 j 稳定度的小时数, h;

N_j^c ——出现静风与 j 稳定度的小时数, h;

N ——一年内气象观测资料相应的总小时数, h。

对地面源, $h_{j,k} = 0$, 则有

$$\bar{\chi}_{a,i}(x) = \frac{2.032 \bar{Q}_a}{x} \sum_{j=1}^6 \frac{1}{\sigma_{z,j}} \left(\frac{P_{i,j}^c}{0.5} + \sum_{k=2}^5 \frac{P_{i,j,k}^w}{u_{j,k}} \right) \quad (4 \cdot 48)$$

4.2.6 复杂地形对大气弥散的影响

4.2.6.1 不平坦地形

山谷、丘陵地区的山风和谷风会形成周期为 24h 的局地大气环流,它主要是由于山坡和谷地受热不均匀而产生的。

日出以后,山坡先于谷地受到阳光照射,气温明显高于谷地,在低空形成由谷地吹向山坡的谷风,高空则出现反谷风。反之,日落以后,特别是夜间,山坡与山顶处冷却快,气温迅速下降,冷空气顺坡下滑到谷地,形成山风,高空则出现反山风。

平原与山地交界地带,也会出现类似于山谷风的周期为 24h 的局地大气环流,坡风的成因与山谷风相同,白天山坡上气温高于平地,形成上坡风,晚间则出现下坡风。

在这类不平坦地形地区,大气气流有两种状态,在山丘高度以下的底层,风受山坡、谷地和其它障碍物的影响,在山丘高度以上,风即不受这些因素的影响。

在底层内,靠近山丘的气流将围绕其偏转,山丘位于烟囱下风向时,烟羽越过山丘后会发生下沉,使其有效高度降低;在烟囱与山丘之间的区域内也可能出现内循环,导致近地空气污染浓度的增高。山丘位于烟囱的上风向时,气流的下沉也会降低烟羽的有效高度。另一方面,山丘附近尾流中湍流强度较大,一定程度上加快了烟羽的弥散。

在谷地区,即使宽达 10km、深不足 100m 的宽浅谷地也可能造成很明显的沟道效应,因此,底层大气中主导风向是沿着谷地轴线而形成纵向的顺谷风或逆谷风(图 4.14)。同样的大气条件下,谷风风速比平原地区所估计的风速小,谷风与上层风的风向不同,相应的稳定度也不同,因此,当部分烟羽由某一层气流飘移到另一层中时,其输运方向和弥散程度将随之改变。

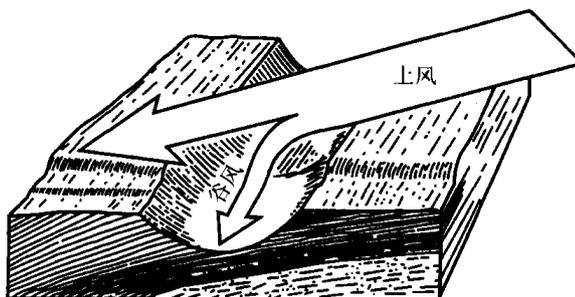


图 4.14 刮过山谷的谷风

对于在上层大气中释放的气载流出物,烟羽的弥散计算可按沃格特方法确定不同稳定度下的弥散系数值,但必须考虑谷风可能导致局部的烟羽下沉,这时,对于进入谷地的一部分烟羽的输运弥散应按底层气流情况慎重考虑。

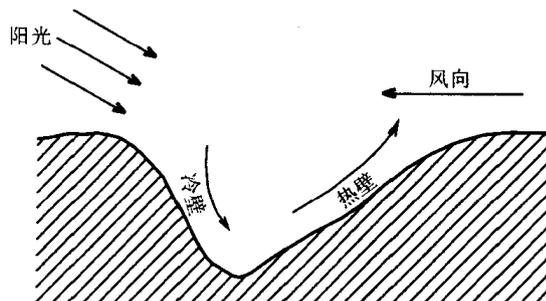


图 4.15 山谷侧壁受热不均匀导致的局地大气环流

谷地中地面释放的条件下,烟羽常局限于山谷内,应按底层的风向和稳定度考虑烟羽的输运方向及弥散程度。这时,发生于谷地表面或侧壁的某些效应,如两侧壁太阳辐射强度的差异产生的局地大气环流(图 4.15)及明显不规则地形引起的尾流,可能增大谷地内大气的湍流,造成复杂多变的弥散状态。

4.2.6.2 水陆交界地区

在靠近大水体的水陆交界地区,烟羽的输运会受特殊的地方性风场的影响。特别是晴天时,风向有明显的昼夜变化,白天,风从水域吹向陆地,夜晚则主要由陆地吹向水域。

由于水面上空大气的机械湍流强度较小,烟羽的弥散比陆地上空差。对冷水体上空进行的弥散测量结果表明,一个距烟囱 6km 处的水体上空的 σ_y 值为按帕斯奎尔曲线 F 类估

算的 σ_y 值的 1/2。因此,陆上释放的烟羽随陆风跨越水体上空而到达另一端的陆地上空时,如不考虑水面上空低湍流区的影响,将会低估下风向陆地上的空气污染浓度。当风从海面吹向陆地时,经过一大段内陆以后,烟羽的弥散更具有大陆型特征,水面上空低湍流区的影响较小。

水与空气之间的温度差对湍流强度也有明显的影响,当水体表面温度比空气温度高时,空气受热而引起的不稳定效应会使弥散增强。

向岸风和离岸风受地面粗糙度和气温层结的影响,一定条件下可能造成烟羽回流或熏烟,因此,最好以实地排放扩散实验结果为依据,进行水陆交界地区的烟羽弥散计算。

4.3 放射性物质在大气中的沉积和再悬浮

烟羽向下风向输运和弥散的同时,存在着污染物向地面的沉积过程,这将导致地表土壤和农作物的污染,并程度不同地导致烟羽浓度的耗减。

在风和土壤表面其它机械搅动作用下,直径小于 50 μm 的沉积物颗粒会从地面重新进入空气中,在一定的条件下,这种再悬浮过程是空气二次污染的重要来源。

4.3.1 放射性物质的沉积

4.3.1.1 重力沉降

粒径和密度较大的颗粒物质,可根据重力沉降预测其向地面的沉积。空气中的颗粒物向地面降落时,由于重力加速度的作用,开始时沉降速度是逐渐增大的,与此同时,空气介质对颗粒沉降运动的阻力也逐渐增大,当重力与介质阻力相等时,颗粒的沉降速度即达到某一个平衡值,即沉降末速度 V_g 。

重力沉降导致空气中可沉降颗粒物在地表面上的沉积率 W_g 可按下式计算:

$$W_g = \bar{\chi} \times V_g \quad (4.49)$$

式中,

W_g ——地面沉积率, $\text{g}(\text{Bq}) \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$;

V_g ——颗粒的沉降末速度, $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$;

$\bar{\chi}$ ——近地空气中可沉降颗粒物的浓度, $\text{g}(\text{Bq}) \cdot \text{m}^{-3}$ 。

4.3.1.2 干沉积

(1) 干沉积速度 对于放射性气溶胶和某些放射性气体的地面沉积,起主要作用的因素是因其不规则随机运动而与地表面相遇时与地面之间的碰撞、静电引力、吸附和各种可能的化学作用,这些机制导致的干沉积过程使细小颗粒和气体成分在晴天条件下也能从空气中得以清除而沉积于地面。

干沉积涉及的影响因素十分复杂,至今尚未能建立可普遍适用的计算模式,一般通过野外实验,在一定条件下经验地确定地面沉积率与近地空气污染浓度之间的关系。实验结果表明,特定的放射性气溶胶或气体的干沉积率与近地空气污染浓度成正比,由此,可定义干沉积速度为:

$$V_d = \frac{W_d}{\chi} \quad (4.50)$$

式中,

V_d ——干沉积速度, $m \cdot s^{-1}$;

W_d ——地面干沉积率, $Bq \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$ 。

显而易见,干沉积速度 V_d 的大小与众多因素有关,其中包括:

① 气溶胶颗粒或气体的性质:颗粒的大小、密度和形状,静电荷,表面化学性质及与其它颗粒之间的凝聚能力;

② 地表面特征:地面的结构与粗糙度,是否存在植物等毛状物或其它突出物,静电荷,表面化学性质及有效表面积;

③ 气象条件:风速廓线,湍流强度(大气稳定度)与相对湿度。

表 4.13 所示为野外实验中测得的某些核素在不同类型地面上的干沉积速度。

表 4.13 某些核素的干沉积速度^[13]

核 素	表 面	说 明	$V_d (cm \cdot s^{-1})$
¹³¹ I	草	200~600g 草/m ²	1.1~3.7
	三叶草叶片		0.5~1.3
	纸		0.3~2.0
	草	150~246g 草/m ²	0.6~1.0
	土壤		0.2
	粘性纸		0.2~0.6
	草		1.2~2.1
	土壤		0.5~1.4
	粘性纸		0.1~1.5
	水		1.4~2.3
¹³⁷ Cs	水	<10 μm 粒子	0.9
	土壤	<10 μm 粒子	0.04
	草	<10 μm 粒子	0.2
¹⁰³ Ru	水	<10 μm 粒子	2.3
	土壤	<10 μm 粒子	0.4
	草	<10 μm 粒子	0.6
⁹⁵ Zr - ⁹⁵ Nb	水	<10 μm 粒子	5.7
	土壤	<10 μm 粒子	2.9
²³⁸ Pu	豆叶	辐照室, 0.5~1.8 μm 粒子	0.003~0.02
¹⁴¹ Ce	落叶树叶片	由落下灰数据计算	0.3~0.8
⁷ Be	海水		0.6~5.3
¹³⁴ Cs 及 ¹⁴¹ Ce	草	亚微米气溶胶	0.02~0.07
	北美艾灌丛	亚微米气溶胶	0.15~0.18

(2) 干沉积所致的地面沉积率 根据干沉积速度的定义,可知干沉积所致的地面沉积率为

$$W_d = \bar{\chi} V_d \quad (4 \cdot 51)$$

由该基本公式可知,采用不同条件下相应的浓度计算公式求得的近地空气中某种核素的浓度 $\bar{\chi}$ 乘以相应的干沉积速度 V_d ,即可求得同一地点处核素的地面干沉积率 ($Bq \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$),并进一步求得年沉积量 ($Bq \cdot m^{-2} \cdot a^{-1}$)或时间积分沉积量 ($Bq \cdot m^{-2}$)。

4.3.1.3 湿沉积

(1) 降雨冲洗系数 降雨对烟羽中的颗粒物及气溶胶具有清洗作用,可溶性气体与蒸汽亦可溶于雨水中,降雨过程造成的这类湿沉积是导致放射性气溶胶和气体向地面沉积的另一重要机制。通常以冲洗系数 $\Lambda(\text{s}^{-1})$ 描述降雨对烟羽中污染物清洗作用的大小,显然, Λ 值与气溶胶颗粒的直径、气体的溶解度及降雨强度有关。图 4.16 所示为不同粒径与密度的气溶胶颗粒的冲洗系数 Λ 和降雨强度 $I(\text{mm}\cdot\text{h}^{-1})$ 的关系曲线,图中 $a^2\rho$ 值中, a 为颗粒半径(μm), ρ 为密度($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)。

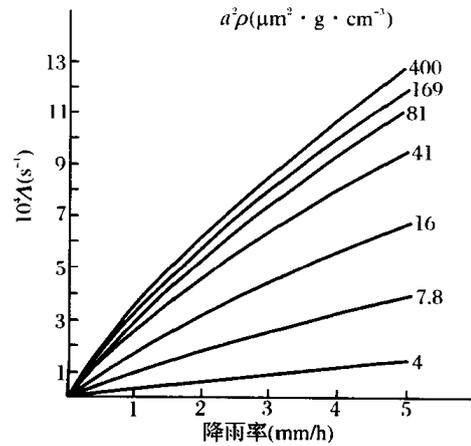


图 4.16 不同粒径与密度气溶胶颗粒的降雨冲洗系数

Λ 值也可按下式计算:

$$\Lambda = \alpha I \quad (4.52)$$

式中,

α ——冲洗比例常数, $\text{h}(\text{mm}\cdot\text{s})^{-1}$ 。

表 4.14 所示为冲洗比例常数 α 的虚定值。

表 4.14 冲洗比例常数 α 的虚定值

核素类型	$\alpha[\text{h}(\text{mm}\cdot\text{s})^{-1}]$
气溶胶粒子	1.6×10^{-4}
元素碘	1.1×10^{-4}
有机碘	$\leq 1.0 \times 10^{-4}$

(2) 湿沉积所致的地面沉积率 短期释放时,降雨冲洗导致的地面湿沉积率可通过冲洗系数 Λ 与空气污染浓度 χ 的乘积在烟羽整个垂直高度范围内的积分求得:

$$W_w(x, y) = \frac{Q(x)\Lambda}{\sqrt{2\pi\sigma_y u}} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \quad (4.53)$$

式中,

$W_w(x, y)$ ——下风向 (x, y) 点处地面湿沉积率, $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$;

$Q(x)$ ——考虑湿沉积所致烟羽耗减的源强修正值, $\text{Bq}\cdot\text{s}^{-1}$ 。

显然,若以 $Q(x)$ 取代式中 $Q(x)$,则可求得整个释放期间 (x, y) 点处地面的时间积分湿沉积量($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$)。

长期释放时, i 方位扇形区内距离 $x(\text{m})$ 处地面的年平均湿沉积率为

$$\bar{W}_{w,i}(x) = \frac{8Q(x)}{\pi x} \sum_{j,k,l} \frac{P_{i,j,k}^l \Lambda_l}{u_{j,k}} \quad (4.54)$$

式中,

$\bar{W}_{w,i}(x)$ —— i 方位扇形区内距离 x 处地面年均湿沉积率, $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$;

$P_{i,j,k}^l$ —— $P_{i,j,k}$ 按降雨强度 I 再划分若若干组后各组的联合频率;

Λ_l ——相应于降雨强度 I 的冲洗系数, s^{-1} 。

显然,若以年释放量 $Q(x)$ ($\text{Bq}\cdot\text{a}^{-1}$) 取代式中 $Q(x)$,则可求得年湿沉积量

($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)。

为简化计算,亦可按下式作近似估算:

$$W_{w,i}(x) = \frac{8Q(x)C R_i}{\pi x u_i} \quad (4.55)$$

式中,

$W_{w,i}(x)$ —— i 方位扇形区内距离 x 处地面的年湿沉积量, $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$;

$Q(x)$ ——经耗减修正后的源强, $\text{Bq}\cdot\text{a}^{-1}$;

R_i ——相应于 i 风向的年降雨量, $\text{mm}\cdot\text{a}^{-1}$;

\bar{u}_i ——相应于 i 风向的年平均风速, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$;

C ——虚设的冲洗常数, $\text{a}(\text{mm}\cdot\text{s})^{-1}$ 。

对气溶胶颗粒, C 值可取 1.8×10^{-8} , 对元素碘, 可取 1.2×10^{-8} 。

4.3.2 地面沉积物的再悬浮

气载放射性物质沉积在地面上以后, 其中的颗粒物质可因风或人的活动的扰动而扬起, 造成空气的二次污染。对于铯等难以通过食物链向人转移的核素而言, 吸入再悬浮颗粒物质造成的内照射是必须重视的一个照射途径。

在地面已被污染的地区, 再悬浮导致的空气污染浓度可采用再悬浮因子 K 进行估算:

$$\chi = K C_G \quad (4.56)$$

式中,

χ ——再悬浮导致的空气污染浓度, $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;

C_G ——地面的面积污染浓度, $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$;

K ——再悬浮因子, m^{-1} 。

再悬浮因子数值的大小与放射性物质沉积到地面后的时间 t 有关, 通常可用两个指数项之和表示两者之间的关系:

$$K = A \exp(-\lambda_1 t) + B \exp(-\lambda_2 t) \quad (4.57)$$

式中, 第一、二两项分别表示地面沉积物通过再悬浮向空气转移的快组分和慢组分, 相应的转移份额和速率分别为 A 、 B 和 λ_1 、 λ_2 ($A = 1 \times 10^{-5} \text{m}^{-1}$, $B = 1 \times 10^{-9} \text{m}^{-1}$, $\lambda_1 = 1 \times 10^{-2} \text{d}^{-1}$, $\lambda_2 = 2 \times 10^{-5} \text{d}^{-1}$)。

4.3.3 烟羽浓度耗减的修正

沉积过程不同程度上会导致烟羽中污染物浓度的耗减, 此外, 短寿命核素在输运、弥散过程中的衰变也是导致耗减的重要原因, 一般引入相应的系数对源强 \dot{Q} (或 Q) 作必要的修正, 以考虑这些过程所导致的烟羽浓度耗减的影响。

4.3.3.1 干沉积导致的烟羽耗减

对于干沉积导致的烟羽耗减, 采用干沉积耗减因子对源强 \dot{Q} 进行修正:

$$\dot{Q}(x) = \dot{Q} \times F_D(x) \quad (4.58)$$

式中,

\dot{Q} ——未修正的实际源强, $\text{Bq}\cdot\text{s}^{-1}$;

$Q(x)$ ——距离 $x(m)$ 处经耗减修正后相应的虚设源强, $Bq \cdot s^{-1}$;

$F_D(x)$ ——距离 $x(m)$ 处的干沉积耗减因子。

干沉积耗减因子 $F_D(x)$ 的值与下风向距离、大气稳定度类型及有效释放高度等因素有关, 图 4.17 所示为相应于 $V_d = 1cm \cdot s^{-1}$, $\bar{u} = 1m \cdot s^{-1}$ 的各种稳定度及释放高度条件时的干沉积耗减因子, 对应于其它 V_d 及 \bar{u} 值的 $Q(x)/Q$ 值可按式计算:

$$\left(\frac{Q(x)}{Q}\right)_2 = \left(\frac{Q(x)}{Q}\right)_1 \frac{\bar{u}_1 V_{d2}}{\bar{u}_2 V_{d1}} \quad (4 \cdot 59)$$

式中, $\left(\frac{Q(x)}{Q}\right)_1$ 为由图中曲线求得的相应于 $V_{d1} = 1cm \cdot s^{-1}$, $\bar{u}_1 = 1m \cdot s^{-1}$ 时的耗减因子,

$\left(\frac{Q(x)}{Q}\right)_2$ 为相应于要求的 V_{d2} 及 \bar{u}_2 条件下的耗减因子。

以 $Q(x)$ 取代 Q , 即可求得各种条件下考虑干沉积耗减修正后的近地空气污染浓度。

4.3.3.2 湿沉积导致的烟羽耗减

对于湿沉积导致的烟羽耗减, 采用湿沉积耗减因子对源强 Q 进行修正:

$$Q(x) = Q \times F_w(x) \quad (4 \cdot 60)$$

$$F_w(x) = \exp\left(-\frac{\Lambda x}{u}\right) \quad (4 \cdot 61)$$

式中,

$F_w(x)$ ——距离 $x(m)$ 处的湿沉积耗减因子;

Λ ——降雨冲洗因子, s^{-1} 。

以 $Q(x)$ 取代 Q , 即可求得各种条件下考虑湿沉积耗减修正后的近地空气污染浓度。

4.3.3.3 核素衰变导致的烟羽耗减

对于核素衰变导致的烟羽耗减, 采用衰变耗减因子对源强 Q 进行修正:

$$Q(x) = Q \times F_R(x) \quad (4 \cdot 62)$$

$$F_R(x) = \exp\left(-\frac{\lambda_r x}{u}\right) \quad (4 \cdot 63)$$

式中,

$F_R(x)$ ——距离 $x(m)$ 处的衰变耗减因子;

λ_r ——核素衰变常数, s^{-1} 。

以 $Q(x)$ 取代 Q , 即可求得各种条件下考虑衰变耗减修正后的近地空气污染浓度。

当短寿命核素衰变与干(湿)沉积耗减必须同时考虑时, Q 应同时乘以 $F_R(x)$ 及 $F_D(x)$ (或 $F_w(x)$), 以求得 $Q(x)$ 。

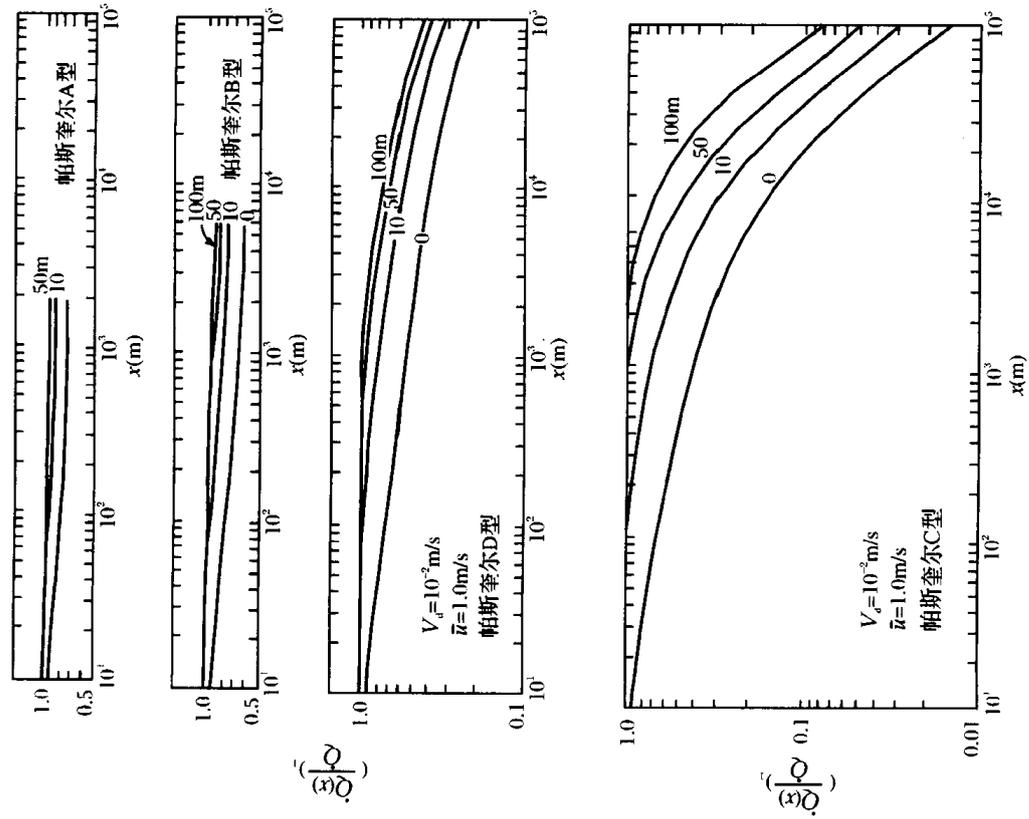
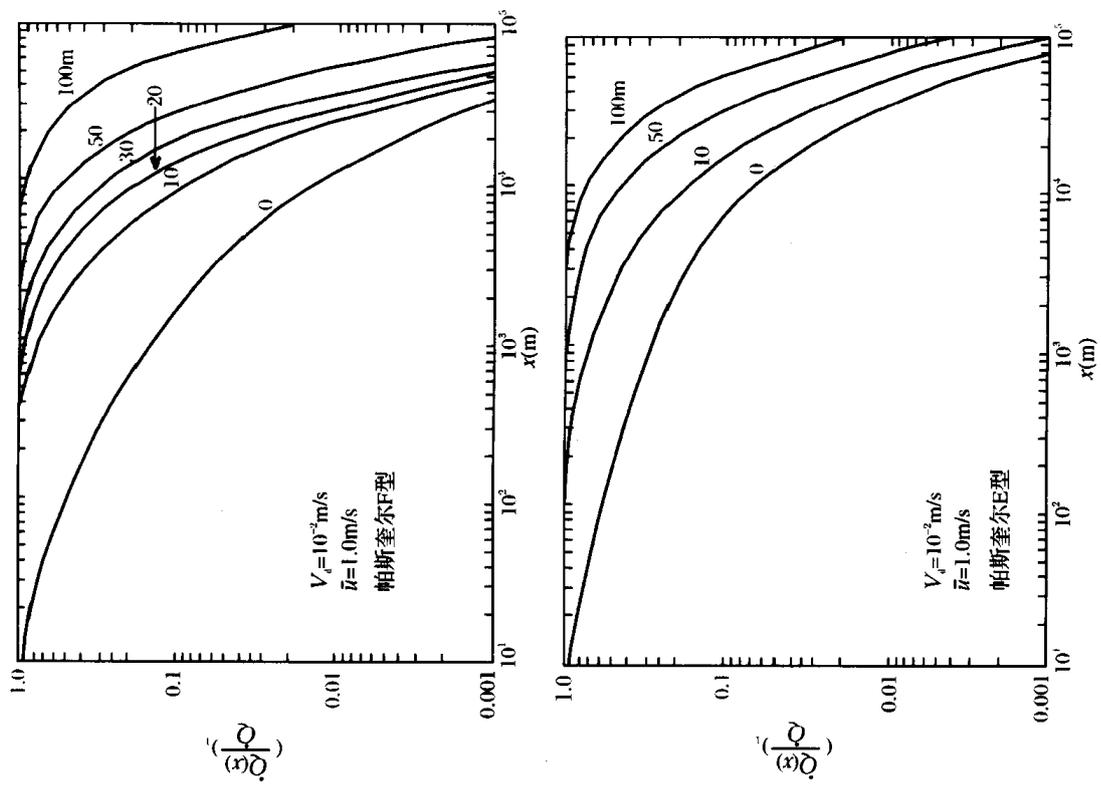


图4.17 干沉积耗减因子

参 考 文 献

- 1 强亦忠主编. 简明放射化学教程. 北京:原子能出版社,1989
- 2 J. 海克伦著. 大气化学. 莫天麟等译. 北京:科学出版社,1983
- 3 柴之芳等. 微量元素化学概论. 北京:原子能出版社,1994
- 4 《环境科学大辞典》编辑委员会. 环境科学大辞典. 北京:中国环境科学出版社,1991
- 5 《中国大百科全书环境科学卷》编辑委员会. 中国大百科全书环境科学卷. 北京:中国大百科全书出版社,1982
- 6 强亦忠. 环境放射化学. 原子能科学技术,1988,22(3):372
- 7 International Atomic Energy Agency. 安全导则,核动力厂选址中的大气弥散:安全丛书 No. 50-SG-S3,维也纳. 国际原子能机构,1986
- 8 史宝忠编著. 建设项目环境影响评价. 北京:中国环境科学出版社,1993
- 9 童志权编著. 大气环境影响评价. 北京:中国环境科学出版社,1988
- 10 F.W. 魏切尔等著,卜石等译. 放射生态学——核能与环境,第二卷. 北京:原子能出版社,1991
- 11 宋妙发等. 燃煤电厂气载排出物中天然铀、钍所致周围空气污染浓度及地面沉积量的分布. 辐射防护,1987,7(2):96
- 12 章仲侯主编. 放射卫生学. 北京:原子能出版社,1985
- 13 D.H. 斯莱德编,张永兴等译. 气象学与原子能. 北京:原子能出版社,1979
- 14 俞誉福编著. 环境放射性概论. 上海:复旦大学出版社,1993

第5章 放射性物质在地面水体中的行为

地面水体包括海洋、江河、湖泊、沼泽等水域,它们与地下水一起构成地球上的天然水系统。天然水一方面经由蒸发、凝结、降水、渗透和径流等多种途径,在空中、地面和地下形成复杂的水循环;另一方面又与周围的空气、土壤、生物、岩石等环境物质有着广泛而频繁的接触,并与之发生多种化学反应。因此,天然水中往往溶解、夹带着各种环境物质。此外,天然水体中还生长着各种水生生物,从而形成复杂而庞大的体系。生态学将水、水中的悬浮物质、溶解物质、底质和水生生物视为一个完整的体系,即“水生态系统”。

放射性废水的排放是地面水体放射性污染的主要来源。此外,大气中气载放射性物质的沉积、污染地面上的径流也在一定程度上导致水体的污染。放射性物质进入水体后,将伴随其中各种物理、化学及生物过程发生一系列复杂的变化:物理过程包括水的流动导致污染物在水中的弥散及固体颗粒状污染物在水中的沉积与再悬浮;化学过程包括放射性物质在水中的水解、络合、氧化还原、沉淀、溶解、吸附、解吸、化合、分解等化学反应;生物过程包括水生生物对放射性物质的吸附、吸收、代谢及转化等作用。由此可见,放射性物质在地面水体中的行为比其在大气中的行为复杂得多,涉及因素更多。

地面水的污染可经由饮水途径对人造成内照射;水生生物的污染及用污染水灌溉农田导致农作物的污染则使放射性物质经由生物链途径对人造成内照射。在某些特定的条件下,水还可能对人造成浸没外照射,水体底质会对人造成直接外照射。

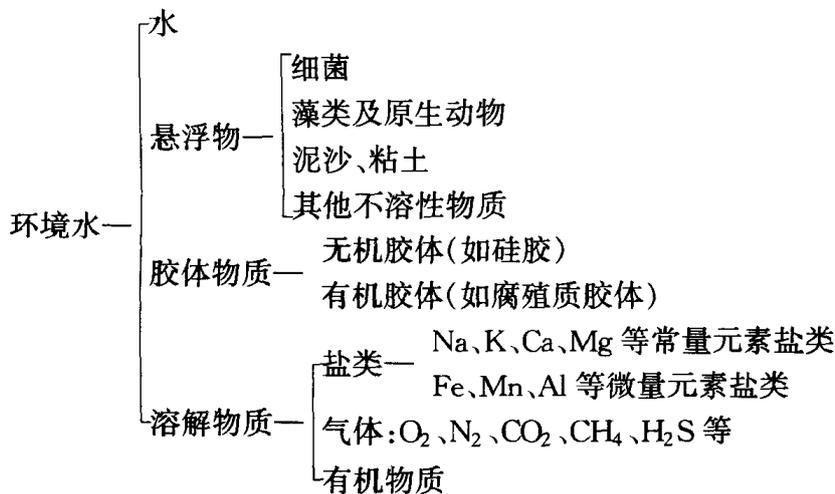
5.1 放射性物质在地面水体中的化学行为

5.1.1 地面水体的分类和组成

环境水可分为降水(雨、雪、雹)、地面水(江河、湖泊、沼泽、海洋)和地下水三大类,其分布如表 5.1 所示。它们一方面通过蒸发、凝结、降水、渗透和径流等过程不断地循环;另一方面与周围大气、土壤、岩石等环境物质接触,溶入或夹带了许多物质。其组成极其复杂,大致可表述如下:

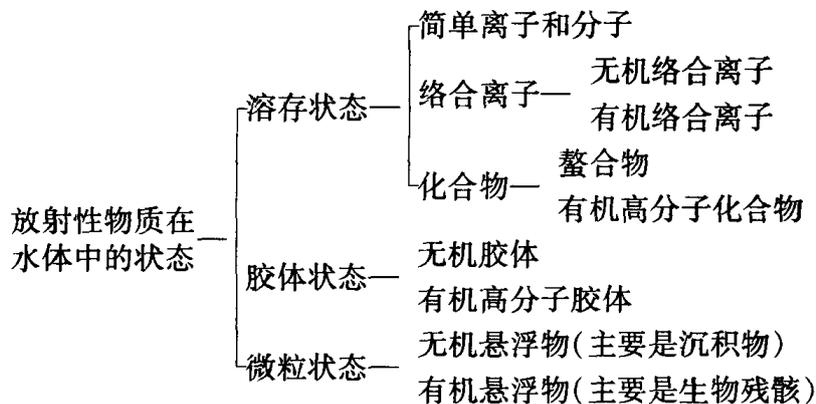
表 5.1 自然界中水的分布(10^6 m^3)

淡水湖泊	1.3×10^8
咸水湖和内海	1.0×10^8
河流	1.3×10^6
浅层地下水	6.7×10^7
深层地下水	8.4×10^9
冰川和高山积雪	2.9×10^{10}
大气水	1.3×10^7
海洋	1.3×10^{12}
生物体	6×10^5
总水量	1.36×10^{12}



5.1.2 放射性物质在地面水体中的化学形态

放射性物质在水体中的存在状态因其来源不同而异。例如,由核爆炸释放到环境中的钚多为难溶的氧化物,而由核工厂废水排放的钚多为离子型。水体不同,放射性物质的存在状态也不同。特别是放射性核素进入不同的水体之后,它们会发生水解、氧化还原、络合、吸附等不同的物理化学变化,其存在状态也必然发生不同的变化。概括起来,放射性物质在水体中的存在状态可能有如下几种形式:



由于海洋覆盖了地球表面积的 71%,其水量占地球总水量的 97.2%,因此,目前人们对海水中放射性核素的种类和存在形态研究甚多。研究表明,各种放射性核素在海水中存在形态各不相同。有些核素的存在形态比较单一,如⁸⁹Sr、⁹⁰Sr、¹³⁷Cs、²²⁶Ra 等主要以简单的离子状态存在于海水中;⁵⁵Fe、⁵⁹Fe、²³²Th 则主要以胶体状态存在;裂变产物⁹⁵Zr、⁹⁵Nb、¹⁰³Ru、¹⁰⁶Ru、¹⁴⁴Ce 和活化产物⁵¹Cr、⁵⁴Mn、⁶⁰Co、⁶⁴Cu、⁶⁵Zr 等可同时以溶存状态、胶体状态和微粒状态存在于海水中。例如,在 pH=8 的海水中,⁶⁵Zn 的 10%~20% 为离子型,40%~50% 为络合物型,30%~50% 为微粒型;¹⁴⁴Ce 的 30% 为离子状态,20% 为胶体状态,50% 与无机悬浮物结合在一起。

海水中存在分子量小、浓度低的有机配位体如氨基酸、脂肪酸等,其浓度一般小于 $10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$,但在大气-海洋界面附近,存在有机物浓集过程,有机配位体的浓度可超过

$10^{-5} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 。此外,海水中还可能溶存一些分子量为 $5 \times 10^2 \sim 10^6$ 的有机物,这些有机物质都可与放射性核素形成有机络合物存在于海水中。

表 5.2 所示为几种放射性核素在海水中的存在形态。从表中可见,放射性核素在海水中往往以多种价态存在,且与海水中原来的稳定同位素的状态有所不同,因此其在海水中的行为和被生物浓集的情况也会有较大的差异。

表 5.2 几种放射性核素在海水中的主要存在形态

核 素	存 在 形 态
^3H	HTO
^{14}C	HCO_3^- , CO_3^{2-}
^{51}Cr	Cr^{3+} , CrO_4^{2-} , $\text{CrO}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ 胶体, 悬浮物
^{54}Mn	Mn^{2+} , $\text{MnO}(\text{OH})_2$ 胶体, 悬浮物
^{55}Fe 、 ^{59}Fe	$\text{Fe}(\text{OH})_3$ 胶体
^{60}Co	Co^{2+} , CoCl^+ , 有机络合物
^{64}Cu	Cu^{2+} , 悬浮物
^{65}Zn	Zn^{2+} , ZnCl^+ , ZnOH^+ , 有机络合物
^{89}Sr 、 ^{90}Sr	Sr^{2+} , 悬浮物
^{103}Ru 、 ^{106}Ru	亚硝酸酐络合物, 悬浮物
^{129}I 、 ^{131}I	I^- , IO_3^- , 有机化合物
^{137}Cs	Cs^+ , 悬浮物
^{144}Ce	Ce^{3+} , $\text{Ce}(\text{OH})_3$ 胶体, 悬浮物
Ra	Ra^{2+}
Th	$\text{Th}(\text{OH})_4$ 胶体
U	$\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$
^{239}Pu 、 ^{240}Pu	PuO_2^{2+} , PuO_2CO_3 , 悬浮物

放射性核素在海水中的垂直分布会呈现某些有趣的规律,反映了核素在不同深度的海水中化学形态的变化。例如, ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 在海水表层呈溶存状态,其迁移、扩散速度很快;在 1500~2000m 的深层,海水中 ^{137}Cs 和 ^{90}Sr 的浓度大为降低,仅为表层的 1/10~1/100,其原因是 ^{137}Cs 和 ^{90}Sr 大部分转变为微粒状态而迅速沉降,沉积中的微粒状态的 ^{137}Cs 和 ^{90}Sr 又有小部分重新溶解于水中。许多放射性核素在海水中垂向迁移时,会经历从溶存状态到微粒状态,再由微粒状态到溶存状态的复杂的化学形态变化过程。

5.1.3 放射性物质在地面水体中的化学反应

5.1.3.1 氧化还原反应

由于环境水的组成极其复杂,其中含有多种氧化性或还原性物质,因此水体中的放射性物质常常会发生氧化还原反应。这对它们的存在形态以及它们在水中的迁移均有重要影响。

水体中的氧化还原反应主要取决于水中的氧化还原电势 E 和 pH,而 E 又主要依赖于含氧量。表 5.3 列出了各种水体的 pH 和 E 值。

表 5.3 各种水体的 pH 值和 E 值

水 体	pH	E (V)
雨水	4.5~7	+0.7~+0.4
淡水	6~8	+0.5
海水(表层)	8.1~8.3	+0.4
地下水(表层)	6~8	+0.4~+0.2
淡水沉积物	6~7	+0.4~-0.2
海底沉积物	7~8	+0.5~-0.25

在通常情况下,环境水中含有足够量的氧,其 E 值在 0.2V 以上,最高可达 0.7V,具有较高的氧化能力,使多价态元素由低价氧化成高价。如 Tc(IV) 和 Pu(IV) 氧化为 Tc(VII) 和 Pu(V)、Pu(VI),使其迁移性增加; Fe^{2+} 、 Mn^{2+} 可氧化为 Fe^{3+} 、 Mn^{4+} ,生成难溶化合物,使其迁移性下降。当水体中的游离氧减少,有机物质含量增加时, E 值会降低,甚至可变为还原环境,可使某些高价离子变为低价。有机物质和微生物对水体的氧化还原反应起着重要作用。水体中生物的代谢产物及其残骸是有机物质的重要来源,它们会被微生物分解,形成 CH_4 、 H_2 、 CO_2 、 NH_3 等产物。在缺氧条件下,这些分解产物可与 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 等发生氧化还原反应,生成还原性很强的物质如 H_2S ;有机物质中的碳氢化合物在细菌(如硫酸盐还原菌)的作用下也会生成 H_2S ,形成还原环境,使放射性核素的状态发生变化,从而影响它们在水中的迁移。例如,Tc 在具有氧化气氛的沉积物-海水体系中呈易溶性的 TcO_4^- ,在两相间的分配系数 $D \approx 0$;Tc 在沉积物有机物质含量高的还原气氛中可被还原为难溶性的 Tc(IV),其 D 值可达 10^3 ;如果将此体系进行灭菌处理,则 Tc 仍为 Tc(VII),不被吸附;如果灭菌后再接种硫酸盐还原菌,则 Tc 又被还原为 Tc(IV),易被吸附。这些现象充分说明微生物对水体中的还原反应可起催化作用。

环境水中溶解氧的分布是不均匀的,其含量随深度而减少,这就使与大气充分接触的水体表层的 E 值高,而深层水及底泥的 E 值低。此外,氧在水中的溶解度还与温度有关,气温升高,含氧量降低。因此,水体的 E 值还会随季节和气候而变化。

5.1.3.2 络合反应

环境水中含有多种无机和有机配位体,不同水体所含配位体的种类和含量也不同。通常,淡水中的主要无机配位体是 HCO_3^- ,而海水中的主要无机配位体是 Cl^- (表 5.4),这些无机配位体可与水体中的放射性核素形成无机络合物。例如,U 可与水中的 CO_3^{2-} 形成稳定的络合离子 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ 和 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$,其稳定常数分别为 2×10^{18} 和 4×10^{14} 。当 CO_3^{2-} 浓度超过 $10^{-4} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 时,主要是形成前者。河水、海水中的 U 主要就是以 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ 的形式存在的。

环境水中还存在多种有机物,它们可来自陆地,如土壤中的腐殖质;也可来自水中的生物。通常河水中的腐殖质含量为 $10 \sim 50 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。腐殖质是由多种简单的有机化合物聚合而成的一种组成和结构都十分复杂的高分子化合物,是环境中最主要的天然螯合剂。如腐殖质中含有的富里酸和胡敏酸,它们可与许多金属离子络合,其络合能力大致有如下顺序:

表 5.4 海水中无机配位体的浓度

配位体	总浓度(mol·L ⁻¹)	游离离子的浓度(mol·L ⁻¹)
Cl ⁻	5.48×10 ⁻¹	5.48×10 ⁻¹
SO ₄ ²⁻	2.82×10 ⁻²	1.27×10 ⁻²
CO ₃ ²⁻	2.34×10 ⁻³	3.05×10 ⁻⁵
PO ₄ ³⁻	1.0×10 ⁻⁶	8.28×10 ⁻¹¹
F ⁻	7.8×10 ⁻⁵	3.94×10 ⁻⁵

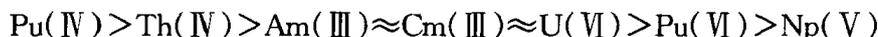
对富里酸(pH=5时):Cu>Fe>Ni>Mn>Co>Zn

对胡敏酸(pH=5时):Cu>Zn>Fe>Ni>Co>Mn

海水中通常存在~1mg·L⁻¹的含碳有机物,组成也极其复杂,其中除腐殖质外,还有氨基酸类和羟基酸类,可与金属形成络合物,其络合能力大致有如下顺序:



金属离子的水解实际上可看成是与 OH⁻ 配位体生成络合物的过程。除了碱金属和碱土金属外,大多数放射性核素在近中性的条件下均易水解,生成难溶的水合物或胶体。对于 Ac 系元素,其水解能力如下:



Ac 系元素与无机或有机配位体的络合能力也有上述相同的次序,且它们相互间会发生络合竞争,从而影响到它们的迁移行为。例如, UO₂²⁺ 的水解能力较 Th(IV) 差,它主要形成 UO₂(CO₃)₃⁴⁻ 留在水体中, Th(IV) 则易水解成胶体或被悬浮物吸附而沉降,从水体中析出。

5.1.3.3 吸附

水体中存在一定量的悬浮物微粒及胶粒,它们具有发达的表面,且常常还含有离子交换基团或带有电荷,可吸附水体中的放射性物质。这种吸附作用与微粒的粒度、组分、表面电荷状况以及水体的性质有关。

通常,环境水中的悬浮物组分大都含有不同种类天然阳离子交换剂,其交换容量各不相同(表 5.5),它们对放射性核素的吸附能力符合离子交换亲和力的经验规律。

表 5.5 水体中常见悬浮物的阳离子交换容量(mgeq·mg⁻¹)

名称	交换容量	名称	交换容量
有机物质	130~350	绿泥土	4~47
锰的水合物	260	各种粘土	4~25
蛭石	100~150	高岭土	3~15
蒙脱土	70~100	长石、石英	1

表 5.6 胶体带电性质

带正电荷胶体	Al(OH) ₃ 、Ti(OH) ₄ 、Fe(OH) ₃ (少部分)
带负电荷胶体	SiO ₂ ·nH ₂ O、Mn(OH) ₂ 、Fe(OH) ₃ (大部分) 腐殖质、粘土矿物、各种硫化物胶体

环境水中的大部分胶体带负电荷,只有少数胶体带正电荷(表 5.6),因此水中的胶体大

多吸附阳离子。

在不同的水体中,放射性核素被悬浮物吸附的行为是不同的,这主要与水体 pH 值、溶解物质的种类及含量、悬浮物的特性等因素有关。许多放射性核素如⁶⁰Co、⁶⁵Zn、¹¹⁰Ag等在悬浮物上的吸附量在 pH 2~9 范围内随 pH 的升高而增加。由于海水的 pH 通常比河水高,因此放射性核素在海水中比在河水中更容易被悬浮物吸附。但这里还必须考虑竞争性吸附和同位素稀释效应。当河水入海时,由于海水中的 K⁺、Na⁺和 Sr²⁺的含量高,因此被河水中悬浮物吸附的¹³⁷Cs和⁹⁰Sr可分别被海水中的 K⁺、Na⁺和 Sr²⁺顶替下来。

被悬浮物和胶体吸附的放射性物质将随水漂流,除少数被水生生物摄取外,大部分会逐渐沉降而蓄积在水底沉积物之中。而水体中的浮游生物及微生物的寿命大都较短,死亡后变为有机悬浮粒子和生物残骸,逐渐沉降至水底。因此,放射性核素在水体中的吸附与沉降作用是水体自净作用的主要途径。悬浮物含量愈高,水体的这种自净作用愈显著。对于三价的裂片核素及 Ac 系元素,由于易被悬浮物吸附,在沉积物与水之间的分配系数可达 10⁴以上,且不易从沉积物上解吸,因此这些核素可作为悬浮物迁移的指示物,而沉积物又可作为这些核素引起的污染事件的历史记录。这对研究环境放射性污染是很有价值的。

由于江河入海口及近海水体中存在大量的悬浮物,它们能有效地吸附各种放射性核素,特别是 Ac 系元素和稀土裂片核素,形成阻隔这些核素进入远海的屏障。但某些溶解性高的离子如 Cs⁺、TcO₄⁻,由于不易被吸附,或吸附后容易解吸,其在水体中的迁移距离要比易被吸附的核素远得多。

水体底部沉积物实际上是由悬浮物沉积而形成的。因此其对水中放射性核素的吸附机制与悬浮物是基本相似的,但也有不同之处。因为沉积物在水体底部,其间隙水中的含氧量少,特别是在具有高生物生产力的近海水域,沉积物中有机物含量高,常形成缺氧环境, E 值低,这会引发放射性核素的状态发生变化,从而引起吸附条件的改变,有的吸附能力下降,如¹⁰⁶Ru、⁵⁵Fe、⁵⁹Fe、¹⁴⁷Pm、⁵⁴Mn、⁹⁵Zr-⁹⁵Nb、¹⁴⁴Ce等;有的则吸附能力提高,如⁹⁰Sr、⁶⁵Zn、⁶⁰Co、⁹⁹Tc等。

5.2 放射性物质在地面水体中的运输、弥散和迁移

放射性物质在地面水体中的运输、弥散和迁移行为涉及水力学、水文学、化学及生物学等多种因素,其中包括水的流速、深度,水底类型和坡度,水体构型,水温,潮汐因素,风力,核素本身的物理、化学性质,水生物的种类和分布特点等。江河、湖泊、海洋等各类水体中污染物的运输、弥散机制是相似的,但因水体大小、形状、边界条件及水力学性质各不相同,不可能采用单一的模式作概括性的描述,只能根据各类水体的具体条件,对基本弥散方程作相对合理的简化与假设,从而得出各种适合不同水体条件的污染物浓度计算公式。

5.2.1 放射性物质在河流中的运输和弥散

5.2.1.1 运输弥散的机制

污染物在河流中的运输和弥散涉及其随水流向下游方向的平流运输和在水流、河宽及水深方向上的扩散,其中扩散过程又与分子扩散、湍流扩散、剪切流弥散和对流扩散等多种机制有关。

(1) 分子扩散 物质分子在水中不规则的随机运动(布朗运动)导致的物质迁移或分散现象称为分子扩散。当水中污染物浓度分布不均匀时,分子扩散将导致其从高浓度区向低浓度区迁移,从而使之进一步混合均匀,这一过程同样可用浓度梯度扩散理论加以阐述,即以分子扩散方式通过单位截面积的物质质量通量与其浓度梯度成正比,两者之间的比值为分子扩散系数(K_M)。

在河流中,分子扩散引起污染物弥散混合的作用比其它因素小得多,相应的分子扩散系数很小,因此,弥散计算中一般不予考虑。

(2) 湍流扩散 河水及水中污染物质的流动迁移大多呈湍流状态,由此导致污染物的扩散即为湍流扩散。这一过程同样可用浓度梯度扩散理论加以阐述,因此,在水流、河宽及水深方向上存在着三个相应的湍流扩散系数 K_x 、 K_y 、 K_z ,其数值比分子扩散系数 K_M 大 7~8 个数量级。

(3) 剪切流弥散 当河宽方向横断面上水流速度分布不均匀(存在流速梯度)时,水的流动状态称为剪切流。河流断面上不同点处湍流强度的时间平均值与其空间平均值之间存在着明显的系统差异,这将导致污染物的进一步分散,一般称为剪切流弥散。

(4) 对流扩散 水体不同深度处水温与密度往往呈层状分布,不同深度水层之间温度与密度的差异形成铅直方向上的对流运动,由此导致的污染物扩散迁移称为对流扩散。

自然水体中同时存在着上述各种扩散过程,除分子扩散之外,其它几种过程均与水的流动特性有着密切的联系,因此,研究污染物在水体中的弥散混合过程必须具体考虑不同水体中水的流动特征。

5.2.1.2 输运弥散的基本方程

污染物质在河流中的弥散混合过程包括随水流运动的平流输运及在水流、河宽及水深三个方向上的扩散,根据浓度梯度扩散理论及质量平衡原理,污染物在流动水体中的浓度分布同样可采用与大气湍流扩散相似的连续性方程描述:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial(uC)}{\partial x} + \frac{\partial(vC)}{\partial y} + \frac{\partial(wC)}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial x}(K_x \frac{\partial C}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y}(K_y \frac{\partial C}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z}(K_z \frac{\partial C}{\partial z}) + S \quad (5.1)$$

式中,

C ——水体中某点处污染物的浓度;

t ——时间;

x, y, z ——分别代表水流、河宽及水深方向;

u, v, w ——分别代表水的流速在 x, y, z 方向上的分量;

K_x, K_y, K_z ——分别代表 x, y, z 方向上的湍流扩散系数;

S ——输运过程中污染物浓度的源项或汇项。

扩散系数 K_x, K_y, K_z 为分子扩散系数及湍流扩散系数之和,如前所述,一般情况下分子扩散系数远小于湍流扩散系数。因此,它们实际上分别代表 x, y, z 方向上湍流强度的大小。

实际应用中,应根据地面水体的具体条件对方程作出合理和必要的简化,若不考虑传输过程中新的污染物源汇项、核素向水底的沉积及其它因素(如核素的衰变)造成的污染物浓度增加或耗减,则其中增减项 $S=0$;而且,在均匀、平稳的水流场中不存在 y, z 方向上的

二次流组分,则 $v = w = 0$, 式(5.1)即可简化为

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial(uC)}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial x}(K_x \frac{\partial C}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y}(K_y \frac{\partial C}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z}(K_z \frac{\partial C}{\partial z}) \quad (5.2)$$

5.2.1.3 污染物在河流中的输运与弥散过程

废水经由排放口释入河流中以后,污染物随即在河水中输运和弥散,在通常的宽浅河流中,污染物在随水流向下游方向输运的过程中,一般先在水深方向上混合均匀,垂向混合的快慢和河流与废水之间流速及密度的差异、排放口的形式(水面或水下排放口,射流或非射流式排放口)有关。在无浮力效应及非射流排放的情况下,达到垂向混合均匀所需的距离与水深成正比,一般为排放口处水深的几十倍到 100 倍。

污染物在水深方向上弥散混合的同时,在河宽方向上也逐渐与河水混合(图 5.1),在宽浅河流中,达到横向混合均匀所需的距离比垂向混合距离长得多。横向混合均匀后,河流断面上各点处污染物浓度即呈完全均匀分布。如图 5.1 所示,一般将废水排入前的河段称为上游河段,排放口直至横向混合均匀断面之间的河段称为混合过程河段,横向混合均匀后的河段称为完全混合河段。显然,污染物在混合过程河段及完全混合河段中的弥散情况具有明显的差异,应采用不同的浓度公式进行计算。

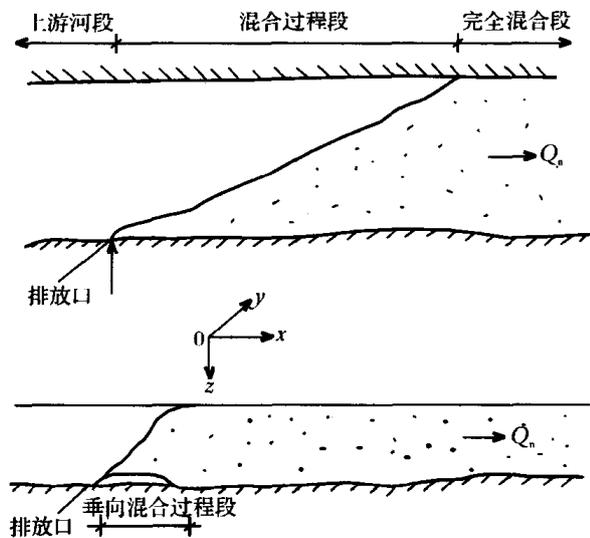


图 5.1 河流混合稀释示意图

5.2.1.4 连续点源的弥散模式

污染物若以恒定的排放速率排入均匀平稳流场的河流中,可按连续点源排放的污染物在平稳弥散状态介质中的混合模式估

算河水中污染物浓度的分布。这种条件下,排放开始后不久,水中各点处污染物浓度分布将保持恒定,不随时间而变化($\frac{\partial C}{\partial t} = 0$),河水的流速及扩散系数亦为恒定值,因此,式(5.2)可简化为

$$u \frac{\partial C}{\partial x} = K_x \left(\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \right) + K_y \left(\frac{\partial^2 C}{\partial y^2} \right) + K_z \left(\frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \right) \quad (5.3)$$

(1) 横向混合均匀前 在横向混合均匀前的混合过程河段中,由于垂向混合距离很短,计算中一般假设该河段中污染物在水深方向上已与河水混合均匀($\frac{\partial^2 C}{\partial z^2} = 0$)。污染物只是在河宽与水流方向上弥散,而且,在河水流速不太小的情况下,沿水流方向的平流输运对弥散过程所起的作用远大于同一方向上湍流扩散的影响($u \frac{\partial C}{\partial x} \gg K_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}$)。因此,式(5.3)可进一步简化为

$$u \frac{\partial C}{\partial x} = K_y \left(\frac{\partial^2 C}{\partial y^2} \right) \quad (5.4)$$

此式即为守恒污染物在河流中二维稳态混合的基本方程。

1) 宽河流 无限宽水面中心处二维稳态条件下连续点源排入时,可不考虑河岸对污染物的反射作用。若以排放口处为坐标原点($x=0, y=0$),该方程的边界条件为: $x=y=0$ 时, $C \rightarrow \infty$, $x, y \rightarrow \infty$ 时, $C=0$ 。连续条件为单位时间内通过下游任意 $y-z$ 平面的物质量等于源强 Q ,即

$$Q = \int_{-\infty}^{\infty} \int_0^h Cu \, dy \, dz \quad (5.5)$$

式中,

h ——河流的水深;

u ——河水的流速。

在上述条件下,式(5.4)的解为

$$C(x, y) = \frac{1 \times 10^{-3} Q}{h \sqrt{4\pi K_y u x}} \exp\left(\frac{-y^2 u}{4K_y x}\right) \quad (5.6)$$

式中,

C ——排放口下游(x, y)点处水中污染物的浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 或 $\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$;

Q ——污染物排放率, $\text{mg} \cdot \text{s}^{-1}$ 或 $\text{Bq} \cdot \text{s}^{-1}$;

K_y ——横向扩散系数, $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 。

若考虑短寿命核素在向下游输运过程中衰变所导致的浓度耗减,计算结果应乘以相应于核素衰变的耗减修正因子 $\exp\left(\frac{-\lambda_r x}{u}\right)$,其中 λ_r 为核素的物理衰变常数(s^{-1})。

2) 窄河流 式(5.6)中未考虑河岸对污染物弥散的阻碍和反射作用,在有限宽度的河流中,污染物扩散到与河岸接触时,有可能被吸收粘附在河岸坡表面上,也可能被反射回河水中,导致浓度的增高。这种情况下,从安全而偏保守的角度考虑,应按完全反射条件进行估算。一般情况下,废水排放口位于一侧河岸,离岸可能有一段距离,这时,设排放口坐标位置为 $x=0, y=y_s$ (离岸距离),考虑河岸对污染物弥散的多次反射,在 $x=0, y=B$ 处 $\frac{\partial c}{\partial y}=0$ 的边界条件下,式(5.4)所示的二维稳态条件下弥散方程的解为

$$C(x, y) = \frac{1 \times 10^{-3} Q}{F} \left[1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \exp\left(\frac{-n^2 \pi^2 x K_y}{u B^2}\right) \cos \frac{n \pi y_s}{B} \cos \frac{n \pi y}{B} \right] \exp\left(\frac{-\lambda_r x}{u}\right) \quad (5.7)$$

式中,

F ——河水流量 F_r 与废水流量 F_w 之和, $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$;

B ——河流宽度, m ;

y_s ——排放口离岸边距离, m 。

式中反射项中 n 取至 3~4,该方程即可趋近收敛。利用该式求得的河水污染浓度可用于因饮水、农田灌溉等途径所致公众内照射剂量的估算。当无法确定取水口离岸边的距离时,可按 $y=0$ (岸边取水)条件进行估算。

(2) 横向混合均匀后 连续点源二维稳态弥散(混合过程河段内)的条件下,河宽方向水中污染物浓度近似地呈正态分布。随着输运距离 x 的增大,横向浓度分布逐渐趋向均

匀,当某一断面上最大浓度与最小浓度相差不到5%时,即可认为已达到混合均匀,在完全混合距离以下,即称为完全混合河段。理论分析及实验确定的完全混合距离可按以下两式估算:

河心排放条件下

$$x_m = \frac{0.1uB^2}{K_y} \quad (5 \cdot 8)$$

岸边排放条件下

$$x_m = \frac{0.4uB^2}{K_y} \quad (5 \cdot 9)$$

岸边排放时,也可近似地取 $x_m \approx 40B$ 。

污染物在完全混合河段中的弥散主要涉及其随水流向下流的输运,在短寿命核素很快衰变,水流方向上存在明显的核素浓度梯度的情况下,还应考虑其在 x 方向上的湍流扩散。这时,可用一维稳态湍流方程估算排放口下游河水中污染物的浓度:

$$C(x) = \frac{1 \times 10^{-3} Q}{F \sqrt{(1 + \alpha)}} \exp\left[\frac{xu}{2K_x}(1 - \sqrt{(1 + \alpha)})\right] \quad (5 \cdot 10)$$

其中,

$$\alpha = 4\lambda_r K_x / u^2 \quad (5 \cdot 11)$$

上两式中,

K_x ——水流方向上的扩散系数, $m^2 \cdot s^{-1}$;

λ_r ——核素的衰变常数, s^{-1} 。

即使在短寿命核素很快衰变的情况下, x 方向上的扩散对污染物弥散的贡献还是很小的,许多情况下,可认为 $\alpha \ll 1$,因此,式(5·10)可进一步简化为

$$C(x) = \frac{1 \times 10^{-3} Q}{F} \exp\left(\frac{-\lambda_r x}{u}\right) \quad (5 \cdot 12)$$

利用该式求得的河水污染浓度可用于水的浸没剂量及食入水生物所致剂量的估算。

5·2·1·5 瞬时点源弥散模式

事故情况下,污染物在极短的时间内大量排入河流中,将造成一定河段内水块的污染。污染水块随水流向下流平流输运的同时,其长度将逐渐拉开,形成随距离增大而逐渐变大的“污染斑”,但其中心区峰值浓度将随距离增大而逐渐降低(图 5.2)。取污染物排放时刻 $t=0$,可按下述公式分别求得混合过程河段及完全混合河段内河水污染浓度的时间—空间分布。

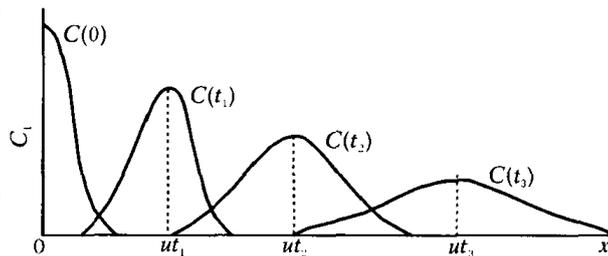


图 5.2 瞬时点源释放所致下游不同 x 距离上横截面平均浓度随时间的变化

(1) 横向混合均匀前 在横向混合均匀前的混合过程河段内有

$$C(x, y, t) = \frac{1 \times 10^{-3} Q}{Bh \sqrt{4\pi K_x t}} \exp\left[-\frac{(x - ut)^2}{4K_x t} - \lambda_r t\right] \cdot$$

$$\left[1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 K_y t}{B^2}\right) \cos \frac{n \pi y_s}{B} \cos \frac{n \pi y}{B}\right] \quad (5 \cdot 13)$$

式中,

C ——排放后 t 时刻下游 (x, y) 点处河水污染浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 或 $\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$;

Q ——污染物一次排放总量, mg 或 Bq 。

(2) 横向混合均匀后 在横向混合均匀后的完全混合河段内有

$$C(x, t) = \frac{1 \times 10^{-3} Q}{Bh \sqrt{4\pi k_x t}} \exp\left[-\frac{(x - ut)^2}{4K_x t} - \lambda_r t\right] \quad (5 \cdot 14)$$

5.2.1.6 扩散系数值的选定

(1) 横向扩散系数值 K_y 采用二维稳态弥散模式估算河水中守恒或非守恒污染物浓度分布时, 都需要横向(河宽方向)扩散系数 K_y , 根据扩散理论, K_y 值与水深 h 及河流的摩阻流速(剪切流速) u^* 有关:

$$K_y = a h u^* \quad (5 \cdot 15)$$

式中,

a ——与河道断面形状、弯曲程度等因素有关的比例系数;

u^* ——河流的摩阻流速, $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

摩阻流速 u^* 可按下式计算

$$u^* = \sqrt{g h I} \quad (5 \cdot 16)$$

式中,

g ——重力加速度, $\text{m} \cdot \text{s}^{-2}$;

I ——河流的水力坡度。

实验资料表明, 人工护坡的矩形断面平直河道或渠道中, 比例系数 $a = 0.1 \sim 0.2$, 故常取 $K_y = 0.15h u^* = 0.15h \sqrt{g h I}$; 灌溉渠道中 $a = 0.24 \sim 0.25$, 故取 $K_y = 0.245h \sqrt{g h I}$; 天然河道常不规则, 极少有矩形断面的河道, 河道的弯曲、水深的变化及岸坡的不平整, 使比例系数 a 值变化很大, 一般情况下, 可取 $a = 0.6$, 故 $K_y = 0.6h \sqrt{g h I}$ 。必要时, 应通过实地观测确定 a 值。

(2) 纵向弥散系数 K_x 河流纵向(水流方向)扩散与输运作用混杂在一起, 实地观测中很难加以区分。由于输运导致的弥散比扩散的影响大得多, 因此, 实验资料给出的 K_x 值常称为纵向弥散系数。

不同河流中 K_x 值变化很大, 资料表明, 河宽 $15 \sim 60\text{m}$ 的天然河道中, $K_x = 14 \sim 650$, 河宽 200m 时, K_x 值高达 7500 , 平直渠道中 $K_x > 6$ 。在缺乏确切实验资料的情况下, 可用下式估算 K_x 值:

$$K_x = 0.011 \frac{u^2 B^2}{h u^*} \quad (5 \cdot 17)$$

5.2.2 放射性物质在其它水体中的输运和弥散

5.2.2.1 湖泊

一般情况下, 湖水的流速较小, 更新率很低, 污染物排入湖泊中以后, 在湖泊中的滞留时

间较长,其在湖水中的弥散和混合与湖泊的大小、形状、水深及滞留时间等诸多因素有关。

即使在较小的湖泊中,污染物的滞留时间也可长达几天以至几个星期。因此,在污染物连续释放的条件下,若忽略释放开始后短时间内的输运、弥散过程,可认为污染物在全部湖水中的浓度呈均匀分布,其污染程度只与污染物随废水的排放率、湖泊的总贮水量及穿越湖泊的河水及废水的总过水流量有关。根据质量平衡原理,湖水中污染物平均浓度随时间的变化可用下式描述:

$$\frac{dC}{dt} = \frac{Q - CF}{V} \quad (5 \cdot 18)$$

式中,

t ——污染物排放开始后的时间;

C —— t 时刻湖水中污染物的平均浓度;

Q ——源强,污染物的排放率;

F ——穿越湖泊的总过水量,为废水流量 F_w 及穿越河流的水流量 F_r 之和;

V ——湖泊的总贮水量。

当湖水中污染物浓度达到平衡时,有 $dC/dt = 0$,即 $Q = CF$,则有

$$C = \frac{1 \times 10^{-3} Q}{F_r + F_w} \quad (5 \cdot 19)$$

式中,湖水污染浓度 C 的量纲为 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 或 $\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

考虑短寿命核素衰变导致的湖水污染浓耗减时,式(5.19)可改写为

$$C = \frac{1 \times 10^{-3} Q}{F_r + F_w + \lambda_r V} \quad (5 \cdot 20)$$

式中,

λ_r ——核素衰变常数, s^{-1} 。

5.2.2.2 海洋

海洋是一个庞大的水系,放射性物质在海洋中的弥散混合及迁移不仅取决于污染物的排放方式及放射性核素的理化特性,还与海洋的水力学特征和水文特性有密切的关系。

根据与陆地之间的距离、水深及海底地形,海洋可分为近岸带、大陆架及深海三类海域。

近岸带包括岸边的潮间带、河口区及被陆地部分封闭的海域(如海港、海湾、泻湖和被边沿岛屿与公海隔开的海峡),沿海核设施的放射性废水大多排入近岸带海域内。

大陆边缘远端的海底属大陆板块的海下延伸部分,故称为大陆架,其水深一般都大于200m,其范围为从海岸向外延伸几公里至150km不等的距离。大陆架海域中的动物区与深海区有明显的差异,常称为浅海区。

大陆架往外,海底坡度陡峭的海区为大陆坡,接着是坡度较平缓的大陆隆,最后是深度为4000~6000m的深海平原,局部海区还存在海山、峡谷、海底盆地、海脊、海沟等地形,这些大陆架以外的海域又称为深海区或大洋区。

近岸带海域存在着明显的海流运动,它或由大尺度的大洋环流造成,或为区域性的风生海流,一般均沿海岸线基本走向流动。有些浅水海域还受潮汐和风向的影响,存在明显的水平及垂直混合过程。有的海域潮汐运动不明显,来自陆地的淡水径流又明显地抑制了水体中的混合和交换。污染物进入这类海域后,在水深方向很快混合均匀,其弥散混合过程主要

取决于水平方向的混合及交换程度的大小,而且,由于海岸线的约束,水平方向的弥散混合一般只局限于180°的扇形范围内。在半封闭的海港与海湾中,污染物的弥散范围更为有限,与湾外水体之间的交换只限于潮汐的移运作用,因此,与污染物在湖泊中的弥散混合过程类似,从河口排入的污染物在海湾水域中的浓度有可能达到某一平衡水平。在河口海域,由于淡水的进入,海水呈现比其它海域更加明显而复杂的密度分层,水流运动千变万化,而且还存在大量的沉积物的往复运动和迁移,污染物的弥散过程更显复杂。

在大洋区,由于风浪的作用,表层海水中的混合过程相当迅速和完全,这一层海水在垂直方向上温度、含盐量及密度分布是均匀的,故称为表面混合层。大洋区不同海域内表面混合层的深度为10~200m。风的运动还造成大洋表面特有的海流,其流速可达70~190 km·d⁻¹。污染物进入大洋区后,在表面混合层内很快地混合均匀,海流的输运作用及湍流所导致的水平扩散是使之扩散混合的主要因素,污染物向深层海水的扩散迁移则非常有限。

(1) 浅海区和大洋表层

1) 瞬时点源的弥散模式 海洋湍流的水平尺度比其垂直尺度要大得多,因此,水平扩散对污染物的弥散混合起着决定性的作用,一般认为,在平均流型为各向同性的条件下,在浅海区及大洋表层内瞬时点源释放的污染物浓度以源点为中心呈对称分布。最大浓度位于源点处,其周围海水中的浓度只与释放后的时间 t 及离源点距离(径向距离) r 有关。对 t 时刻距离 r 处污染物浓度 $C(r, t)$ 的估算有许多公式可供选用,其中约瑟夫公式为

$$C(r, t) = \frac{1 \times 10^{-3} Q}{2\pi h p^2 t^2} \exp\left(\frac{-r}{pt}\right) \quad (5 \cdot 21)$$

式中,

C ——释放后 t 时刻距离 r 处海水的污染浓度, mg·L⁻¹ 或 Bq·L⁻¹;

Q ——源强, 污染物一次释放总量, mg 或 Bq;

h ——污染物浓度呈均匀分布的水层厚度, 浅海区取实际水深, 大洋区取表面混合层厚度, m;

p ——水平扩散速度, m·s⁻¹;

t ——释放后的时间, s;

r ——径向距离, m。

在大洋区, 扩散速度 $p = 0.005 \sim 0.015 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, 在浅海区则更小些。

显然, 源点处海水中污染物最大浓度为

$$C(0, t) = \frac{1 \times 10^{-3} Q}{2\pi h p^2 t^2} \quad (5 \cdot 22)$$

在不考虑核素衰变所导致的浓度耗减条件下, $C(0, t)$ 与 t^2 及 p^2 成反比递减。

2) 连续点源弥散模式 对于沿海核设施连续向海洋排放放射性废水导致核素在近海水域中的弥散混合, 由于水深较浅, 可假设其在垂直方向上呈均匀分布, 故不考虑垂向扩散的影响, 核素随海流的输运及水平扩散是导致其弥散混合的主要因素。显然, 这种情况下可采用前述无限宽水面河流中心处二维稳态连续点源浓度公式[式(5·6)]估算排放口 ($x = y = 0$) 下游不同点处的海水污染浓度, 而海流中心轴线上的浓度则为

$$C(x) = \frac{1 \times 10^{-3} Q}{h \sqrt{4\pi K u x}} \quad (5 \cdot 23)$$

式中,

K ——水平方向(海流方向与横向)扩散系数, $m^2 \cdot s^{-1}$;

u ——海流流速, $m \cdot s^{-1}$ 。

(2) 大洋深层 有些国家计划在大洋深层处置中、高放射性固体废物,对深层海水中物质的迁移机制作过一些研究。有人估计在 750~1750m 深度范围内物质的垂直扩散速度为 $(0.5 \sim 2)m \cdot a^{-1}$,如果将此数值应用于较深的海域中,那么在 3000m 深处从废物体渗入海水中的可溶性放射性物质,在 1000a 以后也不会上升到海洋表层而影响人类。但是,某些海域中垂直向上的“海涌”速度可达每天几米,污染物质的垂直迁移则大为加快。

深海中海水的水平流速为 $2.4 \times 10^{-4} \sim 2.4 \times 10^{-3} m \cdot s^{-1}$,据此估计,水平迁移过程可使深层海水中的可溶性放射性物质在 40~400a 内遍及整个大西洋海域的深海区。

5.2.2.3 河口段

太阳引力、月球引力和地球转动离心力之间的相互作用造成了海洋中的潮汐运动,潮汐按其周期特性可分为全日潮、半日潮和混合潮三种,地球-月球系统与太阳相对位置的不同又造成潮幅大小的差异,农历初一、十五为大潮,初八、廿三为小潮。江河入海口附近一定长度的河段称为河口段,潮汐运动对该河段内的水流状态及污染物的弥散混合有明显的影 响,故又称为感潮河段。

海洋潮波传到岸边后,将继续向河口段传播,感潮河段内的潮汐过程一般可分为四个阶段:

第一阶段,海洋潮波侵入河口之初,河水受海水的顶托,使水面壅高,河水流速减缓,但水流仍流向海洋。由于淡水与海水密度的不同,河口横断面上可能出现上下两层方向相反的水流,上部淡水层流向海洋,下部海水层流向河流上游方向;

第二阶段,随着海水继续入侵,河流水位不断上涨,潮流继续加强,以至其速度与河水流速相等而方向相反,总体流速为零,而后河流整个断面上水流完全转向上游方向流动,水面呈现逆比降(河流下游水位高于上游水位);

第三阶段,海洋中开始落潮,河口段水位亦开始下降,水面逆比降变缓,逆向流速逐渐减小,但总体上仍流向上游方向;

第四阶段,河口段水位继续下降,河流上游来水流速增大,潮流速度减小,以至两者相等而方向相反,总体流速为零,而后水流重又流向海洋。

潮汐运动对污染物在河口段内的弥散混合有两方面的影响,一方面大量海水与上游河水的混合加强了污染物的混合扩散;另一方面,潮汐对河水的顶托又延长了污染物在河口段内的滞留时间,使之有可能进一步产生某些化学与生物反应。此外,潮水带来的盐分也会造成水质的污染。

感潮河段内水深方向上的混合扩散作用也可忽略,当断面宽度远较其长度为窄时,横向混合扩散作用也很小,涨潮、落潮时水流的上下往复流动是导致污染物在河口段内弥散混合的主要因素。因此,也可近似地采用一维模式描述水中污染物浓度的分布。

涨潮时,水流向上游方向上溯流动,在 $x=0$ 处连续排入河口段内的放射性核素在排放口上游($x < 0$)河段内的浓度分布为

$$C(x) = \frac{1 \times 10^{-3} \dot{Q}}{F \sqrt{(1 + \alpha)}} \exp\left[\frac{xu}{2K_x} (1 + \sqrt{(1 + \alpha)})\right] \quad (5 \cdot 24)$$

式中,

F ——河水流量(包括潮水流量) F_r 及废水流量 F_w 之和, $m^3 \cdot s^{-1}$;

α ——按式(5.11)计算的中间变量。

落潮时,河水已恢复流向海洋,即可按式(5.10)或式(5.12)计算在排放口下游($x > 0$)河段内核素的浓度分布,但河水流量 F_r 中无潮水的份额。

河口段长度可按以下原则确定,即以落潮时河流断面最大平均流速与涨潮时断面最小平均流速之差为 $0.05m \cdot s^{-1}$ 处的断面位置作为河口段与正常河段的划分界限。

5.2.3 底质污染及其对水体污染的调节作用

除了随水流运动的输运和弥散(污染物随水流的平流输运和在水中的扩散混合)之外,放射性核素在地面水体中的迁移还涉及其在胶体和悬浮物颗粒表面上的吸着和解吸、颗粒物的沉降和再悬浮以及颗粒物在水中的输运等一系列复杂的物理及化学过程。

废水中的放射性核素大部分呈溶解的离子状态,小部分则吸着在水中的胶体或悬浮物颗粒表面。废水排入地面水体以后,由于介质环境(酸碱度、温度、流速等条件)的改变,离子状态的放射性核素可被地面水中胶体或悬浮物颗粒所吸着,废水中的胶体及悬浮物颗粒又可因凝聚作用而与水体中的颗粒结合在一起,水中离子状态放射性核素的浓度即大为降低(天然水体条件下,水中悬浮状态及离子状态核素浓度之比约为1:1)。

胶体及悬浮物颗粒在水体中的迁移行为因颗粒大小及水的湍流强度不同而变化,粒径较小的胶体颗粒($< 0.1\mu m$)及泥砂颗粒在水中将长期保持悬浮状态,作为悬移质随水流向下游方向输运,在下游水流速度、河床条件发生变化的某些河段上则可因凝聚、沉降而沉积于水底。粒径较大的悬浮物颗粒($4 \sim 60\mu m$)则作为推移质在水体中呈现周期性的跳跃或迁移,它们或是沿河床滚动,或是随水底泥砂滚动,较大的颗粒状污染物往往因重力沉降而沉积在排放口下游仅几百米范围的底质泥中,在丰水期水流量明显增大时,才可能被水流重新冲起而再次向下游方向迁移。

当河流流入湖泊中时,在近入口处(常常是在水下三角洲),河水中大量的悬浮物颗粒会因沉降而很快沉积下来。这些地方不同深度底质泥中污染物浓度的分布可以反映河水中悬浮物颗粒污染状况的历史变迁,通过对湖泊表层沉积物的全面取样监测,也可揭示主要沉积湖盆内污染核素的分布状况及其最终归宿。

除了悬浮物颗粒的沉降之外,水中离子状态的放射性核素在底质泥间隙水中的扩散,因吸着作用而导致其与底质泥颗粒之间发生的固-液两相间再分配,也可使底质泥在相当深度范围内出现明显的污染。

与底质泥颗粒相结合的放射性核素,会因再悬浮作用重新悬浮在水中,以至在水深较浅的大湖底部形成高混浊度且明显污染的浓积层。

无论生物物质或矿物质颗粒,对核素在水体中的迁移及最终归宿都起着重要的作用。一般说来,悬浮物颗粒中核素污染浓度远比水相中浓度为高,因此,颗粒物组成对核素在水中的形态及其生物可利用性有明显的影响。与矿物质颗粒结合的污染核素,其生物可利用性较小,因再悬浮而进入人的食物链的可能性也较小;反之,与有机或生物物质颗粒相结合的污染核素,其生物可利用性较大,进入食物链对人造成内照射危害的潜在危险将长期存在。

悬浮物颗粒及吸收了放射性核素的水生物残骸的沉积及底质的吸着作用,使水底成为

放射性核素的一个巨大的“贮存库”。在地面水污染浓度的预测模式中,理应引入适当的参数项,对这一因素导致的污染浓度耗减作必要的修正。另一方面,解吸及再悬浮作用又会使蓄积在底质中的放射性核素在水体中发生再循环,因此,长期受纳放射性废水的地面水体,即使在停止受纳废水之后,水的放射性污染仍将长期存在,在辐射环境影响评价及辐射环境管理中,对底质造成水体的继发性污染应有足够的重视和适当的考虑。

参 考 文 献

- 1 强亦忠主编. 简明放射化学教程. 北京:原子能出版社,1989
- 2 《环境科学大词典》编辑委员会. 环境科学大词典. 北京:中国环境科学出版社,1991
- 3 《中国大百科全书环境科学卷》编辑委员会. 中国大百科全书环境科学卷. 北京:中国大百科全书出版社,1982
- 4 柴之芳等. 微量元素化学概论. 北京:原子能出版社,1994
- 5 强亦忠. 环境放射化学. 原子能科学技术,1988,22(3):372
- 6 赵经涌主编. 辐射效应与职业危害防治. 北京:原子能出版社,1995
- 7 岩仓哲男. 环境モニタリングの今日の意味. 东京:实业公报社,1991
- 8 Adriano et al. Environmental Chemistry and Cycling Processes. Technical Information Center. U. S. Department of Energy, 1978
- 9 Cataldo et al. Technetium in the Environment. Elsevier Applied Science Pub., London: 1986
- 10 史宝忠编著. 建设项目环境影响评价. 北京:中国环境科学出版社,1993
- 11 F. W. 魏切尔等著,放射生态学——核能与环境,第二卷. 卜石等译. 北京:原子能出版社,1991
- 12 章仲侯主编. 放射卫生学. 北京:原子能出版社,1985
- 13 俞誉福编著,环境放射性概论. 上海:复旦大学出版社,1993
- 14 潘自强等编著. 中国核工业三十年辐射环境质量评价. 北京:原子能出版社,1990
- 15 B. T. 哈特编著. 水质管理——水环境中污染物的迁移和归宿. 张立成等译. 北京:中国环境科学出版社,1991
- 16 国家环保局监督管理司. 环境影响评价培训教材(内部资料). 北京:1995

第 6 章 放射性物质在岩石、土壤和地下水中的行为

岩石中含有地球形成时即已存在的各种原生放射性核素,某些情况下,岩石也会受人工放射性核素的污染。岩石中的放射性核素会经由全球水循环而进入地下水、地面水和土壤中,矿物开采则可能使其直接对公众造成程度不同的辐射照射。

土壤是植物赖以生长的基础,与空气、水一起构成地球上一切生物维持生命所必需的三大基本环境要素。

气载放射性核素的沉积(重力沉降、干沉积、湿沉积),固体放射性废物的近地表埋藏处置,污染的地面水灌溉农田,都可能造成土壤的放射性污染。

表层土壤的放射性污染将对人直接造成外照射,根部吸收过程导致的农作物污染会经食物链途径对人造成内照射,土壤表层颗粒和沉积物被风扬起(再悬浮)则会经呼吸途径对人造成内照射。

地下水与地面水共同构成地球上的天然水系统。放射性物质在地下水中的弥散迁移是导致其向人转移并造成辐射照射的一个重要途径。固体放射性废物的地下处置,核设施正常运行和事故情况下的液态流出物排放,都可能造成地下水不同程度的污染。

放射性物质进入地下水后,将随地下水的运动而弥散迁移,同时会因机械过滤,物理、化学或物理-化学吸附,沉淀,氧化还原等作用而被包气带及含水地层中矿物颗粒截留。一般情况下,放射性物质在地下水中的迁移过程要比大气和地面水体中慢得多;反之,当有补给水进入地下水系统时,溶解、淋滤解吸及某些微生物的作用又会使沉淀、吸附于矿物颗粒表面的放射性物质重新进入水中,成为地下水的二次污染源。因此,就放射性核素在环境中的迁移而言,应把岩石、土壤和地下水看成一个统一的系统。

6.1 岩石、土壤和地下水系统

6.1.1 岩石

6.1.1.1 岩石的成因和分类

岩石按成因可分为岩浆岩、变质岩和沉积岩三大类。

岩浆冷凝固化形成的岩石称为岩浆岩。其中,岩浆在地下深处冷凝固化而形成的为侵入岩(深成岩);因火山活动喷发到地表的岩浆冷凝固化形成的为火山岩(火山岩或喷出岩);浅表地层中岩浆冷凝固化形成的为浅成岩(次火山岩)。按岩石中 SiO_2 含量的不同,岩浆岩又可为基性岩、中性岩和酸性岩等几种类型。

沉积物经水的运移、沉积后,因自然胶结、压实等岩化机制而形成的岩石称为沉积岩,如页岩、砂岩、砾岩、灰岩等。

地壳构造循环中产生的热量、压力及化学活性流体,可改变原有岩石的矿物成分和结构,从而形成新的变质岩,如板岩、片岩、片麻岩、大理岩等。

6.1.1.2 岩石中放射性核素的来源和分布

(1) 天然放射性核素 自地球形成以来,地壳岩石中就存在有原生放射性核素,其半衰期很长,可与地球年龄相比较。主要的原生放射性核素是 ^{40}K 、 ^{232}Th 和 ^{238}U ,次要的有 ^{235}U 和 ^{87}Rb ,其中 ^{238}U 和 ^{232}Th 是两个天然放射系的母体核素。

各类岩石因结构构造和矿物成分的差异,原生放射性核素的含量有明显的不同。表6.1所示为几种岩石中铀、钍、镭、钾的含量。一般情况下,酸性岩浆岩(如花岗岩等)铀、钍含量较高,基性岩浆岩铀、钍含量最低。同一类型的花岗岩中,成岩年代愈近,铀、钍含量愈高;沉积岩放射性元素含量差异很大,一般以泥质页岩为最高,碳酸盐岩、岩盐、石膏中为最低;变质岩中放射性元素的含量与原有岩石中的矿物成分有关,同时,变质过程也会使之发生改变。

表 6.1 铀、钍、钾、镭在几种岩石中的含量

岩石类型	$\text{K}^{\text{①}}$ (%)	$\text{U}(10^{-6})$	$\text{Th}(10^{-6})$	$\text{Ra}(10^{-12})$	Th/U
基性岩	0.83	0.5	3.0	0.38	6.0
中性岩	2.31	1.8	7.0	0.51	4.0
酸性岩	3.34	3.5	18.0	1.38	5.1
砂岩	1.2	3.0	10.0	0.5	3.3
页岩	2.7	4.0	11.0	17.5	2.8
灰岩	0.3	1.4	1.8	0.5	1.3
片麻岩	2.0	1.0	8.0		5.0
角闪岩	0.7	1.0	4.0		4.0
大理岩	0.4	1.1	1.8		1.6

①天然钾中 ^{40}K 含量为0.0119%。

除原生放射性核素外,岩石中还含有某些宇生放射性核素(^{14}C 、 ^3H 等)及重元素自发裂变或诱发裂变而产生的 ^{95}Zr 、 ^{137}Cs 等天然裂变产物核素。

(2) 岩石放射性污染的来源 大气核试验产生的放射性沉降物,核设施放射性流出物的排放,雨水对铀矿冶废矿石及尾矿堆场的冲刷,都可能造成空气、土壤和地面水的放射性污染,并进而造成地下水的污染。污染的地下水在岩层裂隙中流动过程中,放射性核素会因机械过滤、离子交换、胶体吸附、化学反应、沉淀等物理或化学过程而被岩石中矿物成分吸着。建造在地下深处岩层中的高放射性废物地质处置库一旦出现泄漏,则会直接造成库外岩层的放射性污染。

6.1.2 土壤

6.1.2.1 土壤的性质和分类

土壤一般是指基岩层以上有植物生长的疏松物层,它以不连续的状态覆盖于地球表面,又称为土圈,其厚度从零到几十米,有些地区可达百米以上。

土壤的基本成分是岩石和水循环系统之间长期风化作用形成的风化状岩石物质。在气候、地形、原始物质(母质)、时间和生物等多种因素的综合影响下,风化状岩石物质经由成壤作用而逐渐形成土壤。

除了矿物质以外,土壤的组成成分还包括水、空气和有机质,这些组分以紧密混合的状态存在于土壤中,各组分之间的相对比例则与气候、土壤类型、土层深度等因素有关。与表

层土相比,亚层土中有机质和空气含量较低,矿物质和水的比例较高;在植物生长良好的表层沃土中,矿物质的体积比约为45%,有机质约占5%,空气和水各占20%~30%。

土壤中的矿物质包括原生矿物(石英、长石类矿物、云母类矿物、辉石、角闪石等)和次生矿物(碳酸盐、硫酸盐、氯化物、水合氧化物等),其化学组分以 SiO_2 、 Al_2O_3 、 Fe_2O_3 、 FeO 、 CaO 、 MgO 为主。

土壤有机质是土壤中各类含碳有机化合物的总称,其中包括各种有机化合物(非腐殖质,主要是碳水化合物和含氮化合物),约占有机质总量的30%~40%;另一类是土壤腐殖质(主要是胡敏酸和富里酸),约占有机质总量的60%~70%。

土壤水保持在土壤孔隙中,各类土壤因其孔隙度、颗粒特性和孔隙中存水量的不同而呈现不同的韧性。土壤水按物理状态可分为重力水、毛细水和吸着水。重力水因其与颗粒间的吸力较小,在重力作用下可自由流动,并占据较大的孔隙,从而降低了土壤的通气性;毛细水主要存留在毛细孔隙中;被土壤颗粒牢固吸着的土壤水,称为吸着水,主要以蒸汽状态在土壤中移动。

土壤空气与大气有许多不同之处,它以非连续状态存在于土壤孔隙中;其水分含量比大气高; CO_2 含量比大气高5~50倍,且与 O_2 含量存在着负相关,两者总量约占土壤空气总体积的21%。土壤空气中氮的体积含量为79%,通气性较差的土壤中,还可能存在 N_2O 、 NO 、 H_2 、 CH_4 和 H_2S 等气体成分。

土壤在其垂直剖面上具有明显的分层现象,各层土壤的颜色、成分、结构存在相当大的差异,土壤性质分层差异的程度与气候、生物、母质、地形和发育时间等多种因素有关。土壤中物质的迁移和转化过程,不仅发生于各种组分之间,也存在于各土层之间,因此,土壤环境质量评价不应只限于表层土壤,必须考虑整个剖面上不同的土层。

土壤成分和结构十分复杂,决定了发生于其中的物质迁移和能量传递过程亦十分错综复杂。其中主要的过程包括矿物的分解和次生粘粒矿物的合成,有机物的分解和腐殖质的形成,有机物质和无机物质的淋溶和淀积,土壤胶体对离子的交换吸附作用,土壤中的酸碱中和及其缓冲作用,土壤中的氧化还原作用等。

土壤按其无机矿物组分中砂粒、粉砂粒及粘粒组成的不同,可分为多种质地类型(表6.2)。

表 6.2 土壤的质地分类

质地组	质地名称	颗粒组成 ^① (%)		
		砂粒 1~0.05	粉砂粒 0.05~0.01	粘粒 <0.001
砂土	粗砂土	>70		
	细砂土	60~70		
	面砂土	50~60		
壤土	砂粉土	>20		
	粉土	<20	>40	<30
	粉壤土	>20	<40	
粘土		<20		
		>50		>30
	粉粘土			30~50
	壤粘土	—	—	35~40
	粘土			>40

①颗粒粒径为 mm。

6.1.2.2 土壤中放射性核素的来源和分布

(1) 土壤中的天然放射性核素 世界上大部分地区基岩层表面被土壤覆盖,因此,土壤辐射是陆地辐射的重要来源,决定了环境本底辐射水平的高低。土壤中主要原生放射性核素的比活度见表 2.3。

地质环境对土壤中天然放射性核素的含量起着决定性的影响,印度喀拉拉邦土壤中富含天然钍含量极高的独居石矿物,当地环境本底辐射水平比全球平均值高出约一个数量级。

表层土壤中氡的含量与季节及温度有很大的关系,由于大气温度结构随季节的改变,夏季气流由大气流入土壤,导致土壤表面氡的析出率明显降低,土壤中氡的浓度明显增高;冬季气温明显低于土壤温度,氡析出率增大,土壤中氡的浓度明显降低。土层深度对氡含量也有明显影响,2.5m 深处土壤空气中氡的浓度比表层土中高一个数量级。此外,土壤通气性对氡浓度的影响也十分明显,一般情况下,砂质土壤中氡的浓度远比粘土中为低。

一般情况下, ^{40}K 在土壤各类矿物成分中呈均匀分布, ^{238}U 及 ^{232}Th 则常富集于粘土类细粒组分中。多数情况下,由于土壤中的物理化学作用,铀衰变系各放射性核素之间的衰变平衡往往已被破坏。

(2) 土壤放射性污染的来源 除 ^{40}K 、 ^{238}U 、 ^{232}Th 等天然放射性核素外,土壤中还存在核试验产生的人工放射性核素(^{137}Cs 、 ^{134}Cs 、 ^{90}Sr 、 ^{106}Ru 、 ^{240}Pu 等),核设施放射性流出物的释放也是导致区域性土壤污染的重要来源。其中, ^{90}Sr 和 ^{137}Cs 对土壤长期污染的贡献份额最大,主要经由湿沉积过程进入土壤表层,而后或被土壤中矿物质颗粒吸着固定,或向下迁移到土壤深层,或被农作物吸收摄取,在一定的条件下,表层土壤的放射性污染水平将达到平衡。

一般情况下,土壤的总 β 放射性活度主要来自天然放射性核素 ^{40}K ,因此,应根据去钾总 β 活度判断土壤中人工放射性核素的污染水平。

放射性废物近地表处置库是土壤的潜在污染源。为防止废物体中核素被地下水浸出而导致土壤及地下水的污染,处置库底与最高地下水位之间应保持一定的距离。

6.1.3 地下水

6.1.3.1 地下水的埋藏条件与分类

埋藏于地面以下岩土裂隙中的天然水流称为地下水。地下水面以下岩土孔隙完全被水充满的地带称为饱水带,地下水面以上的地带称为包气带(图 6.1)。地下水亦可相应地分为包气带水和饱水带水两类。

(1) 包气带水 包气带土壤的孔隙并未被水完全饱和,同时存在着空气,这部分地下水称为包气带水或土壤水,按其在孔隙中的存在状态,可分为固态水、气态水、吸附水、薄膜水和毛细水等几类。

包气带顶部是植物根系发育和有微生物活动的土壤层,其中含有土壤水。土壤富含有机质,具有团粒结构,能以毛细水形态保持大量的水分。包气带底部由地下水面支持的毛细水构成毛细水带,其高度与岩层的性质有关。毛细水带的下部也是饱水的,但毛细负压使其水压强低于大气压。包气带厚度较大时,土壤水带与毛细水带之间还存在中间层。

包气带水源于大气降水的入渗,地面水体的渗漏,饱水带水通过地下水面以上的毛细孔

隙向上输送的水和地下水蒸发形成的气态水。包气带水的赋存和运移受毛细力与重力的双重影响:重力使水分下移;毛细力则将水分输运到孔隙细小而含水量较小的部位,在蒸发影响下,毛细力常使水分由包气带下部输运至上部。在雨季,包气带水以下渗为主;雨后,浅表包气带水以蒸发和植物蒸腾的形式向大气转移,一定深度以下的包气带水则继续下渗补给饱水带。

气象因素对包气带的含水量及其水盐运动有明显的影响,地面植被情况、人的生活与生产活动对包气带水质也有很大的影响。

包气带又是饱水带与大气、地面水体之间必不可少的过渡带,饱水带经由包气带获得大气降水和地表水的补给,又通过包气带蒸发与蒸腾而转入大气。因此,研究包气带中水盐的形成及其运动规律对阐明饱水带水的形成具有重要意义。放射性核素等污染物质往往首先通过包气带,而后造成饱水带的污染。

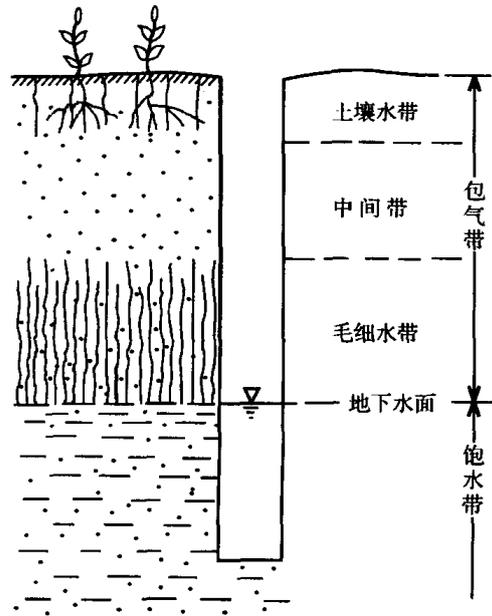


图 6.1 包气带和饱水带

(2) 饱水带水 包气带以下的饱水带岩土的空隙中全部为水饱和,这部分地下水不受岩土的束缚而处于自由状态,能在重力作用下自由流动,并可传递静水压力,故又称为重力水,其流动导致污染物在地下水中的迁移。

重力地下水按其埋藏条件,又可分为上层滞水、潜水及承压水三类。

1) 上层滞水 广义说来,所有包气带水都为上层滞水,这里指的是由降水或其它方式补给的、滞留在包气带中局部不透水(或弱透水)层表面上可自由流动的重力水。上层滞水完全靠降水或地面水体的直接渗入补给,其水量受季节的影响特别明显,因埋藏深度较浅,极易受到污染。

2) 潜水 埋藏于饱水带中第一稳定隔水层之上,具有自由表面的重力地下水称为潜水。其上部没有连续完整的隔水顶板,通过上部的包气带可与地表相通,其自由表面称为地下水或潜水面,潜水面至地表面之间的距离称为潜水位埋藏深度。潜水面至下部隔水底板之间的距离为潜水层厚度(H),潜水面上任一点距基准面的绝对标高称为潜水位或潜水位标高(h)。

潜水是具有自由表面的无压水,可在重力作用下由潜水位较高处向较低处流动,其流速与含水层的渗透性和水力坡度有关;潜水通过包气带与地表相通,降水和地面水可直接渗入而补给潜水,因此,潜水分布区与其补给区一般十分接近;潜水的位、流量和化学成分因地区和时间不同而有明显变化。

3) 承压水 处于两层稳定隔水地层之间含水层中的重力地下水称为承压水。承压水无自由水面,水体受静水压力作用,当其静水头高于地表时又称为自流水。上下隔水层之间的垂直距离称为含水层厚度(M)。

承压水因有稳定的隔水顶板和底板,大部分情况下与地表隔绝,需靠相邻潜水层的侧向

补给和上部潜水层的越流补给,故其埋藏区与补给区可能相距甚远。承压水埋藏深,其水位、水量、水温及水质受气象因素、人为因素及季节变化的影响较小,受污染的可能性也小。承压水的静水头常接近甚至高于地面,是宝贵的地下水资源。

6.1.3.2 地下水的污染方式和途径

地下水污染的方式有直接污染和间接污染两种。直接污染的特点是地下水中污染物组分直接来自污染源,在迁移过程中其化学性质保持不变。由于地下水与污染源污染组分的一致性,一般较易查明污染来源及污染途径,这是地下水污染的主要方式。在地表或地下以任何方式排放污染物,都会发生此种形式的污染。间接污染的特点是地下水中污染物组分与污染源组分不一致,是污染源组分在地下迁移过程中,经复杂的物理、化学或生物反应后的产物(如地下水硬度的升高)。

地下水的污染途径是指污染物从污染源进入到地下水中所经过的路径,根据水动力学特点,地下水污染途径可分为四类。

(1) 间歇入渗型 堆放于地面的废矿石、尾矿等固体废物中的放射性核素及某些非放射性污染物,通过降水的淋滤作用从地面经包气带土层渗入含水层;用污染的地面水灌溉农田时,灌溉水、表层土壤或包气带地层中原有的污染物质也会因淋滤作用而污染含水层。这种渗入一般呈非饱和状态的淋雨状渗流,或呈短时间的饱水状态的连续渗流,其污染范围与程度有明显的季节性变化,主要造成浅层地下水(潜水)的污染。

(2) 连续入渗型 废水池、废水渗坑、快速渗滤场及废水管道的渗漏,使放射性核素及其它污染物随渗漏水连续不断地经包气带渗入含水层(图 6.2)。连续入渗可能导致包气带完全饱水,或上部呈完全饱水的连续渗流,下部呈非饱和水的淋雨状渗流,主要污染对象也是

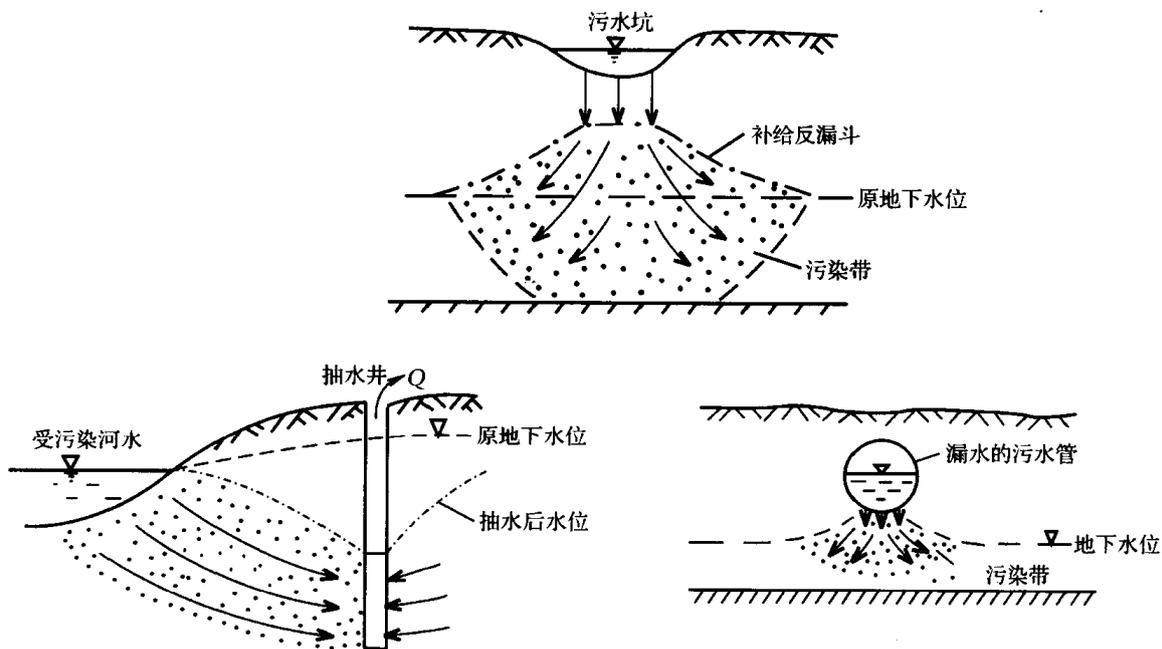


图 6.2 连续入渗造成地下水污染的途径

潜水。

间歇入渗与连续入渗的污染物都自上而下经包气带进入含水层,对地下水的污染程度取决于包气带的地质结构、物质成分、厚度及渗透性能。

(3) 越流型 当隔水层中存在裂隙、孔隙等水文地质窗时,承压水将通过隔水层越流转入潜水中。这种情况下,如人工开采下部承压地下水,则会引起水动力条件的变化而改变越流方向,使上部已受污染的潜水层中的污染物越流转入下部承压水中(图 6.3)。显然,建造于隔水层中的高放射性固体废物处置库工程屏障失效时,废物体中的放射性核素也可能越

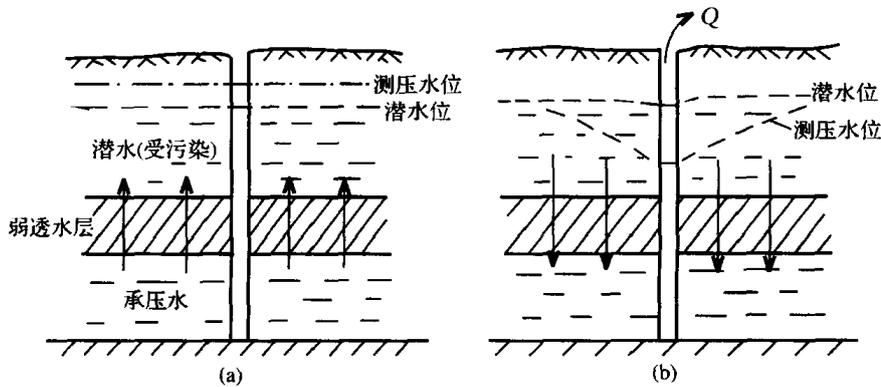


图 6.3 越流造成地下水污染的途径

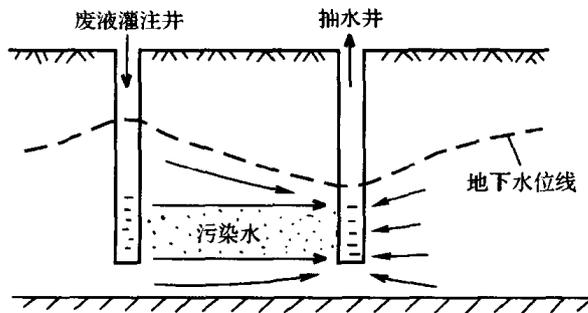


图 6.4 径流造成地下水污染的途径

流进入含水层而造成污染。

(4) 径流型 区域含水层在某个部位受到污染时,污染物将随地下径流向含水层的其它部位迁移(图 6.4)。低放射性固体废物近地表处置库的环境屏障及工程屏障失效时,地下水有可能渗入,使废物体中的放射性核素浸出并随地下水径流而造成污染。沿海地区过量开采地下水会导致海水入侵而造成地下水的咸化。

6.1.3.3 地下水运动的基本规律

地下水在地层介质孔隙中的流动称为渗流。介质孔隙的几何形状极其复杂,粗细不同,并在各个方向上相通,因此,地下水在孔隙中的实际流速因孔径及相应土水势的不同而在不同方向上有所差异。根据流量、孔隙度、孔径的不同,地下水可能呈现层流或紊流(湍流)两

种流动状态。

地下水流动过程中,水位、流速、流向等要素不随时间改变时,称为稳定流;反之,则称为非稳定流。但是,为便于分析和计算,有时也可近似地将某些运动要素随时间变化很小的渗流作为稳定流处理。

包气带中水的运移规律十分复杂,对重力地下水,可按达西定律描述其宏观运动。

(1) 达西定律 一维系统中,地下水流动的通量为:

$$q = -K \frac{dH}{dx} \quad (6 \cdot 1)$$

式中,

q ——单位时间内流过单位横截面积的地下水体积, $m \cdot s^{-1}$;

K ——导水率(渗透系数), $m \cdot s^{-1}$;

x ——地下水流程, m ;

$\frac{dH}{dx}$ ——水压梯度,无量纲

式中右端的负号表示地下水由高水压处向低水压处流动;渗透系数 K 与介质的孔隙度有关,也与地下水的粘滞度及密度有关。在潜水及承压水等饱水流动条件下, K 值为常数;在包气带中非饱水流动条件下, K 值因土壤水吸力的不同而有所变化。

饱水流动条件下,当地下水全部流程中水压梯度保持不变时,式(6·1)可改写为:

$$F = KWI \quad (6 \cdot 2)$$

式中,

F ——单位时间内地下水的流量, $m^3 \cdot s^{-1}$;

W ——地下水横截面积, m^2 ;

I ——水力梯度,单位距离上的水压降,即式(6·1)中的 $\frac{dH}{dx}$ 。

令地下水的流速 $U = F/W$,则有

$$U = KI \quad (6 \cdot 3)$$

(2) 地下水的渗流速度 式(6·2)中地下水流横截面积 W 系指含水地层的过水面积,其中包括地层介质与孔隙所占面积之和,地下水流的实际过水面积 W' 仅是其中孔隙所占的面积:

$$W' = W \times \eta_e \quad (6 \cdot 4)$$

式中, η_e 为介质的有效孔隙度。

据此,可求得地下水在孔隙中的实际流速为:

$$u = F/W' = U/\eta_e = KI/\eta_e \quad (6 \cdot 5)$$

(3) 水力梯度 水力梯度 I 为地下水渗流过程中单位渗流途径长度(流程)上的水头损失。水在孔隙中流动时,必须克服水与孔壁介质之间的摩擦阻力和水中速度不同的质点之间的摩擦阻力(这两种摩擦阻力都随地下水流速加快而增大),由此消耗机械能而造成水头损失。因此,水力梯度可理解为单位流程长度上地下水流为克服摩擦阻力而消耗的机械能。从另一角度,也可将水力梯度理解为地下水流动的推动力,在相同的过水介质条件下,水力梯度决定了地下水渗流速度的大小。

(4) 渗透系数 由式(6·1)可见,水力梯度 I 是无量纲的,因此,渗透系数 K 的量纲与渗流速度 u 相同($m \cdot s^{-1}$,但因其数值较小,文献中常采用 $m \cdot d^{-1}$ 或 $cm \cdot s^{-1}$)。如取 $I=1$,则有 $u=K$,这意味着渗透系数为水力梯度等于1时的渗流速度。水力梯度为定值时,渗透系数愈大,渗流速度就愈大;反之,渗透系数为定值时,水力梯度愈大,渗流速度亦愈大。由此可见,渗透系数定量反映了过水地层介质的渗透性能,渗透系数愈大,介质的透水能力愈强。表 6.3 所示为常见松散地层介质的渗透系数值。

表 6.3 松散地层介质的渗透系数($m \cdot d^{-1}$)

地层介质类型	渗透系数 K
亚粘土	0.001~0.01
亚砂土	0.10~0.50
粉砂	0.50~1.0
细砂	1.0~5.0
中砂	5~20
粗砂	20~50
砾石	50~150
卵石	100~500

在达西定律中,渗透速度 u 与水力梯度 I 的一次方成正比,故又称为线性渗透定律,一般只适用于流速较小(雷诺数 $Re < 1 \sim 10$)的层流运动状态。但自然条件下地下水的流动速度很小,一般都符合线性渗透定律。

6·2 放射性物质在岩石、土壤和地下水中的物理、化学与生物学行为

6·2·1 放射性物质在岩石中的行为

6·2·1·1 放射性物质在岩石中的存在形态

原生的天然铀、天然钍元素可形成独立或共生矿物存在于岩石中,其含量较稳定,在矿物中占据晶格的主要位置。也可以类质同像存在于其它矿物(如钛铀钨酸盐及磷酸盐矿物)的晶格中。有的可被其它矿物微晶的表面吸附, $(UO_2)^{2+}$ 络阳离子易进入矿物晶体网格中,有的以溶解状态存在于矿物包裹体或粒间及晶体裂隙的水分中。

钾是地壳中的主要造壳元素之一,大部分赋存于碱性长石中,多与氧、硅或卤族元素结合。形成钾长石($KAlSi_3O_8$)、石榴石($KAlSi_2O_4$)、云母、高岭石及钾盐等含钾矿物。

随地下水进入岩石裂隙中的人工放射性核素常以离子状态被岩石表面吸着,也可能以氧化物或氢氧化物形式沉积在岩石表面上。

6·2·1·2 放射性物质在岩石中的行为

(1) 原生放射性物质在岩石中的迁移 从 37 亿年前地壳开始形成至今,其厚度由 10km 增加至 40km,花岗岩的侵入作用显著增大,地壳中花岗岩的成分日益增加,岩石中元素的含量也有明显变化。由于电价的补偿作用,正两价元素 Fe、Mg、Ca、Co、Ni 的含量逐渐

减少,正一价元素 Li、Na、K、Rb、Cs 及高价元素 Be、U、Th、Zr、Hf、Hb 的含量逐渐增高。由此可见,在地球演化过程中,原生放射性核素 U、Th、⁴⁰K 在岩石中不断得以富集。

地壳浅部的表生带内因太阳能的作用,存在着剧烈的元素迁移、分散和富集作用,以至形成具有工业开采价值的矿床,并使铀元素得以强烈迁移。

铀在自然界中主要以四价和六价两种价态存在,在富含游离氧的表生带中,四价铀极易氧化成六价铀,进而与氧结合形成非常稳定的铀酰络阳离子 UO_2^{2+} 。

铀的表生迁移是岩石与周围环境相互作用的结果。岩石风化过程中,铀从岩石和矿物中分离、释放出来,部分被岩石中的水溶液携带而迁移,部分则残留于原地风化层中。

岩石风化过程中铀从岩石矿物中释放程度取决于矿物的溶解度及氧化还原环境。矿物在风化过程中的稳定性大小顺序一般为氧化物 > 硅酸盐 > 硫化物和碳酸盐。铀从矿物中的释放及迁移还与岩层中水溶液的 pH、E 及水化学成分有关。

铀在表生带氧化环境中以六价铀形式溶解于水中,具有较强的迁移能力;在表生带还原环境中则呈四价,迁移能力很弱;在氧化-还原过渡带则易被富集。

镭一般不进入矿物晶格内,不形成独立矿物。易进入晶体的毛细裂隙和微错位中,而后转入水中,具有很强的迁移能力。

钾极易从矿物中释放而转入水中,具有很强的迁移能力。水中的钾极易被生物吸收,并参与次生矿物(如水云母等)的形成,因此,地下水中钾的含量一般较低。

钍在表生带中以机械风化迁移为主,并富集于残积物、冲积物和滨海沉积物中,有时也以络合物或胶体形式迁移。

(2) 放射性物质在岩石裂隙中的吸着和迁移 固体放射性废物处置主要倾向于采用近地表埋藏和地质处置,因此,放射性物质在地质层中的迁移行为已成为放射性废物安全处置中一项重要的研究课题。

放射性核素在地质层中的迁移涉及化学、放射化学、地球物理、地球化学、水文学及地质学等多门学科领域。影响核素在地层介质中迁移行为的主要因素有水力输送作用和岩、土介质对核素的吸着作用。

水力输送作用涉及地下水的水流方向、水流速度和水力弥散作用。吸着作用是在各种条件下,核素与岩土介质间离子交换、胶体吸附、过滤、化学反应及沉淀等多种作用的总和。

在以深层岩体作为废物处置库主岩时,从处置库中泄漏的核素在岩石裂隙中的吸着和迁移,是决定其返回生物圈的可能性及返回速率大小的重要因素。

当核素在岩土介质中随水沿孔隙表面流动时,其吸着行为以表面吸附为主。此时,核素在岩土表面与水流之间的分配特性可用固液相分配系数 K_d 表示:

$$K_d = \frac{S}{C} \quad (6.6)$$

式中,

K_d ——分配系数, $L \cdot kg^{-1}$, 测量值常用单位为 $mL \cdot g^{-1}$;

S ——吸附平衡时污染物在固相中的浓度,即吸附量, $Bq \cdot kg^{-1}$ 或 $mg \cdot kg^{-1}$;

C ——吸附平衡时污染物在液相中的浓度, $Bq \cdot L^{-1}$ 或 $mg \cdot L^{-1}$ 。

分配系数 K_d 可通过化学质量作用平衡方程计算求得,但一般经实验确定。对 K_d 的影响因素有污染物的化学形态和浓度、水温及 pH 值和地下水的组成。

表 6.4 所示为静态实验测得的 Sr 及 Cs 在花岗岩和玄武岩表面吸附的分配系数值。

表 6.4 静态实验测得的 K_d 值 ($\text{mL}\cdot\text{g}^{-1}$)

核 素	液相浓度 ($\text{mol}\cdot\text{mL}^{-1}$)	花岗岩	玄武岩
Sr^{2+}	6.5×10^{-6}	4.4	17.1
	1.6×10^{-8}	9.1	31.5
	6.5×10^{-10}	14.5	35.1
	3.8×10^{-7}	15.0	87.1
	1.3×10^{-7}	10.4	89.4
Cs^+	4.6×10^{-8}	6.6	168.0

显然,核素在岩石孔隙表面上的吸着对核素在其中的迁移具有程度不同的阻滞作用。

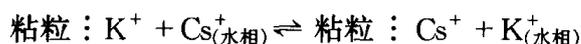
6.2.2 放射性物质在土壤中的物理化学行为及其影响因素

6.2.2.1 放射性物质在土壤中的物理化学行为

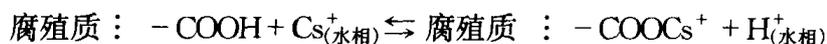
(1) 粘粒矿物的阳离子交换作用 土壤中的次生矿物和腐殖质多以胶体颗粒的形态存在,具有较大的表面能和吸附性能。因此,交换吸附是影响放射性物质在土壤中迁移的最主要的物理化学过程。

为植物提供营养物质的主要物理化学过程,多发生于其粘粒矿物组分中。粘粒的主要成分次生硅铝酸盐是一种片状结构的颗粒,其表面带有丰富的负电荷,因此,具有可观的阳离子交换容量。

土壤中大部分营养元素离子,并不存在于土壤水分中,而是吸附在这类粘粒表面上,水溶液中的放射性阳离子与土壤颗粒表面上的阳离子之间会发生可逆的离子交换反应。例如,铯离子与土壤中钾的离子交换反应可用下式表示:



此外,腐殖质中的羧酸根含有可交换的 H^+ ,也可发生下述交换反应:



(2) 放射性物质在土壤中的迁移 以溶液形式进入土壤中的放射性核素,可因阳离子交换作用而吸着在土壤颗粒表面,以氧化物或氢氧化物的形式沉淀,或与土壤中的有机物螯合。放射性核素在土壤中这三种可能的状态,决定了其在土壤中迁移能力的大小及其被农作物吸收摄取的程度。一般地说,阳离子在土壤中迁移能力的大小与其价态有关,多价离子与粘粒矿物的结合比较牢固,其穿透及迁移能力较小。

(3) 农作物的吸收 一般情况下,土壤中的放射性核素将以与稳定同位素相同的阳离子形式被农作物根系所吸收。研究表明,凡是在土壤中以阳离子形式存在的金属元素都能在植物中出现。

6.2.2.2 影响放射性核素在土壤中物理化学行为的因素

(1) 气候与地形地貌 如前所述,核试验沉降物和核设施气载流出物中的放射性核素大多经由降雨导致的湿沉积进入土壤中,因此,年降雨量大小是影响土壤放射性污染的重要

因素。当然,大量的降雨也会加速表层土壤中放射性核素向深层的渗透和迁移。

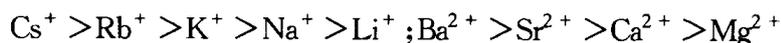
核试验沉降物造成的全球范围放射性污染程度与纬度有很大的关系,其地面沉积量最大的区域位于南北纬 $40^{\circ} \sim 50^{\circ}$ 范围内,并以春天与初夏(北半球为第二季度,南半球为第四季度)时为最大。

地形地貌对土壤的放射性污染水平也有很大的影响,在山坡地区,污染程度较高的表层土壤流失严重,土壤中核素的污染水平远比平原地区为低。

(2) 放射性核素的形态和性质 一般情况下,高价阳离子,水合离子半径或等效体积较小的离子,极性离子,与土壤颗粒中离子基团反应强烈的离子,与溶液中电荷相反的离子生成络合物可能性较小的离子,在粘粒表面上的交换吸着容量较大。

按离子的化合价来说,粘粒矿物的选择性吸附顺序为:四价离子 > 三价离子 > 二价离子 > 一价离子。

碱与碱土金属的水合离子半径随原子序数增大而减小,因此,其选择性吸附顺序为:



核素在土壤中的存在形态对交换吸着也有很大的影响,通常,溶解状态的阳离子易被吸着,其在土壤中的迁移能力较小;难溶状态的氧化物或沉淀物则不易被粘粒矿物吸着,可随水流在土壤缝隙中迁移。例如,土壤中 PuO_2 的迁移速度比 Pu^{4+} 离子快约 100 倍。

以固体微粒形态存在的放射性物质,其粒径及比活度对溶解度及被农作物吸收摄取的程度有明显的影 响。一般情况下,粒径愈小,愈易溶解和被作物吸收;比活度愈高,也愈易于溶解。例如, $^{238}\text{PuO}_2$ 微粒的溶解度比 $^{239}\text{PuO}_2$ 微粒的大约为两个数量级。

(3) 土壤的性质

1) 土壤的种类和颗粒大小 不同种类的土壤,其成分组成也不同,对放射性物质的吸附能力有明显的差异。一般情况下,粘土的吸附能力比砂土大;粘土中有机质含量愈大,其吸附能力愈大。

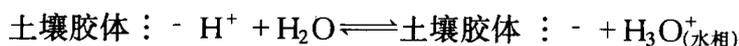
土壤颗粒粒径愈小,其有效比表面积愈大,吸附能力也愈强。当颗粒粒径远小于土壤孔隙的直径时,其本身即极易随水的流动而迁移。由于其对放射性物质有极大的吸着能力,这类细小颗粒成为核素迁移的载带物,在孔隙较大的砂质土壤中,核素的这一迁移作用尤为明显。

2) 土壤的 pH 值 pH 值对土壤胶体的生成、放射性核素的水解和离子交换反应都有明显的影响,从而影响土壤对核素的吸附。粘粒表面的正离子种类对 pH 值影响很大,当其表面带有碱或碱土金属离子时,可因如下反应而使 pH 值增大:



这一反应也增加了胶体颗粒的阳离子交换能力。

当土壤胶体表面的 H^+ 释入水相中时,土壤的 pH 值即得以下降:



这使胶体表面带有负电荷,具有静电吸附水中阳离子核素的能力。

土壤的 pH 值还与其中 CO_2 的含量有关, CO_2 含量愈高,pH 值愈低。土壤的 pH 值一般为 4~10,除放射性 Cs、Sr 和 Ra 外,铜系元素、稀土元素和大多数感生放射性核素(如 ^{54}Mn 、 ^{65}Zn 、 ^{60}Co 、 ^{55}Fe 、 ^{59}Fe 等)均易水解,从而影响其被土壤吸着的能力。例如, ^{60}Co 在酸

性条件下以 Co^{2+} 离子状态存在于土壤中,极易被吸附,但中性条件下即发生水解反应,生成 Co OH^+ 和 Co(OH)_2 ,吸附能力明显下降。

酸性土壤中,水铝英石等粘粒矿物及铁、铝的氧化物形成的胶体表面带有正电荷,可吸附 I^- 离子;中性土壤中, I^- 离子吸附量即明显下降;碱性土壤中,有机质对阴离子的吸附作用增大,又使 I^- 离子的吸附量有所增大。

土壤的 pH 值还会影响微生物与细菌的活动和腐殖质的化学行为,从而间接影响土壤对放射性核素的吸附能力。

3) 土壤中的配位体 土壤是一个络合-螯合物体系,其中含有多种天然的无机和有机配位体,可与放射性核素发生络合或螯合反应,从而影响土壤对核素的吸附能力。

土壤中的无机配位体有 HCO_3^- 、 CO_3^{2-} 、 SO_4^{2-} 、 H_2PO_4^- 、 HPO_4^{2-} 等,有机配位体主要是腐殖质中含有的腐殖酸、胡敏酸、富里酸和其它与微生物分解、合成有关的有机产物和分泌物(如各种碳水化合物、酶、脂肪酸、氨基酸等),所有这些配位体均可与金属离子形成多种络合物或螯合物。

镭在土壤中一般以 Ra^{2+} 离子形态存在,可因离子交换或静电吸附而被土壤颗粒吸着。当土壤中存在 SO_4^{2-} 、 CO_3^{2-} 等无机配位体时,则会形成难溶的镭盐,从而降低其被土壤吸着固定的能力。铀可与 SO_4^{2-} 及 CO_3^{2-} 形成络阴离子,不易被土壤吸附,增加了其在土壤中的迁移能力。土壤中含有的某些脂肪酸、酒石酸、柠檬酸、葡萄糖酸等可与锕系元素和稀土元素离子形成稳定的螯合物,降低土壤对这些离子的吸附能力,增加其迁移速度,水浸土壤和枯枝败叶对微生物作用下生成这类有机酸特别有利。

4) 土壤中的天然载体 土壤中含有的多种常量及微量元素,可成为放射性核素的天然载体,对其在土壤颗粒表面上的吸附具有某种竞争及稀释作用,从而减小其吸附量。天然载体可以是同位素载体(如稳定 Sr 对⁹⁰Sr、稳定 Fe 对⁵⁵Fe、稳定 Zn 对⁶⁵Zn,稳定 I 对¹²⁹I),也可以是非同位素载体(如稳定 K 对¹³⁷Cs、稳定 Ca 对⁹⁰Sr 和²²⁶Ra 等)。土壤中 Ca^{2+} 含量增高,可明显降低其对⁹⁰Sr 的吸附,在有机质含量高的土壤中,这一作用尤为明显,其原因是有机质能优先吸附 Ca^{2+} 。

如图 6.5 所示,稳定碘对土壤吸附放射性碘的能力也有明显的影响。

5) 土壤的含水量 水分会影响土壤的 pH 值,气候潮湿地带土壤的 pH 值往往较低;其次,水对许多放射性离子有一定的溶解作用,使之随水的渗流而向土壤深层迁移;含水量对土壤中微生物、细菌的活动和有机物的分解、合成也有明显的影响,从而间接影响核素的吸附行为。

6) 土壤中的氧化、还原物质 土壤中的氧化剂为氧气、微量高价金属离子和硝酸根等,还原剂主要是有机质。当土壤中富含游离态氧时,即具有较大的氧化性;含氧量低而有有机质含量高的土壤则具有还原性。土壤的氧化还原状态会改变放射性核素的价态,从而改变其吸附行为。此外,微生物对土壤中的还原反应也具有催化作用。

6.2.3 放射性物质在地下水中的物理、化学及生物学行为

6.2.3.1 放射性物质在地下水中的存在形态

放射性核素在地下水中的基本存在形态有溶解状态的无机离子、溶存状态的有机化合物及胶体。表 6.5 所示为铀在地下水中的存在形态。

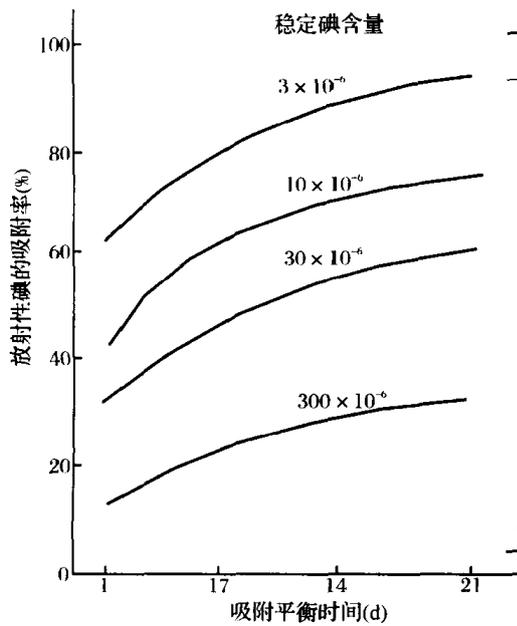


图 6.5 稳定碘含量对土壤吸附放射性碘能力的影响

表 6.5 地下水中铀的存在形态

类别	形态
无机离子	
四价	U^{4+} , $U(OH)_n^{4-n}$, UF_n^{4-n} , $U(SO_4)_n^{4-2n}$, UCl_3^+ , $U(HPO_4)_n^{4-2n}$
六价	UO_2^{2+} , $UO_2(OH)_n^{2-n}$, $UO_2F_n^{2-n}$, UO_2Cl^+ , $UO_2(SO_4)_n^{2-2n}$, $UO_2(CO_3)_n^{2-2n}$, $UO_2H_3SiO_4^+$, $UO_2(HPO_4)_n^{2-2n}$, $UO_2(H_2PO_4)_n^{2-n}$
有机化合物胶体	曲酸合铀酰, 乙酸丙酮合铀酰, 胡敏酸合铀酰, 富啡酸合铀酰
吸附铀的胶体	腐殖酸, 硅胶, 粘土, $(Fe(OH)_3)_n$, $[Al(OH)_3]_n^+$
铀胶体	$[UO_2(OH)_2]_n^-$, $[UO_2(OH)^+]_n^+$

放射性核素在地下水中的存在形态与其来源有关。例如,核爆炸释出的钚同位素多以难溶的氧化物胶体形态存在于地下水中,核设施排放废水中则多为离子态。

放射性核素在地下水中的存在形态还与地下水的氧化还原电位(E)、酸碱度(pH)及水化学成分等物理化学性质有关。

6.2.3.2 放射性物质的水迁移

放射性物质的水迁移一般可分为两个阶段,在第一阶段,岩石矿物或固体废物中的放射性核素在溶解、淋滤、扩散、射气、反冲的作用下进入地下水中,这是其在水中富集的过程;在第二阶段,被重力水携带的放射性核素在地壳中随地下水的运移而迁移,其迁移强度与核素在地下水中的存在形式(稳定性)及水的运移方向和速度有关。

水的溶解作用对岩石矿物或固体废物中放射性核素向地下水的转移起着决定性的作用。一般情况下,只有在矿物结晶构架受到破坏时,核素才能被水溶解而进入水迁移过程(如岩石中长寿天然放射性元素铀、钍、钷的水迁移),地下水的化学成分、气体成分、酸碱度、氧化还原性能、温度对溶解度有很明显的影响。

以吸附状态存在于岩石矿物表面的放射性核素,因矿物中所含核素衰变而产生的子体核素并不存在于矿物结晶构架中,而是积累在已受破坏的构架的空穴和各类大小不同的孔隙或毛细孔隙内。这些核素因其在水相中的扩散、射气和水的溶滤作用转入地下水中而进入水迁移过程(如 ^{234}U 、 ^{226}Ra 、 ^{222}Rn 等核素的水迁移)。

6.2.3.3 放射性物质在地下水中的物理化学行为

(1) 氧化还原反应 地下水含有多种氧化性或还原性物质,因此,放射性核素进入地下水后,常会发生氧化还原反应,使其离子价态改变,这对其在地下水中的存在形式及水迁移均有重要的影响。

放射性核素在地下水中的氧化还原反应主要取决于水的氧化还原电位 E 和 pH 值,而 E 值的大小又与水的含氧量有关。一般情况下,浅层地下水含氧较丰富,其 E 值可达 0.2V

以上,具较强的氧化能力,可使多价元素的离子由低价氧化成高价(如 Pu^{4+} 氧化成 Pu^{6+}),其水迁移性能得以增强。

不同元素的离子由低价氧化成高价所需的 E 值是不同的,如锕系核素 $\text{U}^{6+}/\text{U}^{4+}$ 、 $\text{Np}^{6+}/\text{Np}^{4+}$ 、 $\text{Pu}^{6+}/\text{Pu}^{4+}$ 和 $\text{Am}^{6+}/\text{Am}^{4+}$ 的 E 值(在 $1\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 的 HClO_4 溶液中)分别为 0.32V、0.94V、1.04V 和 1.38V,可见,铀在地下水中较易氧化,镅则不易氧化。

地下水中溶解氧含量随其埋深增大而减少,潜水因可与大气发生交换,含氧量较高;承压水因封闭性良好,含氧量较低。一般情况下,地下水的 E 值对单价态核素(如 Th)在其中的迁移影响较小,对多价态核素(如 U)影响较大。

(2) 酸碱反应 一般情况下,地下水的 pH 值为 5~8.5,但在某些特殊条件下,如硫化矿床氧化带和火山活动区可达 1~4,在干旱地区的潜水中,pH 值可能大于 11。

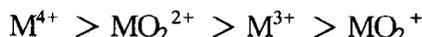
除碱金属和碱土金属外,放射性元素在近中性条件的地下水中均易水解,其水解产物有单核的,也有复合型的。根据离子势,+3 价阳离子的水解能力顺序为:



+4 价阳离子的水解能力顺序为:



对不同价态的同一种元素离子为:



由于水解反应会生成 H^+ 离子,因此,水解平衡受地下水 pH 的影响十分明显,高价态阳离子在高 pH 值的地下水中,可因水解而形成碱式盐或氢氧化物沉淀:



(3) 离子交换和吸附 含水地层介质对地下水中放射性物质的离子交换和吸附(统称为吸着),对放射性核素的水迁移能力有很大的影响,其吸着程度与地下水的 pH 值及化学组成、介质的性质及成分有很大的关系。

介质对放射性核素离子的吸着量与核素在地下水中的浓度有关,水中核素浓度愈大,吸着量愈大,但两相间的分配系数大致保持恒定。

介质对放射性核素的吸着量随地下水中盐类成分增加而降低,水中 K^+ 、 Na^+ 离子浓度增加导致 Cs^+ 的吸着量明显下降,但 Sr^{2+} 的吸着量下降不明显;水中 Ca^{2+} 离子浓度增加使 Sr^{2+} 、 Cs^+ 吸着量下降,并使 Sr^{2+} 在固液两相间的分配系数明显下降。

吸着在介质表面上的放射性物质有可能被解吸,解吸程度和核素与介质表面之间的结合能及地下水的化学成分有关。碳酸氢钙型地下水能从细砂中解吸约 60% 的铯,13.5% 的铯,12% 的铈和 2% 的钷;水中钙离子浓度增高时,能使吸着在介质表面的铯解吸,而钠可使铯解吸;酸性水可使多种核素解吸。

地下水中所含悬浮物颗粒大多为粘粒矿物,对水中阳离子形式存在的放射性核素有相当大的吸着容量,在地下水运移过程中,这些悬浮颗粒载带着相当多的放射性物质。当这些颗粒较大时,地层介质可将其从地下水中截留下来,使水的放射性水平明显降低;反之,当这些颗粒很小时,介质不能将其截留,将随水的运移迁移相当远的距离。

(4) 配位作用 地下水含有多种无机和有机配位体,可与水中的放射性核素形成络合物,常见的配位离子有 CO_3^{2-} 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 、 F^- 、 OH^- 、 PO_4^{3-} 、 SiO_4^{4-} 和腐殖质,其中

CO_3^{2-} 与水中 UO_2^{2+} 离子生成的络合物形式有 UO_2CO_3 、 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ 和 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ 。水温为 25°C 、 $\text{pH}=4.5\sim 6.5$ 的条件下,络合离子 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ 是稳定的;当 $\text{pH}>6.5$ 时,随着水中 CO_3^{2-} 浓度的增加, $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ 逐渐转变为 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$; $\text{pH}>11.5$ 时,络合离子被破坏,生成氢氧化物沉淀。

各种核素与无机或有机配位体的络合程度各不相同,如铜系元素络合物的稳定性顺序为: $\text{M}(\text{IV})>\text{M}(\text{III})>\text{M}(\text{VI})>\text{M}(\text{V})$,即 M^{4+} 络合能力最强, MO_2^+ 最弱。

(5) 核素的衰变 自然条件下地下水的实际流速是相当小的,进入地下水中的短寿命核素,随水流迁移很短距离即已衰变,其可能造成的污染范围极小,许多情况下没有任何实际意义。

但是,当含水地层存在裂隙,特别是在喀斯特岩层中,可能存在很大的溶洞,或当大量地抽取地下水及有大型的废水渗井存在时,地下水的实际流速可达每天几十米,短寿命核素也可能造成相当大范围的污染。

6.2.3.4 放射性物质在地下水中的生物学行为

某些植物和树木的根系可深扎于土壤中,或沿岩石裂隙和节理伸入含地下水的裂缝中,可从水中富集和截留大量的放射性核素;某些动植物和微生物的代谢产物(如各种有机酸)可与地下水中多种核素形成络合物;某些微生物对地下水中氧化还原反应起着某种催化强化作用,如硫铁杆菌的繁殖促使水中 FeS_2 的氧化,形成酸性含铁水,使 U^{4+} 离子氧化为 UO_2^{2+} ,从而增强其水迁移能力。

6.3 放射性物质在包气带及饱水带地下水中的迁移

6.3.1 地下水中物质迁移的基本理论

控制污染物在包气带和饱水带多孔介质中迁移转化的因素和过程有:包气带和饱水带孔隙的结构大小和分布;边界条件和初始条件;污染物的类型;污染源的几何形状及污染物释放方式;地下水流动状态;水力弥散;地球化学及生物化学反应;放射性核素的衰变及有机污染物的生物降解。在许多情况下,这些因素和过程的综合作用决定了污染物在包气带和饱水带地下水中的迁移速度和浓度的时空分布。

6.3.1.1 多孔介质

包气带土层、潜水层和承压水层介质都是具有一定孔隙度的多孔介质。流体力学上对多孔介质的定义是:

①多孔介质是一种多相物质,在其所占据的空间中,除固体相外,至少有一相不是固体(为气体相或液体相)。其中固体相称为骨架,气体相和液体相(有时可能只存在其中的一相)所占据的空间称为孔隙。多孔介质的孔隙完全充满水时,称为饱和(即饱水)介质,孔隙中同时存在气体时,则称为非饱水介质。

②孔隙所占的空间在整个多孔介质内接近均匀分布,且比较狭窄,因此,固体骨架的比表面较大。

③孔隙空间应有相当部分相互连通,就水在多孔介质中的流动而言,相互连通的孔隙为

有效孔隙,不连通的孔隙空间(如位于死端处的盲孔隙)对水在多孔介质中的流动是无效的。

多孔介质骨架表面的几何形状是极不规则的。因此,一般情况下,对污染物在其中的迁移无法从分子水平上进行研究,只能采用连续介质法进行宏观研究。

6.3.1.2 溶质的平流输运

地下水在含水地层介质孔隙中流动时,携带着水中的污染物以相同的运移速度在孔隙中迁移,导致污染物的平流输运。这种情况下,污染物随水流运动的迁移通量称为污染物平流通量,它与地下水中污染物浓度成正比:

$$J_c = qC = u\theta C \quad (6.7)$$

式中,

J_c ——单位时间内单位介质横截面积上通过的污染物质量或活度, $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 或 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$;

C ——地下水中污染物的浓度, $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ 或 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;

θ ——对非饱水介质为体积含水率,对饱水介质为有效孔隙度 η_e ;

u ——地下水流动的孔隙平均速度或平均表观速度, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 。

6.3.1.3 弥散作用

除地下水流动产生的平流输运作用之外,弥散作用也是导致污染物在含水地层介质中迁移的重要机制。

在图 6.6(a)所示的实验中,一长度为 L 的砂柱先用纯水使之饱和,然后,从 $t=0$ 时刻开始,沿断面 A 连续均匀地注入浓度为 C_0 的守恒示踪剂溶液,实验过程示踪剂溶液的浓度 C_0 及流量 Q 均保持不变。在 $t=t'$ 时,测得沿砂柱长度 L 上示踪剂浓度的变化曲线(I)呈 S 型[图 6.6(b)],说明砂柱孔隙水中示踪剂浓度由 C_0 逐渐变化过渡至零。这种浓度的沿程递减现象表明,污染物随水流运动平流输运的同时,水流方向(纵向)上存在着明显的弥散现象。图 6.6(b)中曲线 II 是在不存在纵向弥散的假设前提下示踪剂浓度的突变面,其位置

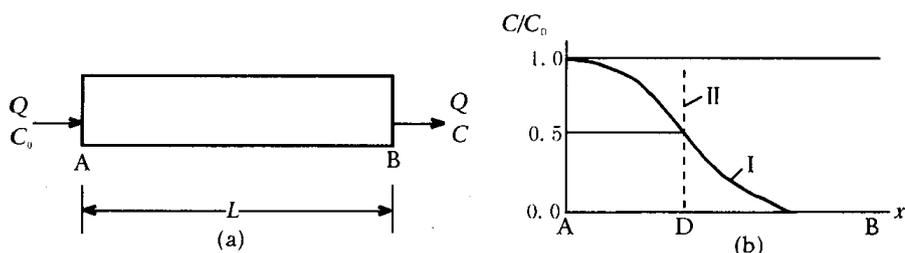


图 6.6 砂柱中的弥散现象

可通过水的孔隙平均流速求得。

图 6.7 所示为在一维均匀流场中某一点处连续注入一种守恒示踪剂溶液后,示踪剂在源点周围地下水中的弥散情况。从图中可见,纵向弥散使示踪剂在水流方向上分布的范围超过了按地下水平均流速所预计达到的区域,与此同时,还存在着横向弥散。当地下水流速很小时,横向弥散范围相对扩大,还可能出现逆向弥散。

地下水的弥散作用由分子扩散和机械弥散两种作用构成。

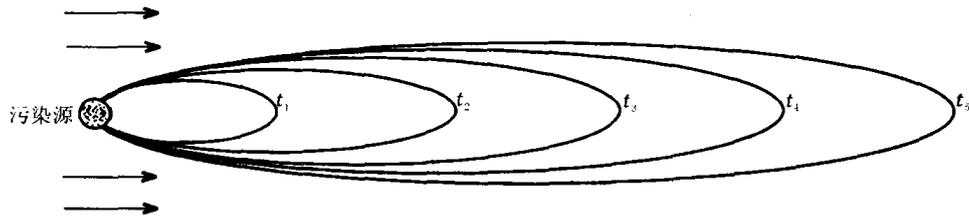


图 6.7 一维均匀流场中的弥散现象

(1) 分子扩散 分子扩散是物理化学作用的结果,是分子布朗运动的一种表现,又称为物理化学弥散。当液体中溶质浓度分布不均匀时,液体中形成化学势,溶质即在浓度梯度的作用下由高浓度处向低浓度处运动,使其浓度趋于均匀。多孔介质中污染物的分子扩散受孔隙不均匀性、孔隙的大小、结构及介质中扩散离子的电价等因素的影响,变化十分复杂,也存在着纵向扩散和横向扩散两种形式。

多孔介质中污染物的分子扩散也可用浓度梯度理论加以描述:

$$J_d = -K_M \frac{dC}{dX} \quad (6 \cdot 8)$$

式中,

J_d ——分子扩散通量,单位时间内单位介质横截面积上通过的污染物质量或活度;

K_M ——多孔介质中的分子扩散系数。

同样,式中负号表示污染物从高浓度处向低浓度处扩散。

显然,污染物质在多孔介质中的分子扩散系数 K_M 比重力水中分子扩散系数小得多,其原因是:

①多孔介质中液相只占介质体积的一部分,最多在饱水条件下等于介质的孔隙度,非饱水条件下,液相所占的体积将随含水率 θ 的下降进一步降低,因此,可认为分子扩散系数 K_M 是 θ 的函数。

②污染物的分子扩散发生于介质的孔隙中,其实际扩散途径比重力水中长得多,介质含水率 θ 降低后,其影响更为明显。

③在粘土介质中,当含水率 θ 降低时,粘土表面吸收的水相中离子的浓度增大,粘滞性加大,对分子扩散的阻力亦随之增大。

(2) 机械弥散 含各种污染物质的废水进入多孔介质含水层后,由于孔隙范围内废水和地下水流速分布不均匀,使两种液体因机械弥散作用而得以混合。导致孔隙中液体流速不均匀分布的原因有:

①液体的粘滞性导致孔隙内壁介质颗粒表面处的流速为零,距表面愈远,流速愈大,在孔隙中心轴线上流速最大,由此造成孔隙截面上的流速梯度[图 6.8(a)]。

若将介质孔隙假想为圆管,地下水在其中呈层流流动,圆管半径为 R ,则管中流速 u 随离中心的距离 r 的增大而降低:

$$u = 2\bar{u}\left(1 - \frac{r^2}{R^2}\right) \quad (6 \cdot 9)$$

式中 \bar{u} 为圆管截面上的平均流速。由此可见,当 $r = R$ (管壁处)时, $u = 0$; $r = 0$ (中心处)

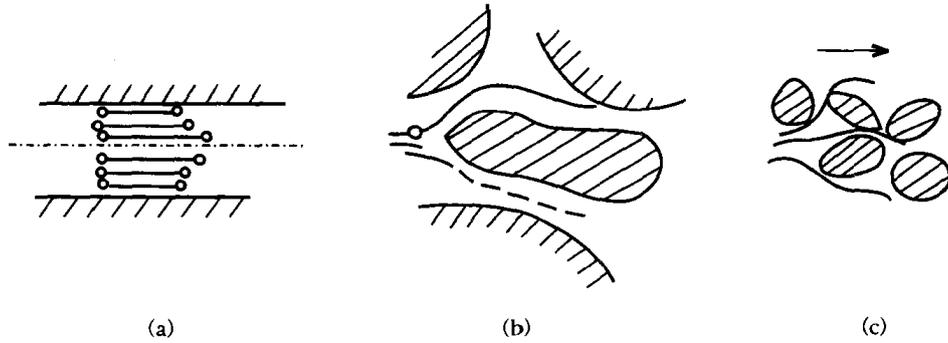


图 6.8 机械弥散作用

时, $u = 2\bar{u}$, 流速最大。

②介质中孔隙断面尺寸(孔径)差异极大,形成地下水流速分布的不同,孔隙越大流速越快,因此,各孔隙中心轴线处的最大流速也不同[图 6.8(b)]。

③含水层颗粒骨架的阻挡,使孔隙中水的流动迂回曲折,方向不断变化,流速也时有起伏,形成质点运动速度的差异[图 6.8(c)]。

上述三种机械作用是同时发生的,其产生的机械弥散现象又称为水力弥散。其中沿平均流速方向称为纵向机械弥散,与流速方向垂直的横截方向称为横向机械弥散,含水层厚度方向称为垂向机械弥散。

机械弥散导致的污染弥散通量为:

$$J_h = -K_h \frac{dC}{dX} \quad (6 \cdot 10)$$

式中 K_h 为机械弥散系数,与孔隙平均流速 u 呈线性相关,即

$$K_h = \alpha u \quad (6 \cdot 11)$$

式中 α 为弥散度(m),定义为描述多孔介质中溶质弥散能力的特性长度,是与介质特性有关的试验常数。

地下水在地层介质中流动时,分子扩散和机械弥散往往是同时存在的,两者合称为水动力弥散,相应的污染物弥散通量为:

$$J = J_h + J_d = -K \frac{dC}{dX} \quad (6 \cdot 12)$$

式中 K 为水动力弥散系数,

$$K = K_h + K_M \quad (6 \cdot 13)$$

地下水流速较大时,污染物的水动力弥散主要来源于机械弥散作用;地下水流速很小时,则不可忽略分子扩散作用。

自然条件下,地下水多具有一定的流速,而且含水层中的上下运动亦不明显,故通常可不考虑分子扩散及垂向弥散作用。但如介质粘度很大,地下水流速很小时,或考虑污染物的短距离迁移时,就应考虑分子扩散作用。含水层很厚或两含水层之间存在垂向越流时,亦应考虑垂向弥散作用。

6.3.1.4 廓清作用

守恒污染物在含水地层介质中的迁移仅是平流及水动力弥散两种现象综合作用的结果,但是,对非守恒污染物则还应考虑其与地下水及介质之间的物理、化学及生物反应所导致的廓清作用。影响非守恒污染物在含水地层中迁移转化的反应有:水解络合、酸碱、氧化还原、沉淀溶解、吸附解吸、离子交换、衰变降解,和地下水中的离子强度,其中只有吸附、离子交换、沉淀和衰变降解具有廓清作用,但其它反应具有增强或削弱廓清作用的影响。上述几种具有廓清作用的反应对非守恒污染物在地下水中的迁移和浓度分布的影响如图 6.9 所示。

(1) 吸附滞留 吸附解吸、离子交换、可逆性沉淀及过滤等廓清作用统称为吸附作用。污染物在介质颗粒表面上的吸附会阻滞其迁移,使其在介质中的输运速度小于地下水的运移速度,通过单位距离的输运时间比地下水运移所需时间(即平均停留时间)长,污染区范围比无廓清作用时小。

吸附作用对污染物迁移的滞留效应可以阻滞因子加以描述:

$$R_d = \frac{u}{u^*} \quad (6 \cdot 14)$$

式中,

R_d ——阻滞因子;

u ——地下水流的平均孔隙速度, $m \cdot s^{-1}$;

u^* ——污染物的输运速度, $m \cdot s^{-1}$ 。

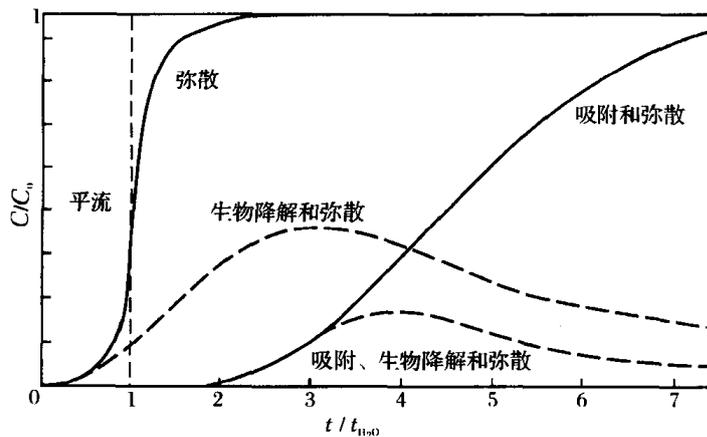


图 6.9 弥散、平流、吸附和生物降解对距污染源某一距离监测井内地下水有机污染物浓度随时间变化的影响(t_{H_2O} 为地下水平均停留时间)

当吸附作用可用分配系数描述时,阻滞因子可按下式计算:

$$R_d = \frac{\theta_s}{\theta} + \frac{\rho_s}{\theta} K_d \quad (6 \cdot 15)$$

式中,

θ_s ——介质的饱和含水率;

θ ——介质的实际含水率;

ρ_s ——介质的真密度。

对饱和介质,可用总孔隙度 η 和有效孔隙度 η_e 取代式中的 θ_s 和 θ 。一般情况下, $\theta \approx \theta_s$, 故有

$$R_d = 1 + \frac{\rho_b}{\theta} K_d \quad (6 \cdot 16)$$

式中 ρ_b 为介质的堆积密度。

(2) 衰变 放射性衰变导致地下水中核素浓度的变化可用下式表示:

$$C_t = C_0 e^{-\lambda_r t} \quad (6 \cdot 17)$$

式中,

C_t —— t 时刻的浓度, $Bq \cdot L^{-1}$;

C_0 ——初始浓度, $Bq \cdot L^{-1}$;

λ_r ——核素衰变常数, s^{-1} ;

t ——迁移时间, s 。

6.3.2 地下水中污染物的迁移方程

6.3.2.1 饱水介质中的迁移方程

(1) 基本方程 饱水介质中,在稳定均匀流场条件下,如果不考虑迁移过程中地下水的补给和流失,忽略弥散系数的时间空间变化,并假定流速向量方向为 X 轴方向,污染物在地下水中的二维迁移方程为:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \underbrace{K_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}}_{\text{积累项}} + \underbrace{K_y \frac{\partial^2 C}{\partial y^2}}_{\text{弥散项}} - \underbrace{u \frac{\partial C}{\partial x}}_{\text{平流项}} + \underbrace{\sum_{K=1}^n R_K}_{\text{反应项}} \quad (6 \cdot 18)$$

式中,

C —— (x, y) 点处地下水中污染物的浓度;

K_x ——水流方向的弥散系数(包括分子扩散与机械弥散);

K_y ——横截方向的弥散系数(同上);

u ——地下水的平均孔隙流速;

R_K ——几个不同的反应中第 K 个反应的溶解污染物质的产率(可正可负)。

对于不产生反应的守恒污染物, $\sum_{K=1}^n R_K = 0$, 则有:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = K_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + K_y \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} - u \frac{\partial C}{\partial x} \quad (6 \cdot 19)$$

对于一维流场问题,非守恒污染物及守恒污染物的迁移方程分别为:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = K \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - u \frac{\partial C}{\partial x} + \sum_{K=1}^n R_K \quad (6 \cdot 20)$$

及

$$\frac{\partial C}{\partial t} = K \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - u \frac{\partial C}{\partial x} \quad (6 \cdot 21)$$

(2) 考虑廓清作用的迁移方程 介质的吸附作用是影响放射性核素在地下水中迁移转

化的主要反应项,如把吸附—解吸完全视为可逆过程,则

$$\sum_{K=1}^n R_K = -\frac{\rho_b}{\eta_e} \frac{\partial S}{\partial t} \quad (6 \cdot 22)$$

式中, S 为吸附在固体介质上的核素浓度,由式(6·14)可知,

$$S = K_d \cdot C \quad (6 \cdot 23)$$

则式(6·18)可改写为:

$$\frac{\partial C}{\partial t} \left(1 + \frac{\rho_b K_d}{\eta_e}\right) = K_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + K_y \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} - u \frac{\partial C}{\partial x}$$

即

$$R_d \frac{\partial C}{\partial t} = K_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + K_y \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} - u \frac{\partial C}{\partial x} \quad (6 \cdot 24)$$

同理,对一维流场,式(6·20)可改写为

$$R_d \frac{\partial C}{\partial t} = K \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - u \frac{\partial C}{\partial x} \quad (6 \cdot 25)$$

当需同时考虑放射性核素在迁移过程中的衰变时,对二维流场,式(6·24)可改写为:

$$R_d \frac{\partial C}{\partial t} = K_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + K_y \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} - u \frac{\partial C}{\partial x} - \lambda_r C R_d \quad (6 \cdot 26)$$

对一维流场,式(6·25)可改写为

$$R_d \frac{\partial C}{\partial t} = K \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - u \frac{\partial C}{\partial x} - \lambda_r C R_d \quad (6 \cdot 27)$$

6·3·2·2 包气带非饱水介质中的迁移方程

污染物在包气带非饱水条件下迁移时,因其弥散系数和平均孔隙流速等迁移参数均为土壤含水率的函数,故远较饱水条件下复杂。

对于迁移过程中会被介质吸附,并可衰变的放射性核素,如平衡能很快达到并可表示为线性关系时,则一维垂向迁移方程为:

$$R_d \frac{\partial(\theta C)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} (K_z \theta \frac{\partial C}{\partial z}) - \frac{\partial(qC)}{\partial z} - \left[\frac{\partial \theta}{\partial t} + \lambda_r \theta\right] R_d C \quad (6 \cdot 28)$$

对守恒污染物,则为:

$$\frac{\partial(\theta C)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} [K_z \theta \frac{\partial C}{\partial z}] - \frac{\partial(qC)}{\partial z} \quad (6 \cdot 29)$$

6·3·3 地下水中污染物浓度的计算

地下水中污染物浓度的计算,涉及对不同条件下得到的迁移方程的求解。污染物在包气带土层及饱水带地下水中的迁移方程,一般都是抛物线型的二阶线性偏微分方程,其求解方法有解析法、半解析法和数值法三种。

虽然只有在理想的条件下才能求得迁移方程的解析解,而且其计算结果较为复杂,但该方法所需基本数据较少,相对便于应用。它不但是初步预测地下水污染程度的最有用的方法,而且在实验设计、反求迁移参数和对数值法的校核等方面都是十分有效的。对于复杂的问题或边界条件,将无法求得其解析解,则可采用半解析法或数值法求解。

6.3.3.1 无限长砂柱中的迁移问题

对于污染物在包气带地层介质中的垂向迁移及污染河流对潜水层地下水的污染,可采用污染物在一个无限长的、地下水实际流速为 u 的稳定流,均匀多孔介质中的一维迁移模式求解地下水中污染物的浓度。

(1) 连续或短期释放污染源 在 $z=0$ 处,从 $t=0$ 开始的 t_0 时间段内连续输入某一种放射性核素,其浓度 C_0 为常数,这种情况下,迁移方程形式为式(6.27),即

$$R_d \frac{\partial C}{\partial t} = K_z \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - u \frac{\partial C}{\partial z} - \lambda_r R_d C \quad (6.30)$$

初始条件为:

$$C(z, t) \Big|_{t=0} = 0, \quad -\infty \leq z \leq \infty$$

边界条件为:

$$\begin{aligned} \frac{\partial C(z, t)}{\partial z} \Big|_{z=\infty} &= 0, \quad 0 \leq t \leq \infty \\ [-K_z \frac{\partial C}{\partial t} + uC] \Big|_{z=0} &= uC_0, \quad 0 < t \leq t_0 \\ [-K_z \frac{\partial C}{\partial t} + uC] \Big|_{z=0} &= 0, \quad t > t_0 \end{aligned}$$

应用拉普拉斯变换求解上述方程组,可得到在距排放源 z 处任一时刻 t 时地下水中核素的污染浓度为:

$$C(z, t) = \begin{cases} C_0 A(z, t) & 0 < t \leq t_0 \\ C_0 [A(z, t) - A(z, t - t_0)] & t > t_0 \end{cases} \quad (6.31)$$

式中, C_0 为排入核素的初始浓度($\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$), $A(z, t)$ 的定义为:

$$\begin{aligned} A(z, t) &= \frac{u}{u + u'} \exp\left[\frac{z(u - u')}{2K_z}\right] \operatorname{erfc}\left[\frac{R_d z - u't}{2(K_z R_d t)^{1/2}}\right] \\ &+ \frac{u}{u - u'} \exp\left[\frac{z(u + u')}{2K_z}\right] \operatorname{erfc}\left[\frac{R_d z + u't}{2(K_z R_d t)^{1/2}}\right] \\ &+ \frac{u^2}{2K_z R_d \lambda_r} \exp\left[\frac{uz}{K_z} - \lambda_r t\right] \operatorname{erfc}\left[\frac{R_d z + ut}{2(K_z R_d t)^{1/2}}\right] \end{aligned} \quad (6.32)$$

式中,

$$u' = (u^2 + 4K_z R_d \lambda_r)^{1/2} \quad (6.33)$$

$\operatorname{erfc}(y)$ 为余误差函数:

$$\operatorname{erfc}(y) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_y^\infty e^{-t^2} dt \quad (6.34)$$

表 6.6 所示为可供计算使用的 $\operatorname{erfc}(y)$ 数值表。

(2) 瞬时释放污染源 瞬时释放情况下,核素随入渗水在包气带内一维垂直向下迁移时,设在 $z=0$ 处瞬时释入的核素量为 $Q(\text{Bq})$,则有:

$$C(z, t) = \frac{1 \times 10^{-3} Q / \theta A}{(4\pi K_z t / R_d)^{1/2}} \exp\left[-\frac{(z - \frac{ut}{R_d})^2}{4K_z t / R_d} - \lambda_r t\right] \quad (6.35)$$

式中,

$C(z, t)$ ——释放后 t 时刻垂直距离 z 处地下水中核素浓度, $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$;

A ——入渗水柱的断面面积, m^2 。

6.3.3.2 含水层地下水中的迁移问题

(1) 一维稳定均匀流场 少量的废水排入潜水层地下水中,且满足以下几个假设条件时,可按一维稳定均匀流场中的迁移模式求解地下水中污染物浓度。

表 6.6 $\text{erfc}(y)$ 数值表

y	$\text{erfc}(y)$	y	$\text{erfc}(y)$	y	$\text{erfc}(y)$
0	1.00×10^0	0.70	3.22×10^{-1}	1.80	1.09×10^{-2}
0.05	9.44×10^{-1}	0.75	2.89×10^{-1}	1.90	7.21×10^{-3}
0.10	8.88×10^{-1}	0.80	2.58×10^{-1}	2.00	4.68×10^{-3}
0.15	8.32×10^{-1}	0.85	2.29×10^{-1}	2.10	2.98×10^{-3}
0.20	7.78×10^{-1}	0.90	2.03×10^{-1}	2.20	1.86×10^{-3}
0.25	7.24×10^{-1}	0.95	1.79×10^{-1}	2.30	1.14×10^{-3}
0.30	6.71×10^{-1}	1.00	1.57×10^{-1}	2.40	6.86×10^{-4}
0.35	6.21×10^{-1}	1.10	1.20×10^{-1}	2.50	4.07×10^{-4}
0.40	5.72×10^{-1}	1.20	8.97×10^{-2}	2.60	2.36×10^{-4}
0.45	5.25×10^{-1}	1.30	6.60×10^{-2}	2.70	1.34×10^{-4}
0.50	4.79×10^{-1}	1.40	4.77×10^{-2}	2.80	7.50×10^{-5}
0.55	4.37×10^{-1}	1.50	3.39×10^{-2}	2.90	4.10×10^{-5}
0.60	3.96×10^{-1}	1.60	2.37×10^{-2}	3.00	2.20×10^{-5}
0.65	3.58×10^{-1}	1.70	1.52×10^{-2}		

① 含水层是由均匀多孔介质组成的限定性潜水层;

② 潜水层在平面上无限延伸,厚度不变,地下水沿正 x 方向的平面均匀流动,实际渗透流速 u 稳定不变;

③ 排入潜水层的废水流量与区域地下水流量相比可忽略不计。

1) 点源连续释放 当污染物通过一个完全进入满足上述条件的潜水层中的排放井连续释放时,污染物在潜水层中的垂向混合相当迅速而完全(因潜水层厚度相当有限),污染物沿水流方向平流运输的同时,仅存在水流方向及水平横截方向上的弥散。当取排放井位置为坐标原点,且取 t 足够长,地下水中污染物的平衡浓度可按下式计算:

$$C(x, y) = \frac{1 \times 10^{-3} Q}{2\pi b (K_x K_y)^{1/2}} \exp\left(-\frac{x}{B}\right) K_0(r/B) \quad (6.36)$$

式中,

$C(x, y)$ ——排放口下游 (x, y) 点处地下水中核素的浓度, $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$;

Q ——核素排放率, $\text{Bq}\cdot\text{s}^{-1}$;

b ——含水层厚度, m ;

$K_0(r/B)$ ——第二类零阶修正的贝塞尔函数,其中,

$$B = \frac{2K_x}{u} \quad (6.37)$$

$$r = \left[\left(x^2 + \frac{K_x}{K_y} y^2 \right) \left(1 + \frac{2B\lambda_r R_d}{u} \right) \right]^{1/2} \quad (6.38)$$

2) 点源瞬时释放 如 $t=0$ 时刻通过排放井瞬时释放核素活度为 $Q(\text{Bq})$, 则有:

$$C(x, y, t) = \frac{1 \times 10^{-3} Q}{4\pi\eta_e b t (K_x K_y)^{1/2}} \exp\left\{-\frac{(x - ut/R_d)^2}{4K_x t/R_d} - \frac{y^2}{4K_y t/R_d} - \lambda_r t\right\} \quad (6 \cdot 39)$$

一维稳定均匀流场中水平线源及水平面源释放的浓度计算可查阅有关文献。

(2) 平面辐射流弥散 通过排水渗井对承压含水层进行人工补水或向其中排入废水, 而地下水天然流速远小于注水强加的流速时, 可按平面辐射流条件计算地下水污染浓度。

假设在水平无限展布、等厚、均质、各向同性的承压含水层中有一口完整的排放井, 核素以恒定的速率 $Q(\text{Bq} \cdot \text{s}^{-1})$ 通过该井连续排入含水层中。当地下水流速为零时, 井附近很快形成轴对称平面辐射流, 这种情况下, 排放开始后 t 时刻距源半径为 $r(\text{m})$ 的圆周处地下水中核素的浓度可按下式计算:

$$C(r, t) = \frac{1 \times 10^{-3} Q}{2F_w} \operatorname{erfc} \left[\frac{\sqrt{\frac{3ru}{K_r}} \left(1 - \frac{2ut}{rR_d}\right)}{2 \left(\frac{2ut}{rR_d}\right)^{0.25}} \right] \quad (6 \cdot 40)$$

式中,

$C(r, t)$ ——排放开始后 t 时刻半径 $r(\text{m})$ 的圆周处地下水中核素的浓度, $\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$;

Q ——核素排放率, $\text{Bq} \cdot \text{s}^{-1}$;

F_w ——排放废水流量, $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$;

t ——排放开始后的时间, s ;

K_r ——径向弥散系数, $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 。

6.3.4 地下水中污染物迁移参数的确定

为准确计算污染物在包气带及饱水带地下水中浓度的时空分布, 除需要建立符合实际的数学模型外, 更重要的是必须根据特定地区地下水的埋藏条件和地层介质的特性, 合理准确地确定迁移模型中各参数的数值, 需要确定数值的参数包括包气带、潜水层或承压水层的厚度, 地下水流向及流速, 水力弥散系数, 吸附分配系数及阻滞因子等。到目前为止, 对饱水条件下污染物在包气带和潜水层中的迁移参数研究较多, 测定方法比较成熟, 并积累了大量实验数据可供参考; 非饱水条件下的迁移参数与土壤含水率有关, 测量较为困难, 至今仅对其中水运移参数测量作了一些研究工作, 对污染物迁移参数的研究还不多见。

地下水中污染物迁移参数的确定涉及内容很广, 也相当复杂, 本节只简要讨论有关放射性核素阻滞因子的测定方法。

放射性核素与岩石(或土壤)的相互作用机制可分为吸收作用(核素由溶液向岩石、土壤的转移)和阻滞作用(不存在任何实际吸收作用情况下, 核素迁移速率减慢)。一般情况下, 通过静态实验可检测吸收作用, 而动态实验则可测定两种作用的综合结果。

阻滞参数值的大小与所研究的岩石(土壤)-水系统的物理化学性质有很大的关系, 因此, 实验前应谨慎选择介质样品, 控制合适的 pH 值、温度及氧化-还原条件等有关物理化学条件。对于铜系元素及化学缓冲能力极低的岩-水系统, 这一要求尤为重要。

静态实验可测得放射性核素在固液两相之间的分配系数 K_d , 理论上, 核素在两相之间

的交换平衡与水流通量无关,因此,可测得净吸附量。分批平衡法是目前测量岩土介质吸附容量最常用的方法。将岩石或土壤样品加入到放射性示踪核素溶液中,当核素在固液两相间达到分配平衡时,分别测量岩石(土壤)样品及溶液中核素的浓度,两者之间的比值即为分配系数 K_d 。

核素在两相间达到分配平衡所需时间很长,对于磨成细粉状的岩土样品,整个系统达到平衡需几天至几周,对整块岩石样品,则需几个月以至几年。因此,在漫长的实验过程中,岩石与水之间会发生缓慢的水解反应,其反应产物也可能具有吸附作用。在某些情况下,有必要考虑这类水解产物的影响。但低温条件下,大部分岩土样品与水发生水解反应的速率是极低的。

静态吸附实验结果常以分配系数 K_d 值的大小表示,如将放射性核素在固液两相间分配比与温度、反应时间、pH 值、浓度及竞争反应等一系列可变因素联系起来,将吸附表达为某一特定温度下固液两相间核素浓度的分配函数曲线(“等温”吸附曲线),即为分配函数。

动态实验常采用柱体实验技术,放射性示踪核素溶液穿流过一整块岩石或一个泥砂柱体(图 6.10),根据流出液中核素浓度随时间的变化和柱体内不同高度处核素浓度的变化,估算示踪核素和水在柱体中运移速度的差异,以确定柱体介质对核素的阻滞因子。在假设吸附作用为可逆过程,且与浓度无关的前提下,亦可由阻滞因子 R_d 求得分配系数 K_d 值的大小。

上述柱体实验中,应考虑柱体中可能存在的各相异性(即层状结构),也应注意不改变具有自然解吸性能的介质(砂粒)中原来的孔隙流动状态,因此,直接由岩心制备实验柱体时,必须保证最小的机械扰动。对于固体岩心样,可能有相当量的液体沿试样侧壁向下流动,从而导致明显的实验误差,为此,可将岩心压碎后再装柱;对于低渗透性岩样,则可用高压水头增加柱体中流动性,但这都将明显改变自然条件下原有的水流条件。

实验室内动态实验规模有限,模拟条件与实际环境条件之间也存在相当大的差异,为此,还必须进行野外补充实验。

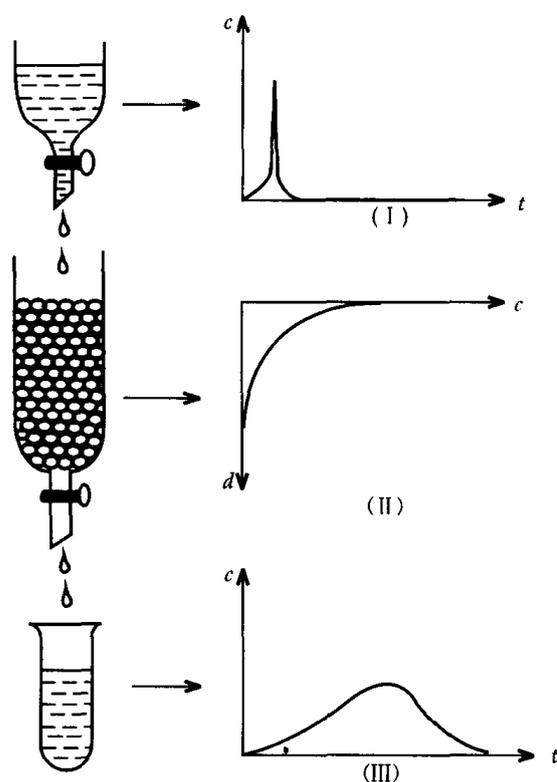


图 6.10 柱体吸附实验示意图

溶有放射性示踪核素的地下水被注入到一个盛有岩石样品或土壤的柱体容器中。从图(I)中可以看出,假定示踪核素以脉冲方式注入柱体中;从图(II)中可以看出,随着示踪地下水溶液穿过柱体时,示踪核素在地下水溶液中的浓度将随着穿透深度的增加而降低;从图(III)可以看出,流过柱体后的流出物中,由于岩石的吸附和阻滞作用,示踪核素的浓度随时间将有一个含量变化。这与地表进行的示踪实验观测到的分布曲线相似。

参 考 文 献

- 1 刘兆昌等. 地下水系统的污染与控制. 北京:中国环境科学出版社,1991
- 2 C. Golian et al. Radionuclide Transport, Alligator Rivers Analogue Project Final Report. Australia: ANSTO. 1992

- 3 潘乃礼等. 地下水水质现状和预测评价的理论和方法. 北京:原子能出版社,1995
- 4 V. Moulin et al. The Role of Colloids in the Transport of Radionuclides in Geological Media. Luxembourg: The European Atomic Energy Community, 1996
- 5 查普曼等著, 核废物的地质处置. 谢运棉等译. 北京:原子能出版社,1992
- 6 王志明等. 低放废物浅地层处置安全评价指南. 北京:原子能出版社,1993
- 7 章仲侯主编. 放射卫生学. 北京:原子能出版社,1985
- 8 魏菊英. 地球化学. 北京:科学出版社,1986.
- 9 赫茨英格. 环境化学手册(第15册). 北京:中国环境科学出版社,1987
- 10 潘自强等. 中国核工业三十年辐射环境质量评价. 北京:原子能出版社,1990
- 11 强亦忠等. 简明放射化学教程. 北京:原子能出版社,1989
- 12 王大纯等. 水文地质学基础. 北京:地质出版社,1995
- 13 阮天健. 地下水与环境. 武汉:中国地质大学出版社,1996
- 14 史维俊. 铀水文地球化学原理. 北京:原子能出版社,1990
- 15 Boyle. W. Geochemical Prospecting for Thorium and Uranium Deposits. Elsevier Scientific Publishing Co., 1982

第7章 放射性物质通过生物链向人的转移

人是生物圈中最高等的动物,处于整个生物链的终端,生态系统中的能量传递和物质迁移过程,环境放射性水平及其变化,都会在不同程度上对人造成影响。

核设施向环境释放放射性流出物,其中的放射性核素得以在环境中迁移和弥散,从而导致空气、水、土壤等非生物环境物质的污染,可对人造成直接外照射,也可经由饮水、呼吸等途径进入人体而造成内照射。此外,这些非生物环境物质中的放射性物质还会伴随着生态系统内发生于植物—动物—人这一生物链中各种复杂的过程而向人转移。放射性物质通过生物链向人转移是环境放射性污染对人造成内照射最重要的途径。

放射性物质在大气和水体中的迁移,涉及污染物在空气和水中的弥散、运输、扩散和再悬浮等各种地球物理分散过程。一般说来,随着与污染源之间距离的增大,水与空气的污染程度总是逐渐降低的,污染核素在这些环境物质中被分散的程度和速率主要取决于水和空气的湍流强度。

放射性物质的生物链转移则涉及污染物在各种生物链过程中的迁移和浓集机制,这些机制比非生物环境物质中的地球物理分散过程复杂得多,而且具有明显的物理、化学及生物浓集作用。

7.1 放射性物质的生物链转移

7.1.1 生物链转移的基本途径

水、空气、土壤等非生物环境物质中的放射性核素,在一定的条件下可进入植物组织中,这是其生物链转移的第一个环节。陆生植物通过根部从土壤中的摄取及对沉积在其地面上组织(叶片)表面上的气载污染物的吸收而蓄积放射性核素。水生植物则通过吸附、吸收而从水中摄取放射性核素。植物通过根膜从土壤水中吸收的放射性离子或分子,将在其组织间传输,最终结合于某些特定部位,从而导致核素在植物组织中的蓄积;此外,土壤中的放射性核素还常粘附于植物根系或仅进入其表面,实际上并未与植物组织相结合。同样,空气及水中的放射性核素沉积在植物叶片表面上之后,也只有一部分被吸收而结合于植物组织中,另一部分也只是粘附在叶片表面。

植物被食草动物食用,使放射性物质得以从植物向动物转移。在动物的消化过程中,植物组织中可溶性营养元素及放射性物质在胃肠道中被吸收,随血液循环传输到某些器官或组织中蓄积起来,未被吸收的物质则通过胃肠道后随粪便排出体外。这种情况下,结合于植物组织内的放射性物质因其可溶性较大,被动物吸收的份额也较表面粘附物质为大。

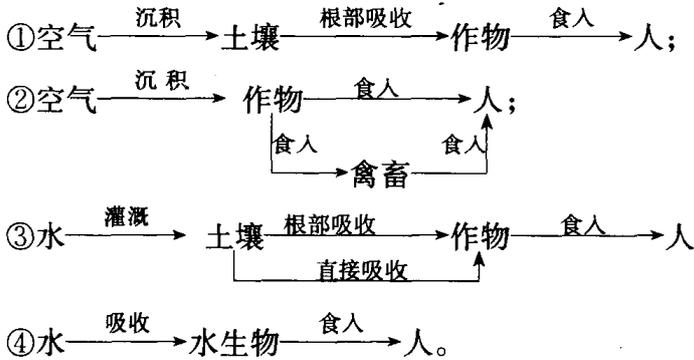
食草动物被食肉动物食用,放射性物质又得以在生物链中进一步转移。由于某些食肉动物只是选择性地食用其猎物的一部分,因此,只有这一部分器官或组织内的放射性物质才会被食肉动物吸收;只有当猎物全部被食用时,其体表附着的及残留于胃肠道内的放射性核素才会被食肉动物吸收。

当然,无论是食草动物还是食肉动物,在食用多年生植物饲料,舔梳皮毛、羽毛或其幼仔时,也会直接摄入并吸收一部分结合于土壤和体表沉积物颗粒中的放射性核素,但这类污染物质一般情况下水溶性较差,动物对其的吸收份额也相对地较小。

人作为生物链中最后一个环节,植物、食草动物及食肉动物都可为其食物来源,这决定了人体吸收、蓄积放射性物质的多源性。一般情况下,人都是有选择地食用其食物的一部分,因此,只有可食的动植物器官、组织或分泌物(肉、某些内脏器官、奶、蛋)中的放射性物质才会被人吸收而造成内照射。

植物与动物的尸体、残骸、分泌物和排泄物中的放射性核素伴随着这些物质一起成为有机垃圾,这些有机垃圾也可通过沉积和吸附作用直接从空气或水中吸收放射性核素,由此成为生态系统中一个相当大的放射性物质的“贮存库”。微生物的作用使有机垃圾得以矿化(腐败),又转化为矿物质,并重新进入生物链循环过程,其中的放射性核素也随之开始新的生物链转移过程。

由此可见,释入环境中的放射性物质通过生物链向人转移的基本途径可概括为:



7·1·2 放射性物质在生物体内的蓄积和平衡

放射性物质经由生物链向人体转移的过程中,会在生物体内蓄积起来,生物体中核素的浓度逐渐增高,并在一定的条件下趋于平衡。

放射生态学中将一个生态系统划分为若干相互关联又相互分离的结构实体,这些实体是一个完全均匀的体系,它能容纳、输出和保持一定数量的放射性物质,一般称为“隔室”。隔室既可代表非生物环境物质(如水、空气和土壤),也可以代表生物体(如水生物、陆生植物、陆生动物和人),若干个隔室按一定的顺序组合起来,可用于模拟某个实际的生态系统。

设一隔室中某种放射性核素的总活度为 Q ,隔室内物质的总质量为 M ,则隔室内该核素的平均浓度(或比活度)为

$$C = \frac{Q}{M} \tag{7·1}$$

隔室内核素总活度 Q 随时间的变化为

$$\frac{dQ}{dt} = R_{in} - R_{out} \tag{7·2}$$

式中,

R_{in} ——隔室中某种核素的输入速率;

R_{out} ——隔室中某种核素的输出速率。

通常,隔室中核素的输出为一级动力学过程,即输出速率与隔室中核素的总活度成正比:

$$R_{\text{out}} = KQ \quad (7 \cdot 3)$$

式中 K 为输出率常数。将式(7.3)代入式(7.2)中,即有

$$\frac{dQ}{dt} = R_{\text{in}} - KQ \quad (7 \cdot 4)$$

设输入速率为不随时间变化的恒定值,且 $t=0$ 时 $Q(0)=0$,则有

$$Q(t) = \frac{R_{\text{in}}}{K}(1 - e^{-Kt}) \quad (7 \cdot 5)$$

隔室中核素浓度 C (或比活度 \dot{A})随时间的变化为

$$C(t) = \frac{R_{\text{in}}}{KM}(1 - e^{-Kt}) \quad (7 \cdot 6)$$

这表明,隔室中某种核素的浓度 C 与 R_{in} 成正比,与 K 及 M 成反比,并随时间推延而逐渐增大,直至达到某一平衡值($t \rightarrow \infty$ 时, $1 - e^{-Kt} \rightarrow 1$):

$$C_e = \lim_{t \rightarrow \infty} C(t) = \frac{R_{\text{in}}}{KM} \quad (7 \cdot 7)$$

对于动物和人等生物隔室,输出速率常数 K 即为代谢常数 λ_b 与核素衰变常数 λ_r 之和(有效衰减常数 λ_e)

$$K = \lambda_e = \lambda_r + \lambda_b \quad (7 \cdot 8)$$

式中,

λ_r ——核素衰变常数;

λ_b ——生物代谢的排泄常数。

生物体内核素的有效半减期为

$$T_{1/2,e} = \frac{0.693}{\lambda_e} = \frac{T_{1/2,r} \times T_{1/2,b}}{T_{1/2,r} + T_{1/2,b}} \quad (7 \cdot 9)$$

式中,

$T_{1/2,r}$ ——核素的物理半衰期;

$T_{1/2,b}$ ——核素的生物半减期;

当某一隔室中存在 m 个输入项和 n 个输出项时,式(7.4)即可改写为

$$\frac{dQ}{dt} = \sum_{i=1}^m (R_{\text{in}})_i - Q \sum_{j=1}^n K_j \quad (7 \cdot 10)$$

由此可见,一隔室中某种核素的蓄积量随时间推延逐渐增加还是减少,主要取决于所有输入速率与输出速率之差。每一输入项和输出项都代表某一特定的迁移过程,可用相应的 R_{in} 及 K 值加以表征和描述。

对于土壤、水生物、陆生植物、陆生动物和人等非生物及生物隔室,随着放射性物质连续释入环境,放射性核素在这些隔室中一般都呈逐渐蓄积的状态,一定条件下有可能达到某种动态平衡。

7.1.3 影响放射性核素生物链转移及蓄积的因素

7.1.3.1 放射性核素的性质

(1) 半衰期 短寿命放射性核素在环境中存在的时间很短,在各种非生物环境物质之间及生物链中的迁移及转移范围有限,其在土壤及生物体内的蓄积程度也相当有限,因此,对环境及人的影响不大。

长寿命放射性核素由于其比活度较低,能量释放速率有限,因此,即使在环境物质及人体内达到相当高的蓄积程度,其对人造成的辐射剂量也是有限的。

一般认为,半衰期介于几天至一千年左右的放射性核素能在环境和生物体内达到较高的蓄积活度,其对环境和人的辐射影响尤应倍加关注。例如,核武器试验产生约 200 种裂变产物,沉降到陆地环境中并可被检测到的只有几十种,转入土壤后被植物根部吸收而可从各类生物体中检测到的只有⁹⁰Sr、¹³⁷Cs 等几种。¹³¹I 等短寿命核素则主要经由牧草—奶牛—牛奶—人这类短而快速的生物链过程向人体转移而对人造成内照射。

(2) 物理形态 放射性核素的物理形态对其环境行为有相当大的影响。释入大气中的核素如与空气尘埃相结合,其在大气中的迁移则与颗粒物的大小、形状和密度有密切的关系。难溶性核素易与较大的颗粒相结合,能较快地降落到地面上,其迁移及分布范围相当有限,植物对其吸收份额也较小;挥发性较大的核素易与细微的气溶胶颗粒结合,沉积过程十分缓慢,弥散范围广,迁移距离远,植物的吸收份额也较大。一般说来,核素颗粒越大,水溶性越小,生物可利用性越小。

(3) 化学性质 放射性核素的化学性质对其在生物体内的吸收和蓄积有着非常密切的关系。化学性质活泼的水溶性核素,被生物摄取后很容易被吸收和蓄积,如²²⁶Ra 的氯化物易溶于水,植物对其吸收份额较大;其硫酸盐则难溶于水,就很难被植物吸收。铯为碱金属,化学性质活泼,水溶性大,一般极易被生物吸收;但如¹³⁷Cs 被裹入难溶或惰性的颗粒物中,就很难被生物吸收,更难以在器官、组织中蓄积,其生物链转移可能被中断。

不少放射性核素的稳定同位素或同系物是动植物和人体必需的营养元素,两者的化学性质十分相似,这些放射性核素的环境行为和生物链转移可按其类似营养元素的行为和转移规律作定性的估计。⁴⁵Ca、⁸⁹Sr、⁹⁰Sr、²⁴⁰Ba、²²⁶Ra 等核素的行为与钙相似;²²Na、⁴⁰K、⁸⁶Rb、¹³⁷Cs 等核素则往往随钾一起参与生物链转移;¹²⁹I、¹³¹I 与稳定碘的化学性质完全一致;³H 的行为与氢相同。

碘是甲状腺合成甲状腺素和相应化合物的必需原料,与稳定碘行为完全相同的¹³¹I 通过摄食途径进入食草动物体内后,即在甲状腺内高度浓集,一些食用过污染牧草的羊,其甲状腺内¹³¹I 的浓度比牧草中的高出 10⁴ 倍以上。⁹⁰Sr 的化学性质与钙相似,被动物摄入后首先在骨组织中蓄积,而且代谢排出速率极低,一般很难除去。

⁸⁵Kr、⁹⁵Zr、¹⁴⁴Ce、²³⁹Pu 等核素的物理化学行为比较独特,它们不存在类似的稳定性营养元素,其环境行为及在生物体内的蓄积规律不能按与一般营养元素的相似性进行预测。研究表明,这些元素的迁移、蓄积行为十分复杂,对生物的潜在危害更大。例如,¹⁴⁴Ce 和²³⁹Pu 可分别蓄积在肝脏和骨组织内,长期缓慢的蓄积可对这些器官组织造成相当大的内照射剂量。

尽管某些放射性核素的行为可按其类似营养元素的行为进行推测,但其在生物体内的代谢蓄积与营养元素还是具有明显的差异。虽然大部分营养元素的自然丰度相当大,但生物体经过漫长的进化过程,对其已有相当的控制和调节能力,使其在机体内的含量维持在必需且合理的水平;环境中放射性核素的质量浓度远比营养元素为低,机体的控制调节机制对

其未必有效,因此,放射性核素在某些器官组织中的蓄积可能达到相当高的水平。例如,痕量的¹³⁷Cs会脱离钾的生理代谢过程而蓄积于某些组织中,对其造成较高的内照射剂量。

放射性核素的化学形态对其在生物体内的迁移、蓄积也有重要的影响。分子态碘主要经吸入途径进入生物体内;离子态碘则以水溶状态经食入途径被生物摄取;有机碘则最易被人体吸收。

7.1.3.2 生物的特性和行为

生物的某些固有特性和行为特征对其吸收、蓄积放射性核素的能力有很大的影响,同一环境内同一生物群落中不同种类的生物,其体内放射性核素的蓄积程度会有明显的差异,其原因在于不同种类的生物在形态、寿命、行为特征及生理特征诸方面的差别。

(1) 外表形态和表面性质 当体表吸附是生物蓄积放射性核素的主要途径时,其外表形态对蓄积能力有很大的影响。生物体的表面-体积比对其通过表面吸收蓄积核素的能力具有决定性的作用,一般地讲,生物的形体越小,其表面-体积比越大,从空气、水或土壤中吸收蓄积的能力越大。生物体质量相同时,球形体的表面-体积比最小。扁平、分支状和卷曲外形的生物体的体积比表面积较大。因此,形体小、表面多皱、有毛或其它外凸物的生物通过表面吸收蓄积环境中放射性核素的能力较大。例如,地衣类植物具有卷曲和分支的表面形态结构,其表面-体积比很大,生长期也很长,可从空气中吸收蓄积较大量的放射性核素。

有些植物的表面呈毛茸状,这种细微的表皮结构能有效地捕集吸附空气中的放射性微粒,植物表面的“毛发”结构既可吸附可溶性的放射性核素,其分泌的腊质或油质物也能有效地粘附捕集空气中的微粒;放射性气溶胶也可通过叶片的气孔进入植物体内。动物的毛发同样能捕集放射性气溶胶和微粒,动物在舔梳自身及其幼仔的皮毛时,可将粘附在毛发上的放射性核素食入体内。

(2) 生理和代谢特征 生物从外界摄取营养物质和能量时,放射性核素同时被摄取,化学性质与代谢活性元素类似的可溶性放射性核素,可透过生物膜被吸收而进入生物的器官和组织中。生物代谢速率越快,其体内能量和无机物的更新也越快,生物摄入能量和无机物的量越大,机体的排泄速率也随之增快,这意味着生物体对环境中放射性核素的摄取、吸收和排泄也随之加快。值得注意的是,生物代谢过程中,其自身的生理调节控制功能可使体内无机物含量达到生物平衡而维持在一定的浓度范围内,但处于痕量水平的放射性核素的生理行为与常量的无机物并不完全相同,代谢速率加快增加了生物对放射性核素的摄入和吸收。但当这些核素能牢固地结合于生物体内某些器官与组织中时(如⁹⁰Sr蓄积于骨组织中),即不可能以同样大的排泄速率排出体外。因此,长寿命放射性核素将在这些器官组织中得到净的蓄积。

生物的生理和代谢作用随年龄、性别、健康状况以及温度、日射、气候、季节等多种因素而改变。处于成长期中的幼小動物,摄食率一般较高,物质的摄入量在整个成长期内逐步增大,其吸收的一部分能量和营养物会以新生组织的形式在体内贮积起来,体内放射性核素(特别是长寿命的亲骨性核素)的蓄积也会随年龄而增加,故老年期动物体内亲骨性核素的蓄积量一般都较高。性别间的生理差异一定程度上也会影响动物和人对放射性核素的吸收和蓄积。

变温动物对温度变化的生理反应尤为敏感,植物对日射、温度和湿度的变化也有明显的反应,因此,季节和气候的变化会使生物体对放射性核素的摄取、吸收和排泄速率出现短暂

的波动。此外,常量无机营养物质摄入情况的改变也会影响生物对核素的吸收和排泄,例如,增加钙的摄入量可抑制生物体对放射性铯的吸收,并加快其排泄。

(3) 寿命及生长期 对于长寿命放射性核素的生物链转移和蓄积而言,生物的寿命及生长期的长短是一个重要的影响因素。地衣类植物生长十分缓慢,其生长期很长,从空气和土壤中长期的吸收使其组织内对核爆炸裂变核素 ^{137}Cs 及 ^{90}Sr 的蓄积程度远比其它植物为高。相对而言,落叶植物吸收、蓄积放射性核素的能力则较小。各种生物的寿命和生长期长短相差极大,其寿命短的只有几小时或几天,长的可达几百年,生物的寿命长短主要影响长寿命核素及缓慢摄取过程,对于短寿命核素及某些快速摄取过程而言,寿命长短的影响就不明显。

(4) 动物的迁徙、生境选择及摄食习性 环境中放射性污染源分布与不同物种生物的分布往往是不一致的,因此,生物与污染源的接近程度随地理位置而改变,与污染源比较接近的生物群落中,生物体内可蓄积较多的放射性核素。经常游弋于放射性污染水域的鱼类,其体内核素的蓄积量明显高于其它水域中的鱼。生长在阿拉斯加的驯鹿,每到秋季即南移到少雪而地衣生长较丰富的地区,由于大量食用富含 ^{137}Cs 的地衣,其体内蓄积量明显增高;春季时,驯鹿又向北迁徙,由于食物来源的改变, ^{137}Cs 的摄入量大大降低,体内负荷量也明显减少。

同一环境中放射性污染的分布通常也是不均匀的,因此,动物与放射性污染的接触程度与其栖息处的生境特性有很大的关系。在一个生物群落中,地面以上不同高度的放射性污染水平是不一致的,一般情况下,在土壤和沉积层表面附近放射性污染的累积程度最高。因此,经常活动于地面上的动物摄取、吸收和蓄积放射性核素的量远比栖息于森林上空的动物为高。地形条件的差异既影响生物物种的分布,也会影响环境放射性污染的程度,四周有屏蔽的洼地内,土层较丰富,水分充沛,植物生长茂盛,栖息于此的动物可吸收蓄积大量的放射性核素;开阔地带则由于土壤贫瘠,风蚀严重,植物稀疏,动物体内核素的蓄积量相对地要低得多。

动物对放射性核素的摄入量和蓄积程度与摄食习性有很大的关系。一般情况下,食肉动物和以植物种籽为食物来源的动物体内核素的负荷量明显低于食草及食虫动物;具有明显的单一摄食习性的动物,对核素的摄入及蓄积程度与其食物种类有明显的关系;大多数具兼食习性的动物(包括人),其对环境放射性的蓄积规律就很难预测。

某些水栖及陆栖动物,具有掘穴、啃食土壤及沉积物颗粒和舔毛等特殊的行为习性。由于土壤和沉积物常是环境放射性核素的主要贮存库,动物体表毛皮则沾染有大量的空气尘埃和微粒,因此,这类动物摄入及蓄积放射性核素的量可明显高于其它动物。由于洞穴中天然氡及氡子体的浓度很高,穴栖动物因呼吸所致的内照射剂量也较高。

7.1.3.3 生态系统的特性

生态系统的特性对放射性核素的生物链转移起着决定性的作用。这些特性可从物理、化学和生物三个角度加以说明。

(1) 物理特性 生态系统的物理特性包括其与放射性污染源的接近程度、气候、地形、体积和形状等。

不言而喻,生态系统与放射性污染源的接近程度成为决定该系统中放射性核素进入量和贮积量大小的主要因素。

气候对核素在环境中的迁移和沉积有明显的作用。降水可增加空气中放射性微粒的沉积,雨水径流的浸取及冲刷、侵蚀作用使沉积在地面上的核素发生新的迁移和再分配;风力的强弱决定了气载放射性核素在大气中的输运距离及其所致污染范围的大小;沉积在土壤和植物表面的核素可因风的再悬浮作用重新进入空气中,从而进一步扩大污染范围;无风气候则会促使气载放射性核素的沉积。

一个区域内的气候特征与当地的地形条件有密切的关系,地形与气候的综合作用对放射性核素在生态系统中相对迁移速率的大小有很大的影响。处于洼地一类四周有屏障而又平静的地区的生态系统,一般具有积聚环境放射性的倾向;山峰和山脊的背风侧,常年风速较小,空气中放射性微粒较易沉积到地面上;反之,经常受强风袭击的山顶、山脊和海滩,放射性核素很难得以积聚。

在水生态系统中,水中放射性核素的浓度与可参与混合作用的水的体积有很大的关系,因此,水体表面混合层的深度对核素在水中的稀释程度起着决定性的作用。海洋中混合层平均深度为 75m,淡水湖中则不超过 10m,因此,海洋对污染物的稀释能力远比淡水系统为大,海洋生物对放射性核素的蓄积水平远比淡水生物为低。当然,湍流强度对水体的稀释能力也有很大的影响。

(2) 化学特性 生态系统中生物必需的营养元素和成分的含量水平对放射性核素的生物链转移和蓄积有很大的影响。在无机营养元素和成分含量较高的生态系统中,生物对核素的蓄积水平较低,反之,在贫营养或有限营养的生态系统中,生物的蓄积量就较大,其根本原因是无机营养物对化学性质相似的放射性核素具有很强的化学稀释和吸收竞争作用。

土壤的化学性质对植物从中摄取、吸收和蓄积放射性核素的能力有明显的影响,蒙脱土、伊利石等无机粘粒矿物成分能与放射性阳离子牢固结合,使之难以被浸取或被植物摄取,沙质土与阳离子的结合能力很差,植物对放射性核素的利用率就较高;土壤中的腐殖酸对重金属离子的螯合作用能明显地提高铀、镭等超铀元素在环境中的迁移能力。

(3) 生物特性 生态系统的生物特性包括生物物种构成、生物量及群落结构特征。在北极区及高山区生态系统中,植物量极少,植物对放射性核素的蓄积可达到相当高的水平;反之,在植物生长茂盛的森林生态系统中,植物的蓄积水平就低得多。此外,不同种类的植物对核素的蓄积能力也存在明显的差异。

生态系统的结构十分复杂,各种结构与性质不同的生态系统构成了自然界错综复杂的食物网关系。能量、无机物和放射性物质通过食物网途径得以传递、迁移和再分配,使环境放射性核素高度分散于多种生物体内,其分散程度显然与生态系统中群落和物种的多样性有密切的关系。

7.1.4 放射性核素食入量的估算

公众因饮水及食用食物而摄入放射性核素的量(食入量)可按式(7.11)估算:

$$M_{g,a} = \sum_p v_{p,a} f_p C_p f_c \quad (7.11)$$

式中,

$M_{g,a}$ —— a 年龄组公众成员每天食入的核素量, $Bq \cdot d^{-1}$;

$v_{p,a}$ —— a 年龄组公众成员对 P 类食物(或水)的日食用量, $kg \cdot d^{-1}$ 或 $L \cdot d^{-1}$;

f_p ——食入有关地区 P 类食品(或水)的份额;

C_p —— P 类食物(或水)中放射性核素的比活度或浓度, $Bq \cdot kg^{-1}$ 或 $Bq \cdot L^{-1}$;

f_c ——食物清洗、加工、烹煮过程中核素的耗损系数。

表 7.1 所示为不同年龄组公众成员对水和各类食物的食用量。

表 7.1 水和食物的日食用量^①

年龄组	谷物	蔬菜	水果	肉类	蛋类	奶	鱼	水
0~6岁	0.27	0.15	0.11	0.04	0.02	0.06	0.01	1.10
7~17岁	0.41	0.19	0.03	0.06	0.02	0.02	0.01	1.34
≥18岁	0.65	0.33	0.02	0.03	0.004	0.01	0.003	2.0

①水为 $L \cdot d^{-1}$, 其它食物为 $kg \cdot d^{-1}$ 。

7.2 放射性物质的水生物链转移

在水生态系统中,水和水底沉积物中含有氧、氢、氮、钙和二氧化碳等营养元素和成分,在太阳能的作用下,水体中最低等的植物——浮游植物可通过吸收、同化和代谢作用,使之转化为其自身生命活动所必需的生物物质。因此,在水生态系统中,浮游植物起着使矿物质转化为生物物质的基本作用,是水生态系统中的生产者。浮游植物是小型浮游动物、鱼类及两栖水生动物的食物来源,小型浮游动物又是处于较高营养级的大型水生动物的食料,许多情况下,水禽、蜗牛、青蛙等两栖动物可以从水生食物链几个不同营养级上摄取其食物,因此,水生食物链往往呈现十分复杂的网状结构(图 7.1)。即使在同一水体中,不同小生境中

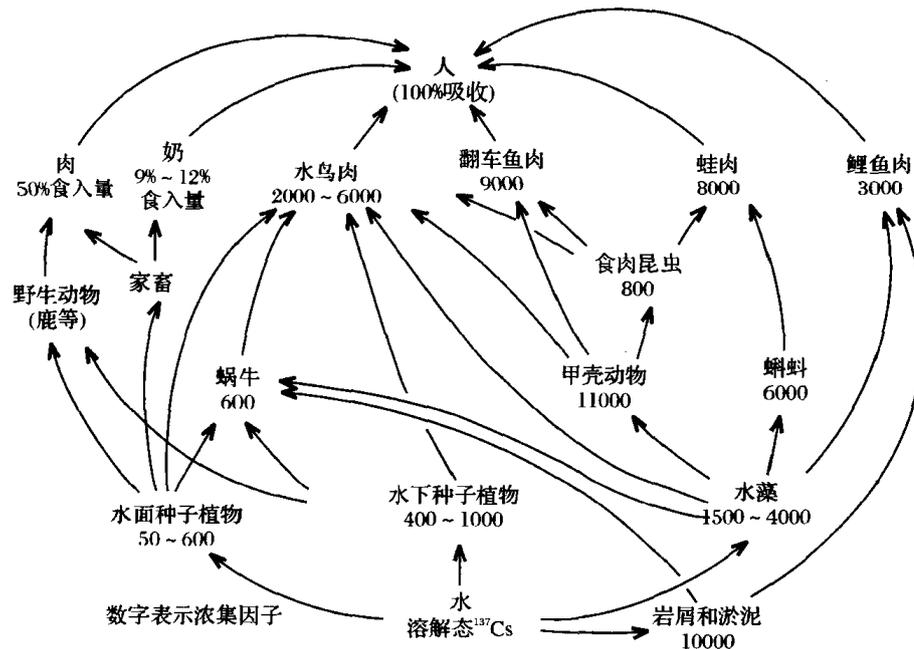


图 7.1 水环境中 ^{137}Cs 向人转移的淡水食物网

水生物的物种结构也不同,水生食物网的结构也会有十分明显的差异。某些水生生物对水生动物排泄沉积物及生物体残骸的分解,可使营养元素和成分重新回到水中,再次被浮游植物所利用,这样,便形成了营养元素和成分以矿物质—生物物质—矿物质的形态变化而在水生生物链(网)中不断循环。

水中与营养元素和成分共存的锌、铁、钴、锰等元素及放射性核素(其中有的是水生物生命过程所必需的,有的与生命过程无关甚至是有毒的)也会程度不同地参与这一水生生物链(网)中的物质循环和转移过程,由此而导致水生物的污染。

水生物向人类提供的水产食品是人类所需蛋白质的重要来源之一。水产食品的放射性污染无疑会对人体健康带来有害的影响。另一方面,水生物无论是回游性的(如鱼类)还是漂浮性的(如浮游动植物),在水体中始终处于迁移运动之中,一旦受到污染,将成为水体放射性污染的输运者和传播者,放射性核素将伴随其向未污染的水域迁移。水生物排泄物的沉积及其残骸中的放射性核素有一部分进入底质中,使其成为水生态系统中污染物的“贮存库”。

7·2·1 水生物对放射性物质的吸收机制

各类水生物摄入、吸收水中放射性核素的途径和机制有很大的差异,这与水生物体的结构、生活习性、摄食方式及水环境条件等诸多因素有关。

藻类是水中最常见的浮游植物,是水生态系统中的初级生产者,处于水生生物链的第一营养级上。它们在摄入矿物质、二氧化碳和水,合成有机生物物质的同时,也能从水中摄取放射性物质。

浮游植物对水中放射性物质的被动摄入是一种不消耗其细胞代谢能的吸收机制,包括吸附、离子交换、扩散、穿透等方式。吸附过程是细胞壁对放射性物质的吸着作用,其中物理吸附一般是可逆的,对不同核素的吸附选择性较差;化学吸附是细胞壁与核素之间藉助于化学键作用的相互吸着,可逆性较差,有一定的吸附选择性;离子交换是发生于细胞间质内的吸附机制;扩散是放射性离子随载体物质一起穿透细胞壁,而后在细胞内与胞浆中的同位素或载体离子之间发生的交换过程;穿透则是无载体的有机放射性物质通过细胞壁上一些微孔进入细胞内的过程。浮游植物的主动摄入是核素在酶的作用下,从细胞的一侧迁移至另一侧,这种过程要消耗一定的能量。无论是被动摄入还是主动摄入的放射性核素,进入细胞以后一部分将被细胞内可溶性物质(胞浆)吸收,一部分可掺入细胞结构成分中,一部分则以自由离子状态存在于胞浆中。

水生动物从水中摄取放射性核素大致有摄食、饮水和体表直接吸收等几种途径,各种途径的相对重要性因其种类不同而异。鱼类和软体动物以摄食为主,海鞘类动物和环节动物以饮水为主,甲壳类动物比较复杂,有的以摄食为主,有的则以饮水为主。毛蚶、贻贝和鲮鱼等水生动物的贝壳和体表对水中某些放射性核素具有一定的吸附、摄入能力。

7·2·2 水生物对放射性物质的蓄积

水生物通过各种途径从水中摄取、吸收放射性核素后,核素将在其体内某些特定的器官、组织中逐渐积累,并在一定的条件下达到平衡。一般用浓集因子(CF)描述水生物对水中放射性核素蓄积能力的大小。

7.2.2.1 水生物吸收、蓄积放射性物质的浓集因子

对于水生动物通过饮水途径从水中摄入、吸收和蓄积放射性核素的过程,式(7.6)中的输入速率 R_{in} 可用下式表示:

$$R_{in} = I_w C_w f_{ut} \quad (7.12)$$

式中,

I_w ——饮水率;

C_w ——水中某种放射性核素的浓度;

f_{ut} ——水生物(全身或某一器官组织)对摄入核素的吸收份额。

据此,核素(蓄积)浓度随时间的变化为

$$C(t) = \frac{I_w C_w f_{ut}}{KM} (1 - e^{-Kt}) \quad (7.13)$$

当吸收、蓄积达到平衡时,

$$C_e = \lim_{t \rightarrow \infty} C(t) = \frac{I_w C_w f_{ut}}{KM} = \frac{I_w C_w f_{ut}}{\lambda_e M} \quad (7.14)$$

通常将水生物(全身或某一器官组织)中核素的平衡浓度与水中核素浓度的比值定义为浓集因子

$$CF = \frac{C_e}{C_w} = \frac{I_w f_{ut}}{\lambda_e M} \quad (7.15)$$

对于其它吸收蓄积途径,也可按类似的方式,采用浓集因子表示水生物对放射性核素吸收、蓄积能力的大小。

估算人通过食用水生物途径对核素的摄入量,应考虑水生物可食器官、组织中核素的蓄积浓度,因此,理论上应采用相应器官组织的 f_{ut} 及 M 值估算其浓集因子。

7.2.2.2 影响水生物蓄积能力的因素

(1) 水生物的特性 严格地说,式(7.15)只是适用于水生动物通过饮水途径摄入、吸收、蓄积放射性核素时浓集因子的理论表达式。如前所述,水生物摄入、吸收放射性核素的途径有好几种,其机制相当复杂,通常采用实验室或野外实地测量的水生物与水中核素浓度的比值作为浓集因子值,以表示某种水生物对某一种核素的蓄积能力。

显然,不同类型的水生物因其摄食习性、栖息小生境及其在水生物链中位置的不同,对核素的蓄积能力会有明显的差异。淡水生态系统中,不同鱼种摄食习性的差异导致其体内 ^{137}Cs 的蓄积浓度可相差3倍,CF值可相差2倍。图7.2所示为淡水生态系统中不同鱼种对 ^{239}Pu 与 ^{240}Pu 、 ^{137}Cs 及 ^{90}Sr 的浓集因子值。从图中可见,由于核素在水中的凝聚、共沉淀和吸附,悬浮物颗粒和沉积物中核素的浓度远比水中为高,因此,以水底沉积物为食料的锯鳕对铀的CF值最高,而食鱼类鱼的CF值最低。

从图7.2还可看出,由于生物对随食物进入体内的核素吸收不完全,处于较高营养级的水生物体内核素的蓄积程度比低营养级水生物为低。

水生物的年龄、形体大小、生理状态等特性对其吸收、蓄积放射性核素的能力也有一定的影响。

(2) 水环境条件

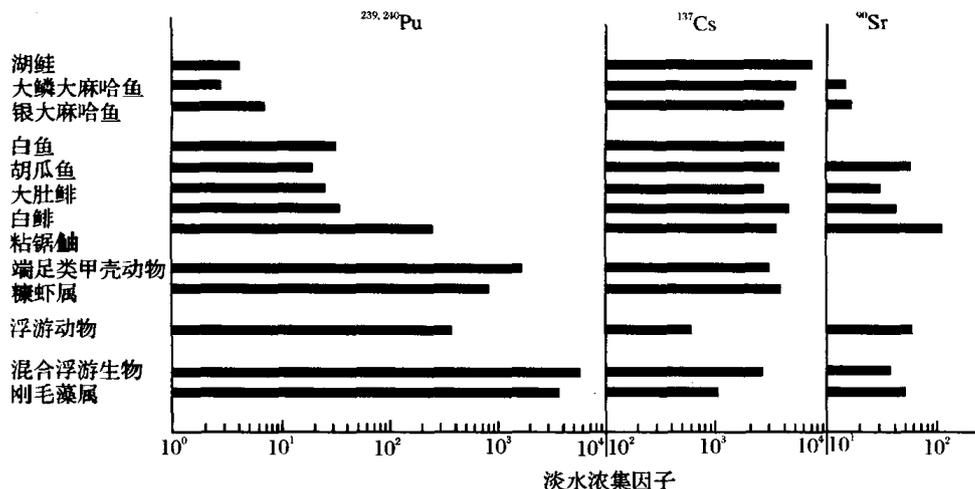


图 7.2 淡水鱼对²³⁹Pu与²⁴⁰Pu、¹³⁷Cs及⁹⁰Sr的浓集因子

1)水中稳定元素的浓度 用浓集因子表示水生物对水中放射性核素的蓄积能力,意味着水生物体内核素的浓度与水中核素浓度成正比,这一假设对水中稳定元素并不适用。例如,鱼骨中钙的含量与水中钙的浓度之间不存在直接相关的关系,鱼自身的生物调节功能通过对吸收及排泄速度的控制,使体内常量稳定元素的浓度基本上保持恒定,而与水中的浓度无关,其对微量放射性核素的蓄积则涉及与其体内稳定元素之间的交换。

一般情况下,水生物对放射性核素和与其化学性质相似的常量稳定元素的吸收量与水中常量元素的浓度正相关,但浓集因子值的大小却与两者在水中的浓度成反比,而且两者的浓集因子值存在明显的差异。由于生物对痕量非生命所需基本元素具有鉴别与排斥能力,加上水生物吸收蓄积过程中短寿命核素的衰变,因此对放射性核素的浓集因子常小于其对稳定元素的浓集因子。例如,鱼对水中¹³⁷Cs的浓集因子(L·kg⁻¹)与水中钾浓度(mg·L⁻¹)之间存在如下的关系

$$CF_{Cs} = 1470[K]^{-0.64} (r = -0.96) \quad (7.16)$$

因此,海洋([K] = 380mg·L⁻¹)、江河入海口([K] = 17mg·L⁻¹)及内陆淡水湖([K] = 0.5mg·L⁻¹)中鱼对¹³⁷Cs的浓集因子分别为 33、240 及 2300。

表 7.2 和表 7.3 所示分别为海洋生物和淡水生物对水中放射性核素的浓集因子值。

表 7.2 海洋生物的浓集因子^[6]

元素	生物种类	范围	均值
Cs	植 物	17~240	51
	软体动物类	3~28	15
	甲壳类	0.5~26	18
	鱼	5~244	48
Sr	植 物	0.2~82	21
	软体动物类	0.1~10	1.7
	甲壳类	0.1~1.1	0.6

续表

元 素	生 物 种 类	范 围	均 值
Mn	鱼	0.1~1.5	0.43
	植 物	2000~20000	5230
	软体动物类	170~150000	22080
	甲壳类	600~7500	2270
Co	鱼	35~1800	363
	植 物	60~1400	553
	软体动物类	1~210	166
	甲壳类	300~4000	1700
Zn	鱼	20~5000	650
	植 物	80~2500	900
	软体动物类	2100~330000	47000
	甲壳类	1700~15000	5300
Fe	鱼	280~15500	3400
	植 物	300~6000	2260
	软体动物类	1000~13000	7600
	甲壳类	1000~4000	2000
I	鱼	600~3000	1800
	植 物	30~6800	1065
	软体动物类	20~20000	5010
	甲壳类	20~48	31
Ce	鱼	3~15	10
	植 物	120~4500	1610
	软体动物类	100~350	240
	甲壳类	5~220	88
K	鱼	0.3~538	99
	植 物	4~31	13
	软体动物类	3.5~10	8
	甲壳类	8~19	12
Ca	鱼	6.7~34	16
	植 物	1.8~31	10
	软体动物类	0.2~112	16.5
	甲壳类	0.5~250	40
Pu	鱼	0.5~7.6	1.9
	植 物	—	1000
	软体动物类	—	286
	鱼	0.1~5	2.55
Rb	植 物	12~42	23
	软体动物类	11~27	17
	甲壳类	8.9~17.3	13
	鱼	7.6~23.8	17
Ru	植 物	15~2000	448
	软体动物类	1~3.6	2.2
	甲壳类	1~100	38
	鱼	0.4~26	6.6
Zr-Nb	植 物	170~2900	1119
	软体动物类	8~166	81
	甲壳类	1~100	51
	鱼	0.05~247	86

表 7.3 淡水生物的浓集因子^[6]

元 素	生物种类	范 围	均 值
Cs	植 物	80~4000	907
	鱼	120~22000	3680
Sr	植 物	80~410	200
	鱼	0.85~90	14
Mn	植 物	1300~600000	150000
	甲壳类	1700~250000	125000
	软体动物类	1100~1600000	~300000
	鱼	0.1~400	81
Co	植 物	300~30000	6760
	软体动物类	300~85000	32408
	鱼	60~3450	1615
Zn	植 物	140~15000	3155
	软体动物类	30~140000	33544
	甲壳类	300~4000	1800
	鱼	10~7600	1744
Fe	植 物	40~45000	6675
	软体动物类	20~80000	21570
	甲壳类	60~1800	930
	鱼	0.1~1225	191
I	植 物	10~200	69
	软体动物类	60~1000	320
	鱼	0.5~25	9
Ce	植 物	200~35000	3180
	软体动物类	400~1500	1100
	甲壳类	300~1000	600
	鱼	2~160	81
K	鱼	340~18000	4400
Ca	植 物	64~720	350
	鱼	0.5~470	70

2) 温度 水温对处于较高营养级的高等水生物的生物活性有较大的影响,水温升高时,水生物对放射性核素的吸收及排泄速率加快,生物半减期 $T_{1/2,b}$ 随之缩短(表 7.4),其对核素的蓄积水平必然有所降低。

表 7.4 水温对²²Na 在鱼体中生物半减期的影响^[1]

鱼 种	年 龄(a)	水 温(℃)	$T_{1/2,b}$ (d)
金 鲈	1~2	20±0.2	7
		8±3	15
斜齿鳊	1~2	20±0.2	7
		8±3	11
虹 鳟	0.5~1	20±0.2	2.2
		14±1	2.5
		7±1	7
鲤 鱼		20±0.2	10
		8±3	25

3) 酸度 水的酸度也会影响水生物对放射性核素的蓄积能力。酸度较高时,水生物的吸收能力明显下降,中性条件下(pH=7),水风信子对¹³⁷Cs的吸收量达到最大值。

有人研究了各种水环境条件对水贝类动物对水中⁶⁵Zn蓄积量的影响,结果表明,水中pH(变化范围为7.5~8.5)及稳定性锌含量对蓄积能力的影响较小,温度及总含盐量的影响则比较明显。含盐量由 25×10^{-12} 增高至 35×10^{-12} ,浓集因子值下降14~24%,水温由20℃上升到25℃,浓集因子值增高6%~53%。

7.2.3 水生物体内放射性核素浓度的估算

7.2.3.1 基本公式

通常采用浓集因子法估算人所食用的水生物体内放射性核素的蓄积浓度:

$$C_{WA} = C_e \times e^{-\lambda_r t_p} = C_w \times CF \times e^{-\lambda_r t_p} \quad (7 \cdot 17)$$

式中,

C_{WA} ——人食用的水生物体内核素的浓度, $Bq \cdot kg^{-1}$;

C_w ——水中的核素浓度, $Bq \cdot L^{-1}$;

CF——浓集因子, $L \cdot kg^{-1}$;

λ_r ——核素衰变常数; d^{-1} ;

t_p ——水生物收获捕捞到被人食用的延迟时间,d。

估算关键人群组平均剂量时,取 $t_p = 1d$,估算集体剂量时,取 $t_p = 10d$ 。

7.2.3.2 浓集因子CF值的选用

用浓集因子法估算水生物体内核素的浓度时,对浓集因子CF值应考虑具体情况慎重选用。

由式(7.13)可知,水生物体内核素的蓄积浓度是随时间逐渐增高的。理论上浓集因子是水生物体内的平衡蓄积浓度与水中浓度之间的比值。水生物与水之间达到平衡所需的时间取决于核素半衰期与生物半减期(或有效半减期)的长短,见式(7.9)。一般情况下,水生物吸收蓄积达到10倍有效半减期后,其体内核素的浓度基本上达到平衡。因此,考虑水生物体内核素浓度达到平衡的程度差异,当水中长寿命核素及与其性质相似的稳定元素以相同的物理化学形态存在时,可采用水生物对稳定元素的浓集因子值近似代表其对核素的平衡浓集因子值。但短寿命核素的平衡浓集因子值则远小于稳定元素的浓集因子。

放射性核素常有选择地蓄积于水生物体内特定的器官组织中。放射性铯及²²⁶Ra主要蓄积于鱼的骨骼中,⁵⁵Fe、⁵⁹Fe蓄积于脾和骨中,⁶⁵Zn蓄积于脾和肝中,鳕鱼的肝常用于制造鱼肝油,其⁶⁵Zn、¹⁴⁰Ba、¹¹⁰Ag^m、⁵⁴Mn及⁶⁰Co的浓度远比肌肉中为高。对于软体动物,核素多蓄积于内脏器官或甲壳中,可食用的肌肉组织中的浓度则很低。因此,剂量估算中采用的浓集因子值应能反映水生物可食器官组织中的核素浓度,按水生物整体的浓集因子值求得的核素浓度对人的摄入量估算会造成很大的偏差。

7.3 放射性物质的陆地生物链转移

7.3.1 通过农作物的转移

植物生长所需要的矿物质大部分是经过根部从土壤中吸收的,因此,土壤的放射性污染水平及其物理化学性质决定了核素在植物中的蓄积程度;另一方面,植物的生长加速了土壤中水分的蒸腾,改变了土壤水的运动,也会在一定程度上影响核素在土壤中的迁移和分布。

农作物的放射性污染是公众通过食物链摄入放射性核素而受到内照射的一个重要途径。如图 7.3 所示,导致农作物污染的机制包括气载流出物与再悬浮物的沉积和表面吸附所导致的外表面污染及农作物通过根、叶、茎、花和果实等部位的吸收摄入所导致的内污染。

气载流出物及再悬浮物质的干、湿沉积等物理过程导致农作物的外表面污染,在气载流出物连续释放的条件下,这是导致蔬菜与牧草受短寿命核素污染的重要机制。由表 7.5 可见,一般情况下,外表面污染在农作物放射性污染中所占的份额极大。

表 7.5 不同条件下叶部沉积对作物钚污染浓度的相对贡献^[1]

作物种类	钚污染浓度(Bq·g ⁻¹ (干))		外表面污染份额(%)
	野 外	温 室	
麦 杆	3.3×10 ⁻³	1.1×10 ⁻⁴	97
豆类植物	1.7×10 ⁻³	2.1×10 ⁻⁴	89
玉 米 叶	1.2×10 ⁻³	4.1×10 ⁻⁵	97

植物根部与其它部位表面上的离子交换反应也会导致外表面污染,特别是受伤的植物根直接从土壤溶液中吸收放射性离子,对于萝卜一类块根植物的污染具有重要的意义。

植物通过根部从土壤中摄入、吸收营养成分的同时,也吸收了土壤溶液中的放射性离子,叶、茎、花对可溶性沉积核素具有相当大的吸收能力,这类生物过程导致农作物的内污染并不遵从一般的离子交换选择性规律。

7.3.1.1 气载放射性核素的沉积

气载放射性流出物开始释放后 t 时刻沉积所致烟羽下风向 (x, y) 点处地面上沉积核素浓度的累积增长速率为该点处同一时刻气载核素的沉积率:

$$\frac{dC_G(x, y, t)}{dt} = W(x, y, t) \quad (7.18)$$

式中,

$C_G(x, y, t)$ —— t 时刻 (x, y) 点处地面的面积污染浓度;

$W(x, y, t)$ ——干、湿沉积所致的核素沉积率。

沉积在地面上的核素可因降雨的沥滤与洗刷、再悬浮、作物的收割或被食草动物食用而得以清除,所有这些生物-物理清除过程可用单一的清除速率常数 λ_n 表示。此外,短寿命核素的衰变也会导致沉积核素活度的降低,考虑到所有这些清除过程,式(7.18)可改写为

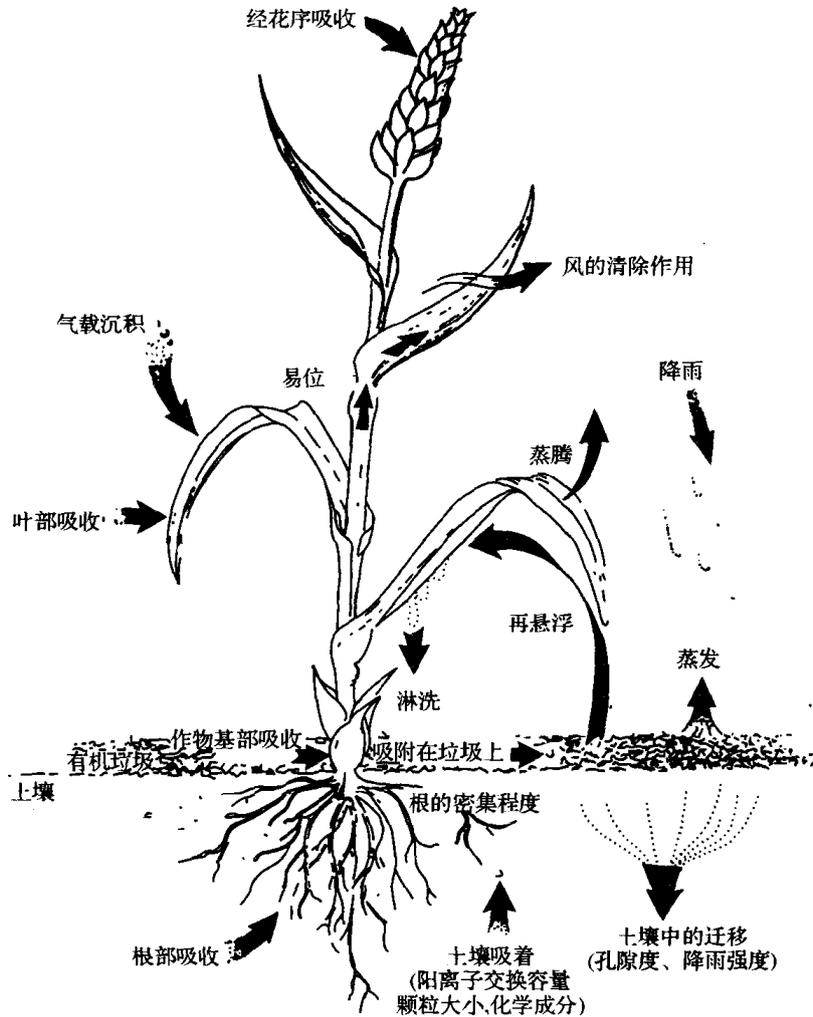


图 7.3 农作物污染的途径

$$\frac{dC_G(x, y, t)}{dt} = W(x, y, t) - (\lambda_r + \lambda_n)C_G(x, y, t) \quad (7 \cdot 19)$$

式中, λ_r 为核素衰变常数; λ_n 为清除速率常数。

在气载流出物连续释放, 各种气候参数保持不变(或取常年平均参数值)的条件下, 有

$$\begin{aligned} W(x, y, t) &= \bar{W}(x, y) \\ C_G(x, y, 0) &= 0 \end{aligned} \quad (7 \cdot 20)$$

故式(7·19)的解为

$$C_G(x, y, t) = \frac{\bar{W}(x, y)}{(\lambda_r + \lambda_n)} [1 - e^{-(\lambda_r + \lambda_n)t}] \quad (7 \cdot 21)$$

长期连续释放条件下, 地面上沉积核素的面积污染浓度最终将趋于平衡:

$$C_G(x, y, \infty) = \frac{\bar{W}(x, y)}{(\lambda_r + \lambda_n)} \quad (7 \cdot 22)$$

其中,

$$\bar{W}(x, y) = \bar{W}_d(x, y) + \bar{W}_w(x, y) \quad (7 \cdot 23)$$

式中,

\bar{W}_d ——按式(4·51)求得的干沉积率, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$;

\bar{W}_w ——按式(4·53)或式(4·54)求得的湿沉积率, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$

对长寿命核素而言, 由于其衰变常数 λ_r 值很小, 地面面积污染浓度主要取决于生物-物理清除速率常数 λ_n ; 对于短寿命核素, 则还受其衰变常数 λ_r 的影响。显然, 在其它条件都相同的情况下, 长寿命核素的平衡沉积浓度比短寿命核素大。

沉积所致人所食用的农作物被放射性核素污染的浓度可按下式估算:

$$C_{pl}(x, y) = \frac{C_G(x, y, t_e) f_R f_{iv}}{Y_p} e^{-\lambda_r t_p} = 8.64 \times 10^4 \frac{\bar{W}(x, y) f_R f_{iv}}{(\lambda_r + \lambda_n) Y_p} \cdot [1 - e^{-(\lambda_r + \lambda_n) t_e}] e^{-\lambda_r t_p} \quad (7 \cdot 24)$$

式中,

$C_{pl}(x, y)$ ——沉积所致烟羽下风向 (x, y) 点处收获的农作物在被人食用时的核素污染浓度, $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$;

f_R ——沉积核素被农作物截留的份额;

f_{iv} ——农作物表面沉积核素向可食部位转移的份额;

Y_p ——农作物单位面积产量, $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2}$;

t_e ——农作物生长期受沉积核素污染的时间, d;

t_p ——农作物由收获到被人食用的延迟时间, d;

8.64×10^4 ——一天内的秒数, $\text{s} \cdot \text{d}^{-1}$ 。

显然, 式(7·24)中 λ_r 及 λ_n 的量纲均应取 d^{-1} 。

环境中各种生物-物理过程导致农作物表面沉积核素的有效清除速率常数可以下式表示:

$$\lambda_n = \lambda_g + \lambda_w + \lambda_p \quad (7 \cdot 25)$$

式中,

λ_g ——农作物生长速率;

λ_w ——天气因素(风雨作用)导致的清除速率;

λ_p ——“作物因子”导致的清除速率。

农作物的早期生长可以指数项 $\exp(\lambda_g t)$ 表示, 由此导致表面沉积核素质量污染浓度相应的降低则可以 $\exp(-\lambda_g t)$ 表示。在较短的时间间隔内, 作物的生长速率也可近似地表示为 $1 + \lambda_g t$, 则相应的“清除率”为 $1 - \lambda_g t$ 。实验表明, 喷洒沉积在农作物表面的镭, 因作物生长导致的“清除”速率常数为 0.026d^{-1} 。

天气因素导致农作物表面沉积核素的清除主要取决于风雨的冲刷与清洗作用。资料表明, 风致清除速率与风速的一次方或二次方成正比, 雨致清除速率则与降雨强度成正比。

作物因子导致表面沉积核素清除的机制还不十分清楚, 一般认为是因核素的挥发及作物表面腊质层脱落等因素而造成的。

表 7.6 所示为估算农作物表面沉积核素比活度时推荐采用的各项参数值。

7.3.1.2 农作物根部从土壤中的吸收

植物生长和再生产需要 16 种元素,除碳、氢、氧由空气直接提供之外,其余 13 种元素都由其根系从土壤中吸收而得,因此,土壤是植物赖以生长的基本物质条件。

表 7.6 农作物表面沉积核素比活度估算中各项参数值^[4]

f_R	$\lambda_n(d^{-1})$	$Y_p(kg \cdot m^{-2})$	$t_c(d)$	$t_p(d)$	f_w
0.5 (谷物上的铯)	0.047 (粒子)	2.0 (蔬菜,鲜重)	60 (蔬菜)	1 (蔬菜,个人) 2 (蔬菜,群体)	1 (叶类蔬菜)
0.2 (粒子)	0.071 (碘)	0.6 (其它作物,鲜重)	90 (其它作物)	30 (其它作物,个人) 183 (0.5a) (其它作物,群体)	0.1 (其它作物)

一般情况下,放射性核素均以稳定同位素的阳离子形态存在于土壤中,因此,植物根系从土壤中吸收营养元素的同时,也能吸收其中的放射性核素。

农作物通过其根系对土壤中各种元素吸收能力的大小常以浓集系数 CR 表示:

$$CR = \frac{\text{单位质量(干重)作物中元素的浓度}}{\text{单位质量(干重)土壤中元素的浓度}} \quad (7 \cdot 26)$$

表 7.7 所示为谷类作物对土壤中水溶性元素的相对浓集本领。

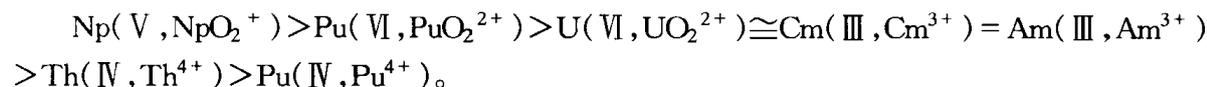
表 7.7 谷类作物对土壤中各种元素的吸收能力^[3]

浓集系数	$10^1 \sim 10^3$	$10^0 \sim 10^2$	$10^{-1} \sim 10^1$	$10^{-2} \sim 10^0$	$< 10^{-2}$
	钾	镁	钡	铯	铷
	铷	钙	镭	铍	钇
	氮	锶	硅	铁	锆
	磷	硼	氟	钒	钽
	硫	硒	碘		钨
	氯	铊	钴		铀
	溴	锰	镍		铯
	钠	锌	铜		钡
	锂	铜			铊
					铋

(1) 影响农作物对土壤中核素吸收的因素

1) 核素的物理化学形态 放射性核素的物理化学形态对其在土壤中的滞留及其被农作物的吸收有很大的影响。一般情况下,核素离子在固、液两相间的分配系数 K_d 值愈大,其与土壤中矿物质颗粒的结合愈牢固,作物对其相对吸收量愈小。

以不同氧化价态存在于土壤中的放射性核素,作物的吸收能力也有不同,锕系元素被作物吸收的大小顺序为:



这一顺序与这些化合物与无机及有机配位体形成络合物的亲和力大小正好相反。

核素的物理形态对作物的吸收能力也有明显的影响。实验表明,经 80~1000℃ 高温热处理后的模拟落下灰核素的水溶性大为降低,作物对其的吸收浓集系数降低近 2 个数量级。

2) 作物种类及核素在作物中的易位 豆科作物(豌豆、大豆、苜蓿、三叶草等)根部有固氮细菌共生,其对土壤中核素的吸收能力远比非豆科作物高。资料表明,豆科作物对锕的吸收能力比禾科作物高一个数量级,对大部分裂变产物及活化产物核素的吸收能力也有明显的差异。

核素在作物内的易位程度是影响水果、谷物等食品中核素污染程度的重要因素。可溶性元素极易由沉积部位向作物其它部位迁移,沉积在羊茅草表面的¹³⁷Cs, 8d 内有 20% 迁移至根部, 14d 后迁移量达 25%; 而难溶性核素则大部分保留在作物原沉积部位,迁移量极小。

不同元素在作物内的易位程度差异极大(表 7.8)。锶、镭等碱土元素的易位能力比铅、钋、钷大,因此,作物从土壤中吸收的锶、镭在叶、谷粒及果实中的相对浓集系数远比后几种元素大。

表 7.8 各种元素在植物中的易位能力^[1]

强易位	中等易位	难易位
钾	锂	硼
钠	钡	铅
铷	铁	钋
铯	锰	钷
镁	锌	钷
钙	钴	
锶	铜	
磷	钼	
硫	镭	
氯		

难易位的元素在作物的果实或谷粒中的浓度比其在叶、茎、根部的浓度低得多,因此,按作物整体或各类作物中元素的平均浓度求得的浓集系数只是可食部位浓集系数在数量级上的指示值,针对某种作物可食部位求得的浓集系数值在内照射剂量估算中则更为精确、实用。目前只有⁹⁰Sr、¹³⁷Cs 及锕系元素有这类浓集系数值可资选用,对其它许多核素还只能采用整体植物的平均浓集系数值。

3) 土壤的性质 土壤的性质对核素在土壤中的滞留及作物的吸收有明显的影响,矿物

颗粒较大的砂质土壤对核素的滞留容量远比具有很大表面积的细小颗粒构成的粘性土壤小。对于强烈吸着于土壤中粘粒矿物表面的¹³⁷Cs,这两类土壤的滞留能力差异尤为明显(表 7.9)。

土壤的酸度(pH)对作物从土壤中吸收核素的能力也有明显的影响。碱性土壤中,核素可形成碳酸盐、羟基化合物、磷酸盐或硫化物等一类不溶性沉淀物,作物对其吸收能力明显降低;酸性土壤中,氢离子可取代土壤颗粒表面其它阳离子,农作物对这类阳离子核素的吸收能力明显增大。在 pH<5.5 的高酸性土壤中,作物可吸收大量的微量元素(特别是铁和锰),以至对其生长产生毒性作用。

4) 化学性质相似的稳定性元素 土壤中存在的与放射性核素化学性质相似的稳定性元素,对农作物吸收放射性核素的本领有很大的影响。当土壤中存在可能与核素离子形成极易穿透作物表面膜层的某种中间产物的“载体”分子时,作物的吸收能力大为提高,这些中间产物被作物吸收后,又能分解出放射性核素离子。在这一过程中,稳定性元素也能与载体分子结合,从而降低作物对核素的吸收能力,这一过程被称为竞争性抑制。反之,土壤中稳定元素浓度较低时,作物对核素的吸收能力则大为增加。

表 7.9 土壤类型对作物吸收核素能力的影响^[1]

核素	土壤	浓 集 系 数(可 食 部 位 的)						
		豆 类	三 叶 草	胡 萝 卜	小 萝 卜	蒿 苳	西 红 柿	小 麦
⁸⁵ Sr	砂土	0.245	4.77	1.85	3.80	1.41	0.306	0.309
	壤土	1.6×10^{-2}	1.43	0.522	1.35	0.490	3.8×10^{-2}	0.110
	粘土	0.106	1.62	0.409	0.815	0.265	0.166	6.5×10^{-2}
¹³⁷ Cs	砂土	4.63×10^{-2}	9.28×10^{-2}	8.30×10^{-2}	3.12×10^{-2}	0.324	8.40×10^{-2}	6.17×10^{-2}
	壤土	1.56×10^{-2}	4.52×10^{-2}	3.94×10^{-2}	4.46×10^{-2}	1.27×10^{-2}	4.59×10^{-4}	6.77×10^{-4}
	粘土	1.37×10^{-2}	4.81×10^{-2}	1.83×10^{-2}		8.31×10^{-2}	1.67×10^{-2}	1.29×10^{-2}
¹⁰⁶ Ru	砂土	1.33×10^{-3}	0.273	4.68×10^{-2}		2.65×10^{-2}	5.92×10^{-2}	
	壤土	8.62×10^{-4}	3.37×10^{-2}	1.07×10^{-2}		1.88×10^{-2}	7.35×10^{-4}	
	粘土							
⁹⁵ Zr-	砂土	1.37×10^{-4}	0.117	2.89×10^{-2}	1.74×10^{-2}	7.17×10^{-3}	3.76×10^{-4}	
⁹⁵ Nb	壤土	3.39×10^{-4}	4.41×10^{-2}	9.26×10^{-2}	6.59×10^{-3}	2.31×10^{-3}	5.42×10^{-4}	
	粘土							
¹⁴⁴ Ce	砂土	6.55×10^{-4}	8.45×10^{-2}	2.36×10^{-2}		4.74×10^{-2}	3.86×10^{-3}	
	壤土	3.15×10^{-4}	4.97×10^{-2}	6.84×10^{-3}	2.33×10^{-3}	1.89×10^{-2}	1.45×10^{-3}	
	粘土	4.69×10^{-5}	4.74×10^{-2}	1.16×10^{-2}		8.27×10^{-3}	1.45×10^{-3}	1.38×10^{-4}

基于上述原因,常采用不同环节中核素与稳定元素浓度比值的变化预测核素在食物链中的迁移,一般将某一环节与前一环节(前体)中两者浓度比的变化称为观察比:

$$O.R. = \frac{(C_{核素}/C_{稳定元素})_{介质}}{(C_{核素}/C_{稳定元素})_{前体}} \quad (7 \cdot 27)$$

观察比又称为鉴别因子。

如测得土壤中稳定元素的浓度 $[A_s]$ 及相应的核素浓度 $[B_s^*]$,并测得作物中稳定元素的浓度 $[A_p]$,则可根据土壤作物之间转移的观察比,求得作物中的核素浓度:

$$[B_p^*] = O.R._{作物/土壤} \times \frac{[A_p]}{[A_s]} [B_s^*] \quad (7 \cdot 28)$$

土壤中核素与稳定元素的浓度比(最常用的为 Sr/Ca 比及 Cs/K 比)常与 O. R. 作物/土壤、O. R. 牛奶/作物及 O. R. 器官/牛奶等观察比结合应用,预测放射性核素经由土壤-牧草-牛奶-人体器官途径向人体转移而造成器官中核素的浓度,以便于内照射剂量估算。

$$[B_{\text{器官}}^*] = (O. R. \text{作物/土壤})(O. R. \text{牛奶/作物})(O. R. \text{器官/牛奶})[A_{\text{器官}}] \frac{[B_s^*]}{[A_s]} \quad (7 \cdot 29)$$

式中,

- [B_{器官}^{*}]——人体器官中核素的浓度;
- [A_{器官}]——人体器官中稳定元素的浓度;
- [B_s^{*}]——土壤中核素的浓度;
- [A_s]——土壤中稳定元素的浓度。

表 7.10 所示为某些作物从土壤中吸收镉、钡、镭的相应于钙浓度的观察比。从表中可见,镉与钙的化学性质最为相似,作物吸收过程中对镉、钙的观察比最大(说明其鉴别能力最差),另外,豆科作物及单根作物的鉴别能力也较差。

表 7.10 某些碱土元素的作物/土壤观察比^[1]

核 素	作 物	观 察 比
镉	谷物 玉米	0.58
	燕麦	0.58
	大麦	0.40~0.45
	荞麦	0.43~0.49
	牧草 苏丹麦	0.46
	雀麦草	0.50
	豆科 三叶草	0.82
	大豆	0.79
	苜蓿	0.82
	豇豆	0.79
		0.37~0.53
钡	阔叶类烟草	0.78
	包菜	0.78
	谷物 大麦	0.02~0.022
钡	荞麦	0.023~0.028
	豆科 豇豆	0.053~0.057
镭	谷物 大麦(杆)	0.028
	牧草 黑麦草	0.051
	阔叶类包菜(叶)	0.03
	根类 胡萝卜(根)	0.12

5) 肥料和化学添加剂 肥料和化学添加剂的施用可影响土壤中稳定元素的浓度及其酸碱度,向酸性土壤中掺加石灰将降低土壤的酸度,而且在碱性条件下形成的 SrCO₃ 溶解度明显降低,因而降低了作物对土壤中镉的吸收能力。

砂土和砂壤土中施加铵盐类氮肥(如硫酸铵肥料),会增加作物对放射性核素的吸收量,硝酸盐类氮肥(硝酸钾或硝酸钙肥料)及磷酸盐肥料会降低土壤的酸度,从而降低作物的吸

收能力,过磷酸盐肥料对土壤的酸度无明显影响,除形成不溶性磷酸盐外,对作物的吸收能力无明显影响。

施用泥炭沼、混合肥、粪肥等有机肥料可改变土壤的离子交换容量、酸碱度及稳定元素含量,从而影响作物对核素的吸收,土壤中有机物含量对镉和甲基碘在土壤中滞留能力的影响尤为明显。

6) 螯合剂 螯合剂是一类有机化合物,可与土壤中的金属离子形成稳定的络合物,从而降低土壤矿物颗粒对这些离子的吸着能力,增加其在土壤中的迁移,使之更易被作物吸收。

某些螯合剂只在 pH 值很高的条件下发生作用,因此,只有当土壤碱性很大的时候,才会明显增加作物的吸收量;反之,EDTA、DTPA 等螯合剂在高酸度条件下,也具有络合作用,对各类土壤中作物的吸收能力都有明显的影响。

低放射性废物处置场内可能掩埋含有螯合剂的某些化学去污剂,一旦渗入周围农田中,可明显增大核素在土壤中的迁移能力,从而增加作物对核素的吸收量。铁、锌、锰等金属螯合剂常用作补充肥料,以补偿作物营养的不足,它们将增加作物对核素的吸收,但这类螯合剂会增加土壤的渗透性,又对作物的吸收具有一定的抑制作用。

7) 核素在土壤中的分布 作物的根系像一棵倒立的树,大部分枝条处于浅表土层中,因此,作物从土壤中吸收的水分与营养元素大多来自表层土,只有当表层土含水量极少时,作物才从深层吸收水分。

土壤中的放射性核素常与水分及其它营养元素一起被作物吸收,因此,作物对土壤中核素的吸收亦主要来自表层土,相对吸收份额随土层深度而逐渐降低。显然,作物从不同深度土层中的相对吸收份额变化与作物类型、土壤性质及地下水位高低等因素有关,此外,核素在土壤中的迁移能力也有明显影响。一般情况下,铯在土壤颗粒表面上结合的牢固程度比铊差,更容易向土壤深层迁移,因此,深层的相对吸收份额较大;反之,作物从土壤中吸收的铯主要来自表层土。

基于这一原因,在发生事故性污染的情况下,将表层污染土壤翻耕至深层,可明显降低农作物对土壤中核素的吸收,这不失为一种有效的防护措施。

(2) 根部吸收所致农作物污染浓度的估算 根据式(7·26)给出的作物从土壤中吸收元素的浓集系数 CR 的定义,根部吸收所致人所食用的农作物中放射性核素污染浓度可按下式估算:

$$C_{p2} = \frac{C_s \times CR}{f_D} \times e^{-\lambda_p t_p} \quad (7 \cdot 30)$$

其中, f_D 为作物可食部位的鲜/干重量比。CR 应采用相应于可食部位的浓集系数值,如无适当的可食部位浓集系数值,则可将按作物整体的浓集系数值乘上恰当的修正因子。 C_s 为作物根深范围内土壤中放射性核素的平均比活度 [$Bq \cdot kg^{-1}$ (干土)]。

$$C_s = \frac{C_G}{d \times \rho_s} \quad (7 \cdot 31)$$

式中,

C_G ——地面上放射性核素的面积污染浓度, $Bq \cdot m^{-2}$;

d ——作物根区深度, m;

ρ_s ——土壤的表观干密度, $\text{kg}(\text{干土}) \cdot \text{m}^{-3}$ 。

初步估算时,式(7.30)可改写为

$$C_{p2} = \frac{C_G \times CR_f}{P} e^{-\lambda_r t_p} \quad (7.32)$$

式中,

CR_f ——相应于作物鲜重的可食部位吸收浓集系数, $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}(\text{鲜重})/\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}(\text{干土})$;

P ——土壤的有效表面密度, $\text{kg}(\text{干土}) \cdot \text{m}^{-2}$ 。

一般情况下, $P = 240 \text{kg}(\text{干土}) \cdot \text{m}^{-2}$, 相应于作物鲜重的可食部位吸收浓集系数 CR_f 值见表 7.11。

表 7.11 农作物可食部位的浓集系数^[4]

$[\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}(\text{鲜重})/\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}(\text{干土})]$

元 素	CR_f	元 素	CR_f
氢	5×10^0	钋	2×10^{-4}
钴	3×10^{-2}	镭	4×10^{-2}
铯	3×10^{-1}	钍	5×10^{-4}
碘	2×10^{-2}	铀	2×10^{-3}
铷	3×10^{-2}	钷	5×10^{-4}
铅	1×10^{-1}		

由式(7.21)可知,在气载放射性核素长期连续释放的条件下,沉积过程导致地面上沉积核素的面积污染浓度 C_G 随时间的推延而逐渐增大,最终趋向平衡。因此,采用式(7.30)或式(7.32)估算农作物根部吸收所致核素污染浓度时,对 C_G 值的选用必须慎重。一般情况下,对短寿命核素,可采用按式(7.22)求得的平衡面积污染浓度;对长寿命核素,可按排放气载流出物的核设施预期运行寿期的一半作为积累时间,按式(7.21)估算相应的 C_G 值。如核电站预期运行寿期为 30a,可取 $t = 15\text{a}$ 代入式(7.21)以求得 $G_G(15)$ 值,用于估算根部吸收所致农作物中核素的污染浓度。

7.3.1.3 灌溉造成的农作物污染

用被放射性核素污染的地面水或地下水灌溉农田会导致农作物的污染,农田灌溉有多种方法,如通过地表垄沟或地下多孔管道散布式灌溉、滴灌、喷灌,水稻种植则常用淹没漫灌。

作物可从灌溉水中直接吸收放射性核素而造成直接污染,水中核素进入土壤后再被作物吸收则为间接污染。土壤对水中核素的滞留取决于不同灌溉方式中土壤与水的接触程度。散布式灌溉时,水中核素多被土壤吸收,对作物造成间接污染,喷灌、滴灌及漫灌时,作物的污染主要来自水的直接污染。

(1) 喷灌导致作物的直接污染 喷灌导致作物的直接污染与湿沉积造成污染的情况相似,在作物生长期长期连续喷灌的情况下,人所食用的作物中核素的污染浓度可按式估算:

$$C_{p3} = \frac{8.64 \times 10^4 \times 1 \times 10^3 C_w I f_R \times f_{iv}}{Y_p (\lambda_r + \lambda_n + KI)} [1 - e^{-(\lambda_r + \lambda_n + KI)t_c}] e^{-\lambda_r t_p} \quad (7.33)$$

式中,

1×10^3 ——立方米与升的换算比, $L \cdot m^{-3}$;

C_w ——水的污染浓度, $Bq \cdot L^{-1}$;

I ——灌溉率, $m^3 \cdot m^{-2} \cdot s^{-1} = m \cdot s^{-1}$;

K ——喷灌水对作物表面核素的清洗率常数, m^{-1} 。

其中, 喷灌水中核素被作物表面的截获率 f_R 应按下式计算:

$$f_R = 1 - mI \quad (7 \cdot 34)$$

式中 m 为水从作物表面的流失率常数 ($s \cdot m^{-1}$)。

(2) 灌溉水导致作物的间接污染 散布式灌溉时, 水中放射性核素先进入土壤中, 而后被作物根部吸收而导致间接污染, 这种情况下, 人所食用的作物中核素污染浓度为

$$C_{p3} = \frac{8.64 \times 10^4 \times 1 \times 10^3 (1 - L_R) I \times CR_f}{P(\lambda_r + \lambda_n + \psi)} e^{-\lambda_r t_p} \quad (7 \cdot 35)$$

式中,

L_R ——径流导致灌溉水的流失份额;

ψ ——水的渗滤导致土壤中核素的耗减常数, s^{-1} 。

当同时考虑气载核素沉积、根部吸收及灌溉所导致的污染时, 人所食用的作物中核素的污染浓度为

$$C_p = C_{p1} + C_{p2} + C_{p3} \quad (7 \cdot 36)$$

7.3.1.4 3H 与 ^{14}C 造成的农作物污染

核设施气载流出物中的 3H 和 ^{14}C 进入环境以后, 在释放点附近迅速和与其性质相当的稳定同位素均匀混合, 3H 与水结合而生成 3HOH , ^{14}C 则转化为 $^{14}CO_2$, 通过食物链途径进入人体。

(1) 农作物中 3H 污染浓度的估算 大气中 3H 造成的农作物中 3H 污染浓度可由下式估算:

$$C_{p,t} = 1 \times 10^3 \bar{\chi} \times 0.75 \times 0.5 / H = 3.75 \times 10^2 \bar{\chi} / H \quad (7 \cdot 37)$$

式中,

$C_{p,t}$ ——农作物中 3H 污染浓度, $Bq \cdot kg^{-1}$;

$\bar{\chi}$ ——空气中 3H 的平均污染浓度, $Bq \cdot m^{-3}$;

H ——空气的绝对湿度, $g \cdot m^{-3}$;

0.5——植物水与空气水 3H 浓度之比值;

0.75——农作物平均含水份额。

(2) 农作物中 ^{14}C 污染浓度的估算 大气中 ^{14}C 造成的农作物中 ^{14}C 污染浓度可由下式估算:

$$C_{p,c} = \bar{\chi} G_n / 0.18 = 5.56 \bar{\chi} G_n \quad (7 \cdot 38)$$

式中,

$C_{p,c}$ ——农作物中 ^{14}C 污染浓度, $Bq \cdot kg^{-1}$;

$\bar{\chi}$ ——空气中 ^{14}C 的平均污染浓度, $Bq \cdot m^{-3}$;

0.18——空气中碳元素的平均浓度, $g \cdot m^{-3}$;

G_n ——农作物中碳元素的含量, $g \cdot kg^{-1}$

7.3.2 通过动物类食品的转移

陆生动物通过摄食牧草或其它植物饲料从环境中摄入放射性污染物质,由此导致人所食用的动物类食品(肉、蛋、奶类食品)的放射性污染,是放射性物质通过生物链向人体转移的另一个重要途径。反之,动物对放射性核素的摄入也在一定程度上影响核素在生态系统中的转移和分布。

7.3.2.1 动物对放射性核素的摄入和滞留

放射性核素由饲料向人所食用的动物类食品的转移涉及动物的新陈代谢过程。图 7.4 所示为描述动物新陈代谢过程的双隔室模式,其中第一隔室表示血液,第二隔室则代表器官组织或可供食用的肉、蛋、奶类食品。动物经食入途径摄入的放射性核素,一部分在胃肠道内被吸收后,经血液循环进入体内有关器官或组织中,并在其中蓄积起来;未被胃肠道吸收的核素则随粪便排出体外。代谢过程又使一部分核素从其蓄积的器官或组织中排出,仍经由血液循环而随尿或乳液排出体外,图中第二隔室中核素输入速率与输出速率之间的差异决定了肉、蛋、奶类食品中核素的活度水平。采用恰当的代谢参数值,对这类模式的方程式求解,可求得放射性核素由饲料向肉、蛋、奶类食品的转移因子,并据以估算这类食品中核素的污染水平。

对于动物通过摄食牧草或其它植物饲料从环境中摄入放射性核素而导致肉、奶、蛋中核素浓度的增长,式(7.6)中的输入速度 R_{in} 可用下式表示:

$$R_{in} = I_F C_F f_i \quad (7.39)$$

式中,

I_F ——动物每日摄食牧草或其它饲料的数量, $kg \cdot d^{-1}$;

C_F ——牧草或其它饲料中核素的污染浓度, $Bq \cdot kg^{-1}$;

f_i ——动物摄入的核素向肉、奶、蛋中转移的份额。

据此,肉、奶、蛋中核素浓度随时间的变化为

$$C(t) = \frac{I_F C_F f_i}{\lambda_e M} (1 - e^{-\lambda_e t}) \quad (7.40)$$

当长期摄入而达到平衡时,

$$C_e = \lim_{t \rightarrow \infty} C(t) = \frac{I_F C_F f_i}{\lambda_e M} = I_F C_F F_A \quad (7.41)$$

式中, $F_A = \frac{f_i}{\lambda_e M}$, 为动物每天摄入的放射性核素出现在每公斤(或每升)肉、蛋、奶中的份额 ($d \cdot kg^{-1}$ 或 $d \cdot L^{-1}$), 又称为放射性核素由饲料向动物类食品的转移因子。

7.3.2.2 影响动物类食品核素污染浓度的因素

(1) 牧草的生长密度 对于野外放牧的牛、羊等动物,牧场上草的生长密度愈大,每天食草所占据的草场面积愈小,摄入沉积在牧草上的放射性核素量愈小,其肉、奶中核素的污

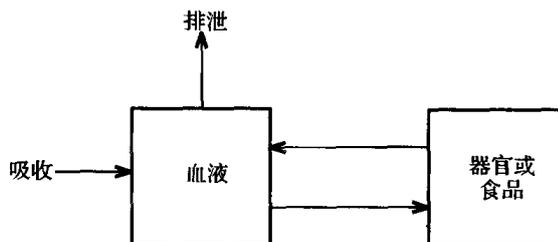


图 7.4 动物代谢的双隔室模式^[1]

染浓度愈低。

(2) 季节 植物生长密度、草料的营养价值及动物的相对代谢速度随季节有明显的变化,其中,温度的差异起着决定性作用。一般情况下,气温愈高,牛奶中各类核素的浓度愈高。

(3) 动物种别 各种动物的体形大小与代谢速率有很大的差异,其对摄入核素的转移因子也有明显的不同。如牛、羊每日摄入相同活度的 ^{131}I 情况下,其向牛奶的转移因子为 $4.2 \times 10^{-3} \text{d} \cdot \text{L}^{-1}$,向羊奶的转移因子则高达 $4.7 \times 10^{-1} \text{d} \cdot \text{L}^{-1}$,其原因在于牛的产奶量($7.5 \sim 14 \text{L} \cdot \text{d}^{-1}$)远比羊($\sim 1.2 \text{L} \cdot \text{d}^{-1}$)高。实际情况下羊的食草量远比牛少,故两种奶中 ^{131}I 的实际浓度差异并不十分明显。

动物的年龄对核素在动物体内的分泌排泄速率也有很明显的影晌。

(4) 耕作方式及稳定元素的摄入 饲料的种类及其耕作方式(肥料的使用和土地的翻耕)对动物的核素摄入量也有明显的影晌,并影响动物类食品中核素浓度。施肥会增大牧草的生长密度,由此降低野外放牧的奶牛对沉积核素的摄入,牛奶的污染水平得以明显的降低。

肥料、饲料及饲料添加剂中的稳定性元素会抑制核素向动物类食品的转移,乳牛每日摄入2g稳定碘,牛奶中放射性碘的浓度可降低50%;牧场施用含钙肥料,牛奶中放射性锶、钙的浓度也可得以明显降低。

(5) 核素的其它摄入途径 动物吸入气载放射性核素,食入草根附着的污染泥土及饮水都会增大其对核素的摄入量和转移量。

(6) 食品加工过程中的核素转移 牛奶常被加工制成各类奶制品,加工过程中核素向二次产品的转移与产品种类和加工方法有很大的关系,鲜奶中的放射性钷几乎全部转移到奶酪中,奶酪中钷的含量比鲜奶高4倍以上。表7.12所示为各类奶制品中 ^{134}Cs 、 ^{85}Sr 、 ^{131}I 的相对浓集倍数。

7.3.2.3 动物类食品核素污染浓度的估算

根据动物每天消耗的饲料量及饲料中核素的比活度,可由下式估算动物类食品中核素的污染浓度:

$$C_A = F_A C_F I_F \exp(-\lambda_r t_F) \quad (7 \cdot 42)$$

式中,

C_A ——动物类食品中核素的比活度或浓度, $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ 或 $\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$;

F_A ——核素由饲料向动物类食品的转移因子, $\text{d} \cdot \text{kg}^{-1}$ 或 $\text{d} \cdot \text{L}^{-1}$

C_F ——饲料中核素的平均比活度, $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ (干重);

I_F ——动物每天消耗的饲料量, kg (干重) $\cdot \text{d}^{-1}$;

λ_r ——核素衰变常数, d^{-1} ;

t_F ——从动物屠宰(或挤奶、产蛋)到动物类食品被人食用之间的间隔,d。

饲料中核素的平均比活度可由下式计算:

$$C_F = f_g f_s C_g + (1 - f_g) C_s + f_g (1 - f_s) C_s \quad (7 \cdot 43)$$

式中,

f_g ——动物每年野外放牧的时间份额;

f_s ——放牧期间动物野外食用鲜牧草的份额；

C_g ——野外鲜牧草中核素的比活度, $Bq \cdot kg^{-1}$ (干重)；

C_s ——贮存干饲料中核素的比活度, $Bq \cdot kg^{-1}$ (干重)。

表 7.13 所示为各种动物的饲料消耗量及人对动物类食品消费延迟时间, 表 7.14 所示为各种元素由饲料向动物类食品的转移因子。

表 7.12 放射性核素从牛奶向奶制品的转移^[1]

奶制品	核素的相对浓集倍数		
	¹³⁴ Cs	⁸⁵ Sr	¹³¹ I
鲜奶酪			
全奶酪	1.3	3.9	3.0
酸发酵奶酪	0.75	0.66	2.2
表层奶酪	1.5	3.8	2.8
酸发酵奶酪	1.4	0.97	2.7
发酵奶酪			
家庭自制奶酪	0.86	4.7	2.3
硬奶酪	0.57	6.6	2.3
压缩奶酪	0.90	6.3	1.7
酪乳	1.0	0.92	0.99
乳脂(24%)	0.87	0.60	0.73
黄油	0.11	0.09	0.36
酪蛋白			
奶酪	2.6	20	4.0
酸	1.2	10.0	3.6

表 7.13 饲料消耗量及人食用的延迟时间^[4]

动物类食品 种类	饲料消耗量 $I_F [kg(干) \cdot d^{-1}]$	饲料份额		水消耗量 ($L \cdot d^{-1}$)	食用延迟 时间 $t_F(d^{(D)})$
		鲜草	干贮草		
肉类					
牛	14	0.80	0.20	55	30(2)
羊	1.5	0.80	0.20	8	30(1)
猪	4.2	0.30	0.70	10	90(1)
家禽	0.12	0.60	0.40	0.3	7(1)
奶					1(1)
蛋					30(10)

① 括号外数字适用于城市居民, 括号内数字适用于农村居民。

表 7.14 各种元素的转移因子 F_A [4]

元 素	蛋 (d·kg ⁻¹)	奶 (d·L ⁻¹)	牛、羊肉 (d·kg ⁻¹)	家禽肉 (d·kg ⁻¹)	猪肉 (d·kg ⁻¹)
H		1.0×10^{-2}	1.2×10^{-2}		1.2×10^{-2}
Co	1.0×10^{-1}	5.0×10^{-4}	1.0×10^{-3}	1.0×10^{-3}	5.0×10^{-3}
Sr	4.0×10^{-1}	1.5×10^{-3}	3.0×10^{-2}	9.0×10^{-4}	7.0×10^{-3}
I	1.6×10^0	1.0×10^{-2}	2.0×10^{-2}	4.0×10^{-3}	9.0×10^{-2}
Cs	5.0×10^{-1}	5.0×10^{-2}	3.0×10^{-2}	4.5×10^0	2.6×10^{-1}
Pb	9.9×10^{-4}	1.0×10^{-5}	9.9×10^{-4}	9.9×10^{-4}	9.9×10^{-4}
Po	9.9×10^{-4}	1.2×10^{-4}	9.9×10^{-4}	9.9×10^{-4}	9.9×10^{-4}
Ra	2.0×10^{-5}	2.0×10^{-4}	9.9×10^{-4}	9.9×10^{-4}	9.9×10^{-4}
Th	2.0×10^{-3}	2.5×10^{-6}	5.0×10^{-3}	4.0×10^{-3}	1.0×10^{-2}
U	3.4×10^{-1}	6.0×10^{-4}	5.0×10^{-3}	1.2×10^{-3}	6.0×10^{-4}
Pu	2.0×10^{-3}	2.5×10^{-3}	5.0×10^{-3}	4.0×10^{-3}	1.0×10^{-2}

参 考 文 献

- 1 J.E.Till et al. Radiological Assessment. A Textbook on Environmental Dose Analysis: NUREG/CR-3332, ORNL-5968, USNRC, 1983
- 2 F.W. 魏切尔等著. 放射生态学——核能与环境, 第二卷. 卜石等译. 北京: 原子能出版社, 1991
- 3 俞誉福编著. 环境放射性概论. 上海: 复旦大学出版社, 1993
- 4 潘自强等. 中国核工业三十年辐射环境质量评价. 北京: 原子能出版社, 1990
- 5 A.S.Szabo. Radioecology and Environmental Protection. Chichester: Ellis Tforwood Ltd, 1993
- 6 章仲侯主编. 放射卫生学. 北京: 原子能出版社, 1985

第三篇 辐射环境管理

第 8 章 辐射防护、核安全和辐射环境管理

高剂量率、大剂量的全身照射或局部组织照射,可对人引起确定性效应,以至导致急性死亡;低剂量率、小剂量的长期照射则可能诱发癌,或造成受照者生殖细胞损伤而产生某些遗传效应。因此,对涉及辐射照射的人类活动(如辐射源及放射性物质的生产和使用,核设施的运行和放射性废物管理),应实施必要的管理和控制。

电离辐射和放射性物质的存在是环境的天然和永久特性,因此,对辐射照射伴有的危险不可能完全消除,只能加以限制。人类活动伴有的辐射危险要为社会所接受,前提条件是人类必须从这类活动中获益,并且,可通过辐射防护和核安全原则的实施,对这些危险加以限制和防止。

国际放射防护委员会(ICRP)第 26 号、60 号出版物和国际原子能机构(IAEA)安全丛书第 115 号(国际电离辐射防护和辐射源安全的基本安全标准)的发表,为辐射防护和核安全建立了完整的体系和原则。依据辐射防护原则控制公众照射,要求对涉及辐射照射的人类活动实施强制性的辐射环境管理。国家应制定必要的法律、法规和条例,设立相应的审管机构,界定各相关方的管理职责,明确法定的审管形式、程序和途径,制定并颁发相应的标准,严格控制和管理源和实践的豁免、放射性废物管理、流出物排放、流出物和环境监测、环境影响评价和事故应急干预。

8.1 辐射防护中使用的量

8.1.1 放射性活度 A

一定量的某种放射性核素的放射性活度 A 的定义为在时间间隔 dt 内这些数量的核素中发生自发核转变的期望数 dN ,即:

$$A = \frac{dN}{dt} \quad (8.1)$$

放射性活度简称为活度,其 SI 单位为 s^{-1} ,专名为贝可(Bq)。

单位体积的气态或液态物质中所含某种放射性核素的活度称为放射性(活度)浓度 C_A ($Bq \cdot m^{-3}$ 或 $Bq \cdot L^{-1}$);单位质量的生物物质或固体物质中所含某种核素的活度称为放射性比活度 \dot{A} ($Bq \cdot g^{-1}$)。

8.1.2 吸收剂量 D

吸收剂量 D 的定义是电离辐射授予质量为 dm 的某一体积元中物质的平均能量 $d\bar{\epsilon}$,即:

$$D = \frac{d\bar{\epsilon}}{dm} \quad (8 \cdot 2)$$

吸收剂量的 SI 单位为 $\text{J} \cdot \text{kg}^{-1}$, 专名为戈瑞(Gy)。

吸收剂量 D 对时间的导数为吸收剂量率:

$$\dot{D} = \frac{dD}{dt} \quad (8 \cdot 3)$$

式中 dD 为 dt 时间间隔内吸收剂量的增量, 吸收剂量率 \dot{D} 的单位为 $\text{Gy} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

8·1·3 器官剂量 D_T

一个器官或组织的平均吸收剂量 D_T 的定义为电离辐射授予一个质量为 m_T 的器官或组织 T 的总能量 ϵ_T , 即:

$$D_T = \frac{\epsilon_T}{m_T} \quad (8 \cdot 4)$$

显然, 器官剂量 D_T 的 SI 单位及专名与吸收剂量 D 相同, 同样, 单位时间内 D_T 的增量为器官剂量率 $\dot{D}_T (\text{Gy} \cdot \text{s}^{-1})$ 。

8·1·4 辐射权重因子 W_R 和器官当量剂量 H_T

由于辐射诱发器官或组织随机性效应的概率与辐射的品质有关, 通常需引入一个权重因数对器官剂量进行修正。不同类型或不同能量的辐射与物质相互作用的性质可用非限定传能线密度 L_a 加以描述:

$$L_a = \frac{dE}{dl} \quad (8 \cdot 5)$$

式中 dE 为带电粒子在物质中穿过 dl 距离所损失的能量。为此, 可按某种形式的 $Q-L$ 关系式, 引入适当的品质因数 Q 对吸收剂量进行修正, 以反映高 LET 成分的辐射引起危害概率较高这一事实。但这种方法存在着许多不确定因素, 因此, 国际放射防护委员会(ICRP) 第 60 号报告推荐以辐射权重因数 W_R (表 8.1) 取代品质因数 Q 。

当量剂量是某个器官或组织 T 中的吸收剂量乘以相关的辐射权重因数。当辐射场由几种不同类型或不同能量的辐射构成时, 器官或组织 T 的平均当量剂量 H_T 为:

$$H_T = \sum_R W_R \cdot D_{T,R} \quad (8 \cdot 6)$$

式中,

H_T ——器官或组织 T 的平均当量剂量, Sv;

$D_{T,R}$ ——辐射 R 在器官 T 中产生的平均吸收剂量, Gy;

W_R ——辐射权重因数。

当量剂量的 SI 单位是 $\text{J} \cdot \text{kg}^{-1}$, 专名为希沃特(Sv), 当量剂量对时间的导数为当量剂量率 $\dot{H}_T (\text{Sv} \cdot \text{s}^{-1})$ 。

8·1·5 组织权重因子 W_T 和全身有效剂量 E

辐射诱发随机性效应的概率与当量剂量之间的关系还因受照器官或组织不同而异, 因

此,有必要再引入一个组织权重因数 W_T 对器官或组织 T 受到的当量剂量 H_T 加以修正,以表示几种不同器官受到不同当量剂量不均匀照射时某种意义上的综合。加权后的当量剂量与这些器官发生随机性效应的总概率可能相关得更好。各器官 W_T 值的选取应使全身受某一均匀当量剂量照射时得到的有效剂量在数值上等于不均匀照射时各器官加权后的当量剂量之和,因此,所有组织权重因数 W_T 的总和应为 1(表 8.2)。

表 8.1 辐射权重因数 W_R ①,①

辐射种类及能量范围②	W_R
光子,所有能量	1
电子及介子,所有能量③	1
中子,<10keV	5
10keV~100keV	10
>100keV~2MeV	20
>2MeV~20MeV	10
>20MeV	5
质子,不是反冲质子,>2MeV	5
α 粒子,裂变碎片,重核	20

①适用于外照射和内照射;

②其它辐射的 W_R 值见文献(1)之附件 A;

③不包括由结合在 DNA 内的核发射的俄歇电子。

表 8.2 组织权重因数 W_T ①,①

器官或组织	W_T
性腺	0.20
红骨髓	0.12
结肠	0.12
肺	0.12
胃	0.12
膀胱	0.05
乳腺	0.05
肝	0.05
食道	0.05
甲状腺	0.05
皮肤	0.01
骨表面	0.01
其余组织或器官	0.05②,③

①按男女人数相等年龄范围极宽的参考人群导出,适用于工作人员、全人口和男女两性;

②其余器官或组织包括肾上腺、脑、上段大肠、小肠、肾、肌肉、胰、脾、胸腺及子宫;

③当其余器官或组织中有一个器官或组织受到的当量剂量超过表列 12 个器官时,该器官或组织取 $W_T = 0.025$,剩下的上列其余器官或组织的平均剂量亦取 $W_T = 0.025$ 。

有效剂量是人体所有器官或组织加权后的当量剂量之和:

$$E = \sum_T H_T W_T \quad (8 \cdot 7)$$

显然, $E = \sum_R W_R \sum_T W_T D_{T,R} = \sum_T W_T \sum_R W_R D_{T,R}$, 其中, $D_{T,R}$ 为辐射 R 在器官或组织 T 中产生的平均吸收剂量。

有效剂量的 SI 单位及专名与当量剂量相同,有效剂量对时间的导数为有效剂量率 $\dot{E}(\text{Sv} \cdot \text{s}^{-1})$ 。

8·1·6 待积当量剂量 $H_T(\tau)$ 和待积有效剂量 $E(\tau)$

外部贯穿辐射产生的全部能量沉积是在组织暴露于该辐射场的同时给出的,然而,进入体内的放射性核素对组织的照射在时间上是分散的,能量沉积随核素的衰变而逐渐给出,其具体的时间分布函数因核素的理化性质及进入人体后的生物动力学行为而异。有鉴于此,将个人单次(或 1a 内)摄入放射性物质后,某一特定器官或组织中的当量剂量率(或年当量剂量)在其后 τ 期间的积分值定义为该器官在 τ 期间的待积当量剂量:

$$H_T(\tau) = \int_{t_0}^{t_0+\tau} \dot{H}_T(t) dt \quad (8 \cdot 8)$$

式中,

$H_T(\tau)$ ——个人单次(或 1a 内)摄入后,器官 T 在其后 τ 期间的待积当量剂量, Sv;

t_0 ——单次摄入或开始连续摄入的时刻;

$\dot{H}_T(t)$ ——单次摄入或开始连续摄入后 t 时刻器官 T 的当量剂量率, Sv·a⁻¹;

τ ——积分期限, a。

未给出积分期限 τ 值时,对成人隐含 50a 的期限,对幼儿隐含 70a 的期限。

器官或组织的待积当量剂量乘以相应的组织权重因子后求和,即为相应于全身的待积有效剂量:

$$E(\tau) = \sum_T W_T H_T(\tau) \quad (8 \cdot 9)$$

显然,待积当量剂量及待积有效剂量属个人相关剂量。

8·1·7 剂量负担 $H_{c,T}$ 和 E_c

由某一事件,诸如单位实践(如 1a 内的实践)对全人口或某一人群造成的人均剂量率在无限长时间内的积分称为剂量负担:

$$H_{c,T} = \int_0^{\infty} \dot{H}_T(t) dt$$

或

$$E_c = \int_0^{\infty} \dot{E}(t) dt \quad (8 \cdot 10)$$

在某种实践以恒定速率无限期持续进行的情况下,无论人群大小有无变化,该人群未来的最大人均年剂量率 \dot{H}_T 或 \dot{E} 将等于 1a 实践造成的剂量负担;如该实践只在某一 τ 时间段内连续进行,未来的最大人均年剂量率将等于相应的截尾剂量负担:

$$H_{c,T}(\tau) = \int_0^{\tau} \dot{H}_T(t) dt$$

或

$$E_c(\tau) = \int_0^{\tau} \dot{E}(t) dt \quad (8 \cdot 11)$$

显然,剂量负担属源相关剂量。

8·1·8 外照射监测中采用的当量剂量

外照射情况下,为将个人监测和环境监测的结果与人体的有效剂量和皮肤的当量剂量联系起来,需采用以下几个特定的当量剂量。

在环境监测中,强贯穿辐射的齐向扩展场在 ICRU 球体内与齐向场方向相对的半径上深度 d 处产生的当量剂量称为周围当量剂量 $H^*(d)$,弱贯穿性辐射的非齐向扩展场在 ICRU 球体内某一方向的半径上深度 d 处产生的当量剂量称为定向当量剂量 $H'(d)$ 。环境监测中,对周围当量剂量取深度 $d = 10\text{mm}$,对定向当量剂量取 $d = 0.07\text{mm}$,因此,这两个当量剂量可分别记作 $H^*(10)$ 及 $H'(0.07)$ 。

在个人监测中,与强贯穿性辐射齐向场相对方向上深度 $d(10\text{mm})$ 处软组织的当量剂量称为深部个人当量剂量 $H_p(d)$ 或 $H_p(10)$,体表指定点下深度 $d(0.07\text{mm})$ 处软组织(皮肤

基层)的当量剂量称为浅表个人当量剂量 $H_s(d)$ 或 $H_s(0.07)$ 。

8·1·9 集体当量剂量 S_T 和集体有效剂量 S_E

一人群体内某指定器官或组织 T 所受的总当量剂量为该人群器官或组织 T 的集体当量剂量:

$$S_T = \int_0^{\infty} H_T \frac{dN}{dH_T} dH_T$$

或

$$S_T = \sum_i \bar{H}_{T,i} \times N_i \quad (8 \cdot 12)$$

式中,

S_T ——人群中器官或组织 T 的集体当量剂量,人·Sv;

$(\frac{dN}{dH_T}) dH_T$ ——人群中器官 T 接受当量剂量在 H_T 及 $H_T + dH_T$ 范围内的人数,人;

$\bar{H}_{T,i}$ ——人群中第 i 亚组的器官 T 平均当量剂量,Sv;

N_i ——第 i 亚组的人数,人。

一人群所受的总有效剂量为该人群的集体有效剂量 S_E (人·Sv):

$$S_E = \int_0^{\infty} E \frac{dN}{dE} dE$$

或

$$S_E = \sum_i \bar{E}_i \times N_i \quad (8 \cdot 13)$$

辐射环境影响评价中,常用 1a 实践所致人群的集体剂量作为评价依据,这时,集体当量剂量及集体有效剂量即以人·Sv·a⁻¹为单位。

8·2 辐射防护的生物学基础

8·2·1 电离辐射的生物效应及危害估计

8·2·1·1 电离辐射的生物效应

有生命机体的基本单元是细胞,细胞核中含有能为细胞增殖和细胞内蛋白质合成提供遗传信息(密码)的脱氧核糖核酸(DNA),其它的细胞结构(细胞器)保证着蛋白质和能量的生产,包绕着细胞器的半渗透性细胞膜则起着调节水、营养物及电解质出入的作用,由此形成的复杂系统在细胞内维持一个相对于细胞外环境的“小环境”。系统平衡的失调会威胁细胞的生命力,但细胞对此具有相应的修复机制和能力(尤其是对核内 DNA 损伤的修复)。

电离辐射可导致细胞中重要生物学结构的电离而使之改变,辐射能量向介质的转移也会引起自由基的诱发等变化而使生物学结构发生改变。DNA 的直接辐射效应为其分子的单链或双链断裂,此外还包括各种重组变化、交联、糖与碱基份额的变化、碱基取代与缺失和染色体畸变。

DNA 分子的单链或双链断裂可因愈合而得以修复,如同时发生单链或双链碱基损伤,亦可因碱基重建而得以修复,但修复过程一旦出错,可在损害始发部位引起基因点突变、基因缺失或重排,由此对细胞产生长期影响,导致细胞死亡或稳定的遗传变化。

辐射引起的细胞死亡本身是一种随机性过程,但只有当照射剂量达到一定的阈值水平,细胞死亡数超过其增殖补充和代偿能力时,才会影响器官或组织的功能,甚至导致机体死亡,因而这类辐射效应称为确定性效应。

辐射引起特定分子 DNA 的变化也可能导致正常细胞的变异,这种变异过程进行时间很长,而且,转化后的细胞具有潜在的无限增殖能力,即使一个细胞的变异也可能导致严重的后果。体细胞变异而引发癌症发展经初始作用、转化阶段、进展阶段而产生隐伏的肿瘤,从照射开始起至查出癌症这一段潜伏期的长短因癌症的种类与开始受照时的年龄而有所不同。

辐射也会引起生殖组织细胞分裂过程中基因组的变化而导致各种有害的遗传损害,可能表现为受照者后代的遗传疾患。

辐射致癌效应及遗传效应的发生概率与剂量的大小有关,但并不存在阈值,效应的严重程度决定于发生的部位而与剂量无关,因而称为随机性效应。

8·2·1·2 危害与危险

电离辐射对人体引起的效应按其进展程度可用不同的术语加以定义。“变化”是指照射后出现对机体有害或无害的形态与功能变化;“损伤”表示辐射已引起一定程度的有害变化,但对受照个人还不一定达到有害的程度;“损害”表示临床可查的有害效应,其中表现于受照者本人的称为躯体效应(确定性效应与致癌效应),表现于受照者后代的称为遗传效应;“危害”则同时反映损害的发生概率、严重程度及从照射到损害显现之间的延迟时间。健康危害概念的使用目的是为了对辐射生物效应进行综合评价,以便为确定剂量限值提供生物学基础,对体内当量剂量分布不同的非均匀照射后果进行比较,以确定组织权重因子,为评定单位有效剂量的货币代价提供定量指标,以便于辐射防护的最优化分析。

某种有害健康效应的发生概率称为“危险”,单位照射剂量引起的效应发生概率则称为“危险系数”或“危险因子”。单位照射剂量引起的癌死亡率、严重遗传效应发生率及非致死癌寿命损失等效死亡的综合危害程度称为随机性效应的标称概率系数。

8·2·1·3 确定性效应及其剂量阈值

全身照射或局部组织照射若能杀死相当数量的细胞,而又不能由活细胞的增殖得以补偿时,即可对人引起确定性效应。由此而导致的细胞丢失可在器官或组织中产生临床上可查出的严重功能性损伤,所观察到的效应的严重程度与受照剂量的大小有关,而且存在剂量阈值,剂量低于阈值时,因细胞丢失不多,不会引起器官或组织可查出的功能损伤。除杀死细胞之外,辐射还可能干扰各种组织的功能而导致损伤,干扰细胞组成的调节引起细胞和组织通透性变化的炎症反应,对处于发育中的器官内细胞的自然迁移造成影响及间接的功能性影响,从而影响确定性效应的严重程度。

表 8.3 所示为某些人体器官组织确定性效应剂量阈值的估计值。

在某种严重情况下,急性辐射照射会导致人的死亡,一般来说,死亡是人体内一个或多个器官或组织细胞严重缺失的结果。根据辐射导致死亡的剂量-响应关系曲线及人类有限的事事故照射及治疗照射的经验预测某一个受照人群死亡率的结果表明,事故照射导致全身

平均吸收剂量大于 1Gy 时,个体死亡数随剂量增大而增加,直到全部死亡。资料表明,急性照射导致以骨髓造血组织损伤为基本病变的急性放射病,使 50% 受照个体在 60d 内死亡所需的剂量(中点剂量 $LD_{50/60}$)为 2.5~5Gy;当剂量大于 5Gy 时,还会产生严重的胃肠道损伤,在并发骨髓损伤的情况下,可在 1~2 月内死亡;当剂量大于 10Gy 时,可能因发生急性肺炎而死亡;剂量更大时,则因神经系统和血管系统效应而在几天后死于休克。

表 8.3 成年人几种重要器官和组织确定性效应剂量阈值的估计值^[1]

组织和效应	阈 值		
	一次短时间照射总剂量 (Sv)	高度分割或延续照射 总剂量(Sv)	多年内每年接受高度分割或 连续照射的年剂量(Sv·a ⁻¹)
睾 丸			
暂时不育	0.15	NA ^①	0.4
永久不育	35~6.0	NA	2.0
卵 巢			
永久不育	2.5~6.0	6.0	>0.2
眼晶体			
可查出混浊	0.5~2.0	5.0	>0.1
视力障碍 (白内障)	2~10	>8	>0.15
骨 髓			
造血功能低下	0.5	NA	>0.4

①NA 表示不适用,因这些效应的阈值取决于剂量率而非总剂量。

辐射引起的确定性效应还包括照射后器官或组织的机能障碍而干扰了其它组织的功能,如唾液腺或内分泌腺分泌减少,脑电图节律或视网膜图像的改变,皮肤早期红斑或皮下水肿及免疫系统机能降低。剂量不太大时,这些短暂效应均是可逆的。

8.2.1.4 受照个人的随机性效应及其危害估计

因辐射等原因而发生变异的体细胞克隆,其发展过程对身体的影响甚为复杂,在这种克隆发展的初始阶段,身体的防御机制可能使之消除或隔离。如做不到这一点,经相当长的潜伏期延迟时,变异细胞将不受抑制地分裂增殖而出现恶性情况——诱发癌症(表 8.4)。一般情况下,不论有无其它因素的作用,辐射诱发的癌与其它原因引起的癌

是无法区分的,而且,即使在小剂量条件下,人体的防御机制也不可能完全有效地抑制变异细胞的分裂和增殖。因此,辐射致癌的剂量-响应关系曲线不存在剂量阈值,与剂量有关的只是恶变的发生概率。某一特定恶变的严重程度则取决于恶变类型及其发生部位,因此,恶变过程可认为是一种随机过程,当然,遗传与生理差异会影响个体对辐射诱发癌症的敏感性。目前普遍认为,除诱发癌与某些器官的良性肿瘤外,辐射对受照个人不会引起其它随机性效应。

表 8.4 辐射诱发恶性肿瘤的潜伏期(a)^[6]

肿瘤类型	最低	平均	全部表现期
白血病	2~4	10	25~30
骨肉瘤	2~4	15	25~30
甲状腺癌 ^①	5~10	20	>40
乳腺癌 ^①	5~15	23	>40
其它实体瘤	10	20~30	>40

① 因受照个人年龄不同而异。

目前关于辐射致癌的剂量-响应关系研究的基本依据是对广岛、长崎核爆受害者长达半个世纪的辐射流行病学观察资料,对接受辐射诊断和治疗的病人及辐射工作人员的观察研究资料。这些资料显示致癌效应发生率与剂量之间存在着明确的统计相关,并且有相应实验数据的支持,但这些资料中个体的受照剂量率及总剂量都比较高。人群受小剂量辐射照射情况下致癌效应的资料来源于核爆炸沉降物(落下灰),武器试验中受照的军人,核设施工作人员,印度、中国、巴西等国高天然辐射本底地区的居民及受 X 射线照射的胎儿和病人。在这类小剂量照射条件下研究辐射致癌效应,可避免从大剂量、高剂量率向小剂量、低剂量率外推而涉及的“剂量-剂量率效能因子”(DDREF),但却涉及样本容量小,缺少合适的对照、非辐射因素的干扰、剂量估算中较大的不确定度以及难以分清的各种社会干扰因素。

目前,最简单的辐射致癌剂量-响应关系是假设当量剂量增量与由之产生的受照器官或组织癌发生概率增量之间的关系为通过原点的直线。但动物实验资料表明,对低 LET 辐射,剂量-响应关系呈现曲线形状,小剂量处直线的斜率比大剂量处为小。这表明,在细胞的修复机制尚能发挥作用的剂量范围内,细胞关键部位很少可能有一个以上的电离事件同时发生,其剂量-响应关系为直线;在较大的剂量和剂量率条件下,2 个或更多个电离事件同时发生将产生较大的效应,因此,有必要在剂量-响应关系中引入一个二次项。剂量更大或在高传能线密度(LET)辐射照射条件下,当细胞死亡成为主要效应时,上述关系曲线的斜率又将减少。

辐射致癌危险相乘预测模式假定,对于多数类型的癌,经过一个危险为零或危险很小的初始时期(最短潜伏期)之后,其超出正常数的死亡率与同一类癌的天然死亡率随时间变化图式是相同的,因此,最短潜伏期以后的全部时期内,辐射诱发某一种癌的死亡率增量与同一种癌的天然死亡率之间呈现简单的正比关系。相加预测模式则假定超出正常数的死亡率与天然死亡率无关,在最短潜伏期之后的全部时期内,死亡率增量在照射后若干年内增高,而后保持恒定或下降。用现有的概率系数按相加模式预估的最终死亡率为相乘模式预估值的一半。

对于多数受照人群进行的辐射致癌剂量-响应关系研究中,一般都采用可归因于照射的超出正常的癌死亡率表示效应发生的概率大小。但是,严格地说,将目前观察到的主要类型癌的治愈率与死亡率合计为辐射致癌发生率表示似乎更为贴切,这就要采用“危害”的概念。

上述各种因素都对辐射致癌危害的估计带来相当大的不确定度,而且危险与危害估计往往是针对特定的人群和照射情景进行的,为便于对不同来源的资料进行对比,ICRP 将危险估计求得的单位有效剂量引起致死性癌的概率称为标称致死概率系数。它适用于所有剂量率下的小剂量照射及低剂量率下的大剂量照射,并对某些竞争性死因引起的死亡概率降低作了必要的修正。ICRP 对处在工作年龄的男女两性参考人群组在大剂量、高剂量率的低 LET 照射条件下求得的终生死亡概率系数(按全部恶性病计)为 $8 \times 10^{-2} \text{Sv}^{-1}$,取剂量-剂量率效能因子 DDREF=2,即得到工作人群的标称死亡概率系数为 $4 \times 10^{-2} \text{Sv}^{-1}$ 。对全体公众(包括儿童),大剂量、高剂量率照射下为 $1 \times 10^{-1} \text{Sv}^{-1}$,小剂量、低剂量率下为 $5 \times 10^{-2} \text{Sv}^{-1}$ 。典型情况下,用相乘模式求得每一种癌的可归因寿命损失为 13~15a,用相加模式求得的约为 20a。计及这一因素,工作人群及全人口相应的非致死性癌寿命损失等效死亡概率系数分别为 $0.8 \times 10^{-2} \text{Sv}^{-1}$ 及 $1.0 \times 10^{-2} \text{Sv}^{-1}$ 。

8.2.1.5 受照者后代的随机性效应及危害估计

辐射引起的受照者生殖细胞损伤(突变或染色体畸变)有可能传递下去,表现为后代的遗传紊乱,严重时可能表现为重大畸形或丧失功能,直至早期死亡,这种随机性效应称为遗传效应。

辐射遗传疾患发生概率的估算方法有加倍剂量法和直接法两种。加倍剂量是使一个世代中产生的遗传突变数等于其自然发生数所需的辐射剂量,依据对小鼠的实验数据、低剂量率照射资料及广岛、长崎受害者的遗传学研究结果,当前一般认为诱发辐射遗传疾患的加倍剂量值为 1Gy,由此,根据某人群中遗传疾患的自然发生率即可估算单位剂量一次照射后全部后代出现遗传疾患的合计危险或持续照射达到平衡时每一代(30a)的危险:

$$R = P \times \text{RMR} \quad (8 \cdot 14)$$

式中,

P ——遗传疾患的自然发生率;

RMR ——单位剂量照射引起的相对危险,加倍剂量的倒数, Gy^{-1} 。

在小剂量、低剂量率照射条件下,按全体公众的性腺剂量计算,产生受照者所有后代严重遗传效应的标称概率系数为 $0.5 \times 10^{-2} \text{Sv}^{-1}$ (不包括多因素效应),其中约 80% 的效应表现为显性及性联突变(X-linked),其中约 15% 发生于最初 2 代中的每一代。对多因素情况,按严重程度加权后求得的概率系数约为 $0.5 \times 10^{-2} \text{Sv}^{-1}$,考虑到工作人群和全人口的年龄分布差异,ICRP 建议对全人口取为 $1.0 \times 10^{-2} \text{Sv}^{-1}$,对工作人群取为 $0.6 \times 10^{-2} \text{Sv}^{-1}$,如进一步对损害发生后的寿命损失加权,相应的值分别为 $1.3 \times 10^{-2} \text{Sv}^{-1}$ 及 $0.8 \times 10^{-2} \text{Sv}^{-1}$ 。

表 8.5 单个器官或组织的标称概率系数(10^{-2}Sv^{-1})^①

器官或组织	致死癌死亡概率		集总危害概率 ^②	
	全人口	工作人群	全人口	工作人群
膀 胱	0.30	0.24	0.29	0.24
骨 髓	0.50	0.40	1.04	0.83
骨 表 面	0.05	0.04	0.07	0.06
乳 腺	0.20	0.16	0.36	0.29
结 肠	0.85	0.68	1.03	0.82
肝	0.15	0.12	0.16	0.13
肺	0.85	0.68	0.80	0.64
食 道	0.30	0.24	0.24	0.19
卵 巢	0.10	0.08	0.15	0.12
皮 肤	0.02	0.02	0.04	0.03
胃	1.10	0.88	1.00	0.80
甲 状 腺	0.08	0.06	0.15	0.12
其余器官或组织	0.50	0.40	0.59	0.47
合 计	5.00	4.00	5.92	4.74
性 腺	1.00	0.60	1.33	0.80
修约后总计			7.3	5.6

①适用于男女人数相等,年龄分布广的人群;

②包括致死性癌死亡及非致死性癌寿命损失等效死亡。

由表 8.5 可见,一般情况下为低剂量率、小剂量的环境辐射照射导致的公众各类随机性

效应的标称危害概率系数(集总危害系数)为 $7.3 \times 10^{-2} \text{Sv}^{-1}$,其中包括致死性癌死亡率、非致死性癌寿命损失等效死亡、严重遗传疾病发生率及寿命损失等效死亡。

8·2·1·6 胎儿出生前受照的效应

妊娠初期当胚胎中细胞数很少且尚未分化时,辐射照射引起损伤的结果多半是使之不能着床或导致不能察觉的胚胎死亡,不会对胎儿产生随机性效应。怀孕后最初3周内,尽管胎儿的中枢神经系统及心脏已开始发育,辐射照射亦不致对活产儿产生确定性效应或随机性效应。受孕后第3周开始,胎儿受到辐射照射可能导致当时正在发育中的器官的畸形,这一确定性效应的剂量阈约为0.1Gy。这一时期胎儿受照也可能引起随机性效应,其表现为活产儿癌症概率增加,其标称死亡概率系数为全人口的几倍。此外,胎儿宫内受照也可能导致活产儿的智商(IQ)下降。

8·2·1·7 低剂量照射的刺激效应

很多实验研究结果表明,低剂量照射可以刺激细胞的某些功能,包括促进细胞增殖及修复,增强免疫能力,调节激素平衡,因而使机体自然防御功能得到提高,这些现象称为辐射刺激效应、兴奋效应或适应性反应。

采用流行病学方法研究人类低剂量照射刺激现象已经积累了大量有意义的资料。对我国广东高本底地区进行的大规模调查结果表明,当地居民的癌症死亡率不但不高于,反而稍低于对照地区居民的癌症死亡率,但差别并不显著;美国一些高本底辐射地区居民的癌症和心脏病死亡率低于对照地区,印度一些城市外照射水平与居民癌症发病率之间的线性回归分析得出的结论为负相关。但是,这些调查都受到各种混杂因素的干扰,还不能据此得到明确的结论。

低剂量照射的刺激效应一旦得以确认,将对辐射防护及辐射危害评价中的某些基本概念发生重大的影响,它将提示人类,低剂量照射,或接近天然本底水平的照射不一定始终有害,可能会对人类带来某种有益后果。

8·2·2 辐射危险及其可接受水平

所有人类活动都伴随一定程度的一种或几种危险,其中某些活动的危险虽未能减小到“可合理达到的尽可能低的水平”,这些活动却可被社会多数人所接受;但人们也逐渐认识到,某些活动的危险(如交通危险)不是非接受不可的,只要能合理做到,这类危险应予以控制和降低;也有某些活动因其所伴随的危险远高于其给社会带来的利益,而且又无望使之降低,因而不能被社会接受。由此可见,确定可接受的危险水平是评价某一人类活动是否可取的重要依据。显然,可接受的危险水平应比个体所接受危险的上限(即不能被接受的危险水平)低若干个数量级,这一限值的确定无疑将取决于当时社会公众一般的生活状况和承受这种危险的紧迫性或愿望(如自愿承受的危险水平)。

英国皇家学会的一份研究报告认为,持续每年承受1%的职业死亡概率将是不可接受的。反之,如处于危险中的人已明白自己面临的危险,衡量了由此可获得的最终利益,并已了解为减小这种危险已做到的各种可合理做到的努力,则0.1%的职业年死亡概率就不能认为是完全不可接受的。当然,年死亡概率只是确定可接受危险水平应考虑的各种属性之一,还必须考虑一些其它有关的因素。

对辐射照射伴随的危险进行定量,并与人类面临的其它危险按同一尺度进行量级比较,

是辐射危害评价和确定最优化的防护水平的基础。一般地说,死亡概率也是危险比较中最具可比性的一项指标。图 8.1 所示为当今人类若干主要活动种类对公众与职业人员产生危险的量级比较。

图 8.2 所示为各种电能生产方式对公众造成急性事故和晚期疾病死亡的危险量级对比。

但是,这种以客观健康危害为指标的危险量级对比并不能反映职业人员和公众受到照射后对可能面临的危险的实际认识。许多情况下,客观危害评价与主观危险认识之间、公众与辐射防护及环境管理审管机构的认识之间会存在巨大的差距。因此,在辐射防护最优化的分析和代价-利益分析中,不仅要考虑客观的防护代价和健康危害代价,还必须考虑公众的心理承受能力,即公众自己看到和认识到的危险(危险感知)。ICRP 将以危险感知为基础而进行的代价-利益分析称为“扩展的代价-利益分析”,这种分析应充分考虑公众与决策者之间对危险控制可能存在的观念冲突,力求通过各种途径进行信息传播,以

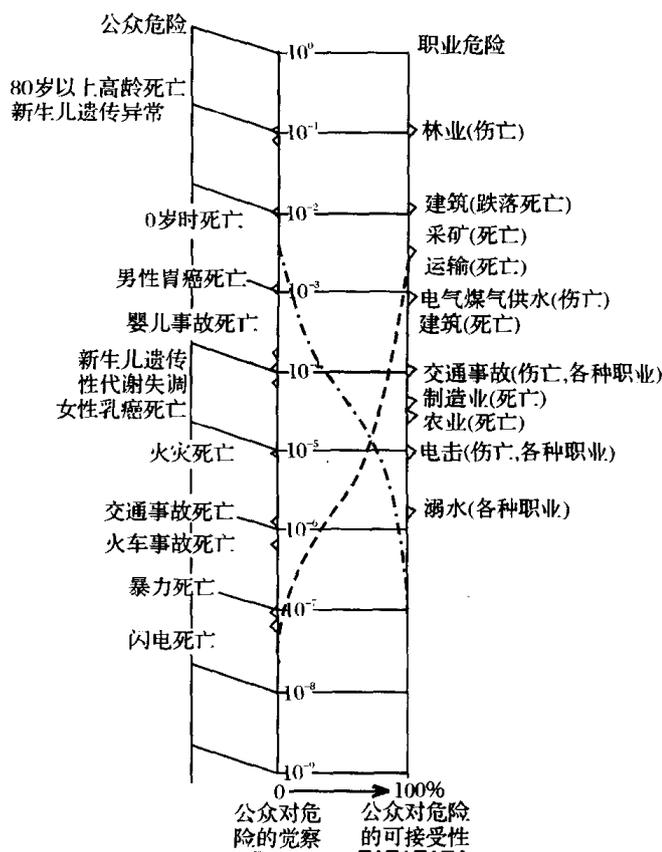


图 8.1 公众和职业活动中的年危险水平^[5]

公众死亡危险

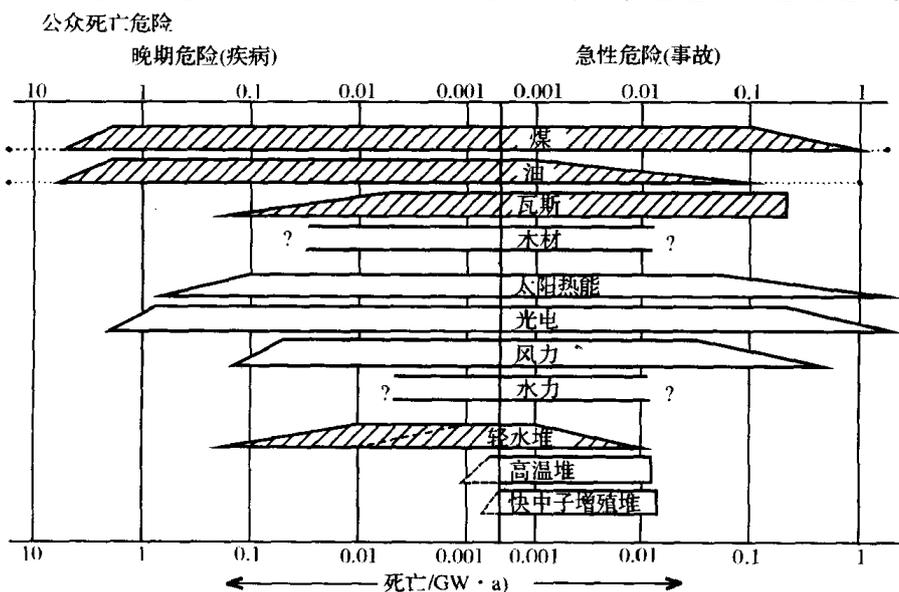


图 8.2 各种电力生产(包括燃料循环全部环节)伴随的公众急性事故及晚期疾病死亡的危险水平^[5]

改变公众的危险感知,用以弥补个人危险感知与客观危险评价之间的差异(感性误差)。

ICRP 第 26 号报告所建议的个人剂量限值是以下述的假设为依据的,即对多数受照人员来说,0.1%的年职业死亡概率是不可接受的危险边缘水平,对公众成员而言,1mSv 的年剂量限值导致年死亡概率的增量约为 1×10^{-5} 。

ICRP 第 60 号报告对不同剂量水平照射的正当性评价和确定个人剂量限值时,倾向于采用可归因的终生死亡概率表示辐射危险(以每希沃特年有效剂量相应的百分概率表示),表 8.6 所示为采用表 8.5 中的辐射所致随机性效应的标称危害概率系数按相乘模式求得的公众接受不同剂量的全身持续均匀照射的致癌危险估计值。

表 8.6 公众接受不同剂量的全身持续均匀照射的致癌危险估计值^①

	年剂量(mSv·a ⁻¹)			
	1	2	3	5
可归因终生癌死亡概率, %	0.40	0.80	1.12	1.99
癌死亡时寿命损失, a	13.4	13.4	13.4	13.5
0 岁时预期寿命损失, 人均年	0.05	0.11	0.16	0.27
癌死亡概率年均贡献, $\times 10^{-6}$	57	115	160	280
70 岁时癌死亡的年超额概率, $\times 10^{-6}$	135	270	405	675
可归因死亡的最大可几年龄, 岁	79	79	79	79
最大相对年死亡概率, %	0.9	1.8	2.7	4.5
最大相对年死亡概率的年龄, 岁	42	42	42	42
老化的最大危险当量值, a	0.2	0.3	0.5	0.8
10% 剂量水平时混合人群的每百万人每年死亡	5	10	15	25

①从 0 岁起终生照射, 设 DDREF=2, 按相乘模式计算, 两性平均的可归因癌症死亡。

8.3 辐射防护和核安全体系

8.3.1 辐射照射类型

天然辐射源对人类群体造成的照射称为天然照射,其产生的剂量远比人类活动产生的附加剂量大。此外,人类群体还受到大气层核试验产生的人工辐射源的照射。

涉及辐射照射的人类活动产生的各种人工辐射源,对人造成了自然条件下原本不存在的辐射照射。其中,辐射工作人员在工作中受到的,并且主要是由工作引起的照射称为职业照射。病人在接受辐射诊断和治疗中受到的照射称为医疗照射。除此之外的所有其它人工辐射源对一般公众造成的照射称为公众照射。

核设施正常运行中产生的辐射照射(包括职业照射和公众照射),尽管有某种程度的不确定性,其照射量的大小是可以预计的,这种可预计的照射称为正常照射。但也可以设想存在某种可能发生,但不肯定会发生的照射,这种照射称为潜在照射。

核设施发生事故时,对工作人员和公众造成的照射称为应急照射(事故照射)。反之,正常情况下环境放射性对公众造成的长期照射称为慢性照射。

8.3.2 照射源项、途径、剂量和效应

人的照射过程可视为由一系列事件和情况所构成的网络,其中每一部分都以源为起点

(这里,源可以是一个物理辐射源,也可以是向环境释放放射性物质的核设施)。同一个源产生的电离辐射或放射性流出物可通过几种不同的途径对人造成照射,反之,多个源也可具有相同的照射途径。个体或人群可能只受到单个源的照射,也可能受到多个源的照射。

辐射照射对人产生健康效应的危害程度与受照剂量的大小有关。受照剂量超过一定的阈值水平,会引起确定性效应;反之,小剂量、低剂量率长期照射诱发随机性效应(致死及非致死性癌和某些遗传效应)的发生率则与受照剂量的大小成正比。

8.3.3 辐射防护的目标

辐射防护的基本目标是将人工辐射源对人造成的健康危害或风险限制在社会可接受的水平以下,即在不过分限制会产生或增加辐射照射的有益的人类活动的基础上,为人类提供适当的防护,使这类有益活动造成的辐射剂量保持在有关的阈值水平以下,以防止确定性效应的发生,并保证采取所有的合理措施,减少随机性效应的发生率。

8.3.4 实践的辐射防护体系

有些人类活动因引入新的照射源、照射途径和受照个人(工作人员或公众)而增加了总的辐射照射,有些则因改变了现有源对人的照射途径和网络而增加了个人的照射剂量或受照人数,这些人类活动称为实践。

ICRP 第 60 号报告和 IAEA 安全丛书第 115 号提出了实践的辐射防护体系,界定了体系涉及的照射类型和应实施防护与安全控制的实践和源,明确提出实施防护安全控制的基本义务、行政管理、辐射防护、技术、安全认证等方面的具体要求。

实践的辐射防护体系涉及的照射类型是由任何相关实践或源产生的职业照射、医疗照射和公众照射,其中包括正常照射和潜在照射。

应实施辐射防护和安全控制的拟议中的和正继续进行中的实践包括辐射源的生产,医学、工业、农业、教育、研究领域涉及或可能涉及辐射或放射性物质照射的任何活动,核能生产和核燃料循环,涉及监管机构规定需加以控制的天然源照射的实践和其它各种实践。

上述实践中涉及的源包括放射性物质和含放射性物质,或会产生辐射的器件、装置和设施。

实践的辐射防护体系的基本防护原则为实践正当性、防护最优化和个人剂量限制。对于公众照射的防护而言,防护原则的应用主要体现在对流出物释放与废物处置的优化控制和对关键人群受照剂量的约束和限制。

8.3.5 干预的辐射防护体系

有些人类活动有意识地通过移去已经存在的照射源,改变照射途径,或减少受照人数,影响既存的网络形式,达到降低总的辐射照射的目的,这类人类活动称为干预。

干预的辐射防护体系涉及的照射类型是要求采取防护行动予以减少或防止的暂时性照射(应急照射)和要求采取补救行动予以减少或防止的慢性照射。

应采取行动加以干预的应急照射情况包括:

- ① 事故和已执行应急计划或应急程序的应急情况;
- ② 监管机构认为正当干预的任何其它暂时性照射情况。

要求采取补救行动的慢性照射情况包括：

- ① 天然照射,如居室和工作场所中氡的照射;
- ② 以往事件中产生的放射性残留物(如事故应急终止后的残留放射性污染)的照射;不受辐射防护体系约束的实践和源产生的放射性残留物的照射;
- ③ 审管机构认为正当干预的任何其它慢性照射情况。

干预的辐射防护体系的基本防护原则为干预的正当性和干预的最优化。对于事故应急照射的防护而言,防护原则的应用主要体现在制定干预水平和导出干预水平,以便根据预测的事故剂量进行干预决策。对于慢性照射的防护而言,则体现在行动水平的确定。

8.3.6 排除和豁免

天然辐射是人类照射的主要来源,对公众造成的照射剂量远比人类活动所产生的附加剂量为大。但是,在许多情况下,这类照射是不可避免的,也不可能通过管理对其实施有效的控制,因此,这类照射通常被排除在辐射防护和辐射环境管理控制体系之外。

某些实践相应的照射剂量和辐射危险增量是微不足道的,对其实施管理控制往往是多余的。对这些实践(必须是正当的)的最优化管理措施很可能是允许实践及其涉及的源豁免于辐射防护和辐射环境管理体系的控制。

8.3.7 潜在照射的防护——核安全

潜在照射是指某些不一定发生又可能发生的照射,它来源于一系列具有概率性质的事件或事件序列的发生。潜在照射的防护是实践的辐射防护体系的一个组成部分,但有时也可能导致需要干预。

减少潜在照射的措施包括预防和减缓两个方面。预防是减少可能造成或增加辐射照射的事件或事件序列的发生概率;减缓是一旦发生了这类事件,限制和减少总的辐射照射。

保证辐射源的安全(对核设施即意味着核安全),预防事件或事件序列的发生,是潜在照射防护的基础,在这一意义上,潜在照射的防护实质上是辐射防护和核安全的交接点。

ICRP 对潜在照射提出的防护原则为实践正当性、防护最优化和个人危险限制和约束。国际核委会咨询组(INSAG)对核安全提出的原则涉及安全的主要责任、安全文化素养、纵深防御和优化管理。

8.4 辐射防护和核安全基本原则

8.4.1 实践的防护原则

对某一实践是否值得而进行决策时,应在实践可能带来的利益与其伴随的代价和不利因素之间进行权衡。在实践的正当性得以确认以后,还应对其施行最优化的控制或调整,使之对个体及社会给出可合理实现的最大净利益。决策过程不仅要考虑对全社会的利弊权衡,也要注意保护个人(包括工作人员和公众成员),为防止因利益与危害在全民中分配不同而造成严重不公,辐射防护必须对个人(包括其后代)的受照射剂量加以限制。

8.4.1.1 实践正当性

考虑了各种社会经济和其它相关因素后,一种实践对社会及受照个人带来的利益应足以弥补其可能引起的危害,该实践才能认为是正当的,否则该实践或实践中的源不能得以授证。

实践正当性评价中,辐射危害无疑应列入总的危害中加以考虑。此外,总的危害中还包括其它危害及实践涉及的代价。

实践正当性评价首先体现在从若干可能的方案中摒弃利小于弊的方案。此外,还体现在用一种新的实践替代现有实践时进行的利弊权衡。显然,方案选择和利弊权衡过程通常越出了辐射防护的范畴。

8·4·1·2 辐射防护最优化

辐射防护最优化是实践防护体系中一项最重要的原则。根据这一原则的要求,实践正当性得以确认以后,应考虑以尽可能低的代价降低其对个人与公众造成的辐射危险。总的目标是在考虑了经济和社会因素之后,确保个人剂量的大小,受照人数和不一定受到又可能受到的照射(潜在照射),全部保持在可合理达到的尽可能低的水平。

对实践导致的公众正常照射的控制,可在源、环境途径及个人所构成的网络上任何一点处采取行动。多数情况下,对源的控制可以影响与该源有关的所有途径和个人,获得最大的效果,所需代价最低,带来的混乱也最小;相反,对环境和个人采取干预行动一般都带有强制性,会对社会带来许多现实的、甚至难以预见的不良影响,所需代价相当大,此外,干预行动只能影响个别途径和个人,其效果也是有限的。因此,对公众照射的控制应以对源的控制为基础。

在实践正常进行的情况下,对源的控制意味着通过流出物排放控制,使公众成员受照剂量满足个人剂量限制和约束的法定要求,还应对流出物排放水平及个人受照剂量实施最优化控制。

代价-利益分析是最优化评价中最常用的方法,与实践有关的代价和利益之间的关系可用下式表示:

$$B = V - (P + X + Y) \quad (8 \cdot 15)$$

式中, B 为实践带来的总的净利益, V 为毛利益, P 为与辐射防护无关的基本生产代价, X 为达到相应防护水平(如个人剂量水平或流出物排放水平)所需的代价(防护代价), Y 为与防护水平相应的健康危害代价。

如认为毛利益 V 和生产代价 P 与辐射防护无关,那么,为获得最大的净利益,应使 $X + Y$ 之和为最小。由此可见,代价-利益分析的核心是寻求使辐射防护代价和辐射危害代价之和为最小的辐射防护方案。

8·4·1·3 个人剂量限制和约束

采用代价-利益分析确定了最优化的流出物排放水平和公众防护水平后,应估算这一水平下相应的公众受照剂量(集体剂量和关键人群组平均年有效剂量),确保满足个人剂量限制和约束的法定要求。

ICRP 第 60 号报告对公众成员个人有效剂量提出的主限值为 1mSv(相当于除氡以外的天然本底照射水平)。考虑到剂量限制应有必要的灵活性,特殊情况下,在终生平均年有效剂量不超过 1mSv 的前提下,如连续 5a 之内年均剂量不超过 1mSv,其中单独 1a 内的最大年有效剂量可适当放宽(表 8.7)。

表 8.7 ICRP 建议的个人剂量限值^[1,5]

剂量项目	60 号报告 ^①		26 号报告	
	职业	公众	职业	公众
年有效剂量	规定的 5a 内 平均 20mSv ^②	1mSv ^③	50mSv	终生平均 1mSv·a ⁻¹ , 1a 中 5mSv
年当量剂量				
眼晶体	150mSv	15mSv	300mSv	50mSv
皮肤 ^④	500mSv	50mSv	500mSv	50mSv
手、足	500mSv	-	-	-

①指规定期间内接受的外照射剂量与同一期间因摄入产生的年待积剂量之和；

②另规定任何单独 1a 不超过 50mSv；

③特殊情况下，如连续 5a 内年均不超过 1mSv，允许单独 1a 内适当放宽；

④为防止皮肤的确定性效应，应给出局部照射的附加限值。

与职业照射一样，对公众眼晶体和皮肤照射也建立了相应的当量剂量限值。考虑到公众受照总时间比职业照射长，不同受照人群之间的敏感性差异比职业人群更悬殊，其当量剂量限值比职业照射低，对皮肤为 $50\text{mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ ，眼晶体为 $15\text{mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ (表 8.7)。

年有效剂量 1mSv 相当的致癌危险估计值见表 8.6。

应当指出，ICRP 提出的公众成员个人剂量限值适用于对个人受到的各种现实及可能的实践和源导致的总剂量的控制(个人相关剂量控制)。为满足这一控制要求，单个实践或源导致的公众成员年有效剂量应按相应的个人剂量约束值加以控制(源相关个人剂量控制)，以确保个人从所有相关实践和源受到的平均年有效剂量之和不超过个人剂量主限值。

显然，个人剂量约束值是核设施工程设计、运行和退役过程中公众照射防护的基础，IAEA 对核电厂等大型核设施提出的公众成员个人年有效剂量约束值为 0.25mSv 。

集体剂量也是对实践所致公众照射最优化分析中常用的一项剂量指标，然而其大小不仅决定于个人剂量，还与人口的变动等众多复杂因素有关。因此，目前还未规定对集体剂量的限值和约束值。

8.4.2 干预的防护原则

事故应急作为潜在照射的来源之一，应在实践的防护体系中予以考虑，但应急照射一旦发生，则可能需要实施干预。

需要通过干预降低公众照射的应急照射及慢性照射的情况下，源、照射途径与受照个人都已存在。多数情况下，干预行动无法施用于源，只能施用于环境途径与受照个人。显然，对环境和公众个人行为实施干预，总包含某些不利因素，因此，应在利大于弊的意义上判断干预的正当性；然后，对干预方式、规模和持续时间谋求最优化，使之给出最大的净利益。

8.4.2.1 干预正当性

干预中实施的每一种防护行动或补救行动，其减少公众受照剂量带来的利益应足以抵偿相应的代价和各种不利后果。

干预的代价除包括可用金钱衡量的代价外，还包括可能带来的非放射学危险和严重的社会影响，有时可能对公众造成精神创伤。因此，干预正当性判断中的利弊权衡必须十分谨

慎。

公众照射接近或预期接近急性照射的剂量行动水平或慢性照射的剂量率行动水平时,任何情况下,任何防护行动或补救行动都是正当的。显然,事故应急干预中,应按剂量行动水平确定各种防护措施干预水平及导出干预水平的上限值;慢性照射干预中,应按剂量率行动水平确定(补救)行动水平的上限值。

事故导致公众应急照射剂量低于某一水平(如个人年有效剂量限值),慢性照射导致公众受照射剂量率低于某一水平,干预往往是不正当的。因此,应急照射情况下,通常将放宽后的个人年有效剂量限值(5mSv)作为干预水平下限值。

8.4.2.2 干预最优化

事故导致公众的预期剂量处于某种防护措施相应的干预水平上、下限值之间时,应对该措施因降低剂量、减少辐射危害可获得的利益与其相应的危害进行最优化分析,确定最佳的应急干预方案,谋求干预方式、规模和持续时间的总体上的最优化。

居室中的氡对公众造成的慢性照射已日益得到关注。对何时要求或建议对已建居室采取补救行动,不仅取决于照射剂量率水平,也取决于行动的可能规模,涉及集团和个人的经济问题,也可能对目前通行的建筑实践造成很大的改变,对建筑结构和公众生活条件产生难以预见的影响,对此必须谨慎从事。

8.4.3 潜在照射防护及核安全基本原则

如前所述,潜在照射防护是辐射防护和核安全的交接点。

8.4.3.1 潜在照射的防护原则

对拟议中实践的正当性评价中,应充分考虑潜在照射所伴有的危害。实践开始进行后获得的运行经验可能改变对潜在照射危害的估计,此时需对该实践的正当性重新进行评价。

对潜在照射的防护方案不改变来自实践的其它照射时,潜在危害概念的使用,不会增加实践防护最优化评价的复杂性。当正常照射与潜在照射相互依存时,应综合考虑这两种照射情况,对实践谋求总体上的最优化。

实践正当性及防护最优化评价中,对正常照射可用个人剂量取代健康危害。当需考虑潜在照射时,有必要将危害的概念加以扩展,使之进一步包括可能产生潜在照射而造成危害的事件(或事件序列)的发生概率,旨在达到这一目的的环境风险评价方法尚在发展之中。风险评价中采用总的个人可归因癌死亡概率作为健康危害风险指标,这一概率的定义为可能导致个人受某一剂量水平潜在照射的某一事件(或事件序列)的发生概率与一旦受到这一剂量水平照射时个人终生可归因条件性死亡概率的乘积,作为这一事件(或事件序列)所致个人危险的度量。从这一考虑出发,对潜在照射的防护应以个人危险限值(或约束值)取代个人剂量限值(或约束值)。

由于个人危险中包括了事件(或事件序列)的发生概率,因此,在采用相同的危险限值情况下,发生概率极小而产生剂量很高的严重事件一旦发生,产生有害效应的概率可能高于对正常照射(实际照射)采用的标称概率,其严重程度可能导致需要干预,甚至产生严重的确定性效应。因此,与高发生概率、低剂量事件相比,对这类低发生概率、高剂量的潜在照射事件,可能应取较低的个人危险限值(或约束值)。

8.4.3.2 核安全的基本原则

贯彻核安全基本原则,采取必要的措施确保辐射源的安全,预防可能产生潜在照射的事件(或事件序列)的发生,是核设施防护与安全的基础。

(1) 安全的主要责任人 从事涉及辐射源的某种实践的受权法人(核设施营运者)必须承担防护与安全的主要责任,必须负责提出保证源的防护与安全所需的技术措施和组织措施。即使指定他人执行与这些职责有关的行动和任务,受权法人仍应对此负主要责任。

实践和源的任何改动,必须向审管机构通报。当改动具有重要的防护或安全意义时,必须得到专门授证。

(2) 安全文化素养 核设施营运者及全体人员应注意培养和保持安全文化素养。一切制度和程序必须把确保公众和工作人员的防护与安全放在高于一切的地位;采取一切必要的措施及时查清和纠正影响防护和安全的问题;明确界定有关人员对防护与安全各自应负之责;全体人员都要接受适当的培训,具有相应的资格;规定防护与安全决策的明确权限;建立各层次中和各层次间防护和安全信息的交流渠道。

(3) 纵深防御 按辐射源涉及的潜在照射的大小和可能性,采用相应的确保防护与安全的多层纵深防御系统。当某一防御层失效时,可由下一防御层予以补偿或纠正。力求防止事故的发生,减轻事故发生可能造成的后果,一旦发生事故,及时将源恢复到安全状态。

(4) 优质管理 通过优质管理和良好的工程质量,优化的质量保证,对人员的培训和资格审查,对安全的综合评价和注意以往经验和教训的反馈,确保防护和安全。

8.5 辐射环境管理体系和标准

8.5.1 ISO 14000 环境管理体系

在推行 ISO 9000 质量管理与质量保证标准,实施质量管理标准化获得成功的启示下,国际标准化组织(ISO)于 1993 年成立了环境管理标准化技术委员会(ISO/TC 207),将环境管理纳入了国际标准化轨道,ISO 14000 环境管理系列标准即应运而生。

ISO 14000 包括 7 个方面的内容:环境管理体系(EMS)、环境审核(EA)、环境标志(EL)、环境行为评价(EPE)、生命周期评估(LCA)、术语与定义(T&D)和产品标准中的环境指标。1996 年,ISO 14000 系列标准首先颁发了 5 个标准,我国随即采纳作为国家环境管理标准(GB/T 24000 系列)。

ISO 14001《环境管理体系——规范及使用指南》规定了对环境管理体系的要求,该体系适用于任何类型与规模的组织^①,并适用于各种地理、文化和社会条件,体系的结构框架和运行模式如图 8.3 所示。这一体系可供组织据以建立一套程序,用来设定环境管理方针(政策)和目标,同时,用以评定管理程序的有效性。

8.5.1.1 总的要求

组织应建立并保持一个环境管理体系,这有助于提高效能,明确职责,以改进组织的环

^① 具有自身职能及行政管理的公司、集团公司、商行、企事业单位、政府机构或社团,或上述单位的部分或结合体,无论其是否法人团体,是国营或私营,均称为“组织”。

境表现(行为)^①。

环境管理体系的基本功能是：

- ①制定环境方针(政策)；
- ②确定组织过去、当前及拟议中的活动、产品及服务中涉及的环境因素^②，并判定其已经产生或可能产生的环境影响；
- ③确定有关的法律、法规、标准、导则对环境管理体系的要求；
- ④确定优先事项，建立适当的环境管理目标和指标；
- ⑤建立组织机构，制订实施方案，以贯彻环境管理方针，实现环境管理目标和指标；
- ⑥进行体系的筹划、控制、监测、纠正干预活动、审核与评审，确保遵循环境方针，保持体系的合理运作；
- ⑦根据客观条件的变化随时作出修正。

8.5.1.2 环境方针(政策)的制定

环境方针是最高管理者对遵循有关的环境法律要求和确实保证持续改进环境管理所作的公开承诺，是组织建立环境目标和指标的基础，是实施和改进环境管理体系的指针和依据，并据以确保环境表现的保持和改进。环境方针应力求做到定义明确，易于理解，应形成文件，并作定期的评审和修订，以适应客观条件和有关信息的变化。

8.5.1.3 体系的筹划

(1) 重要环境因素的确定 组织在建立环境管理体系前，应通过评审的方式确定自身的环境状况，考虑各种环境因素，以此作为建立环境管理体系的基础。

评审范围涉及有关的法律、法规要求，重要环境因素的确定，对现行环境管理活动及程序的审查，对来自以往事件调查的反馈意见及对其的评价。

确定重要环境因素应考虑正常运行、关闭、启用、退役、可合理预见的异常事件及事故应急状态，其中包括流出物的释放、废物管理、土地污染、原材料与自然资源的使用及当地其它环境及社会问题。

(2) 法律及法规要求 应确立适用于本组织各项活动、产品及服务中各有关环境因素的法律及法规要求，并建立可靠的获取渠道，其中包括有关的国际公约和国际组织的建议，国家的有关法律、法规、标准、导则和行业规范，与有关机构签订的协定等。

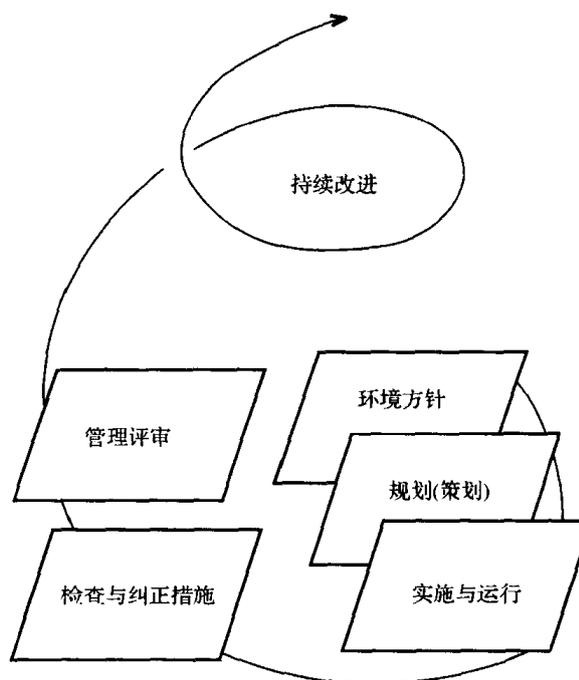


图 8.3 ISO 14001 环境管理体系(EMS)模式^[4]

① 组织依据其环境方针、目标和指标，通过环境管理体系的运作，对自身的环境因素进行控制而取得的可度量的结果，称为“环境表现(行为)”。

② 一个组织的活动、产品及服务中能与环境发生相互作用(产生环境影响)的要素，称为“环境因素”。

(3) 管理目标和指标 应根据法律法规要求、重要环境因素、可供选用的技术方案、财务资金状况、运行经营要求和各相关方的观点,针对本组织内部每一有关职能部门和层次,建立并保持明确的环境管理目标和指标。目标应具体,指标应可度量,必要时应包括预防应急措施,并形成文件。

目标和指标应符合环境方针的总体要求,并包括对污染预防所作的承诺。

(4) 环境管理方案 环境管理方案是成功实施环境管理体系功能的关键要素,它应规定组织内部有关职能部门和层次为实现目标和指标应负的职责、方法和时间表,确定具体的负责人员及对新开展的活动的必要的环境评审。

8.5.1.4 体系的实施和运作

(1) 组织机构和职责 环境管理体系的成功实施需要组织内全体人员的共同承诺与通力协同,环境管理的职责不仅限于环境职能部门,运行管理及人事等部门都负有相应的责任。职能部门作为最高管理者的代表在组织内行使环境管理的职能和权力,应妥善、明确地设定关键职岗,并落实到人。

(2) 培训、意识和能力 本职工作可能对环境产生重大影响的所有人员都应经过相应的培训,使每一有关职能部门与层次的人员都意识到按环境方针、程序和体系的要求行使职责的重要性,本职工作中实际存在的和潜在的重大环境影响,改进本职工作将带来的环境效益,本人在执行环境方针、程序和实现环境管理目标要求中的作用和职责,偏离规定运行程序的潜在后果。

(3) 信息和文件管理 应确保与环境因素和环境管理体系有关的信息在组织内部的交流和与外部相关方的联络(接收、形成文件和答复)。

应以书面或电子形式建立对有关文件、内部标准、运行程序和现场应急计划的有效管理,以适应实施环境管理体系的要求。

(4) 运行控制 应根据环境方针、目标和指标,确定与重要环境因素有关的运行和活动,并制定相应的控制计划,确保其在规定的条件下运行。

(5) 应急响应和准备 应确定潜在的事故或紧急情况,作出必要的准备和响应,以预防或减少可能伴随的环境影响。应急准备和响应程序应定期演习,事故或紧急情况发生后应进行评审和修订。

8.5.1.5 检查和纠正措施

(1) 监控和测量 对可能具有重大环境影响的各项运行和活动,其关键的特性应进行例行监控和测量,其中包括对环境表现、有关的运行控制对环境目标和指标的符合情况进行跟踪测量的记录。监控和测量文件应妥善保存,以供定期评审之需要。

(2) 纠正干预和预防措施 对已发现的不符合环境管理方针、目标和指标要求的运行和活动,应分析原因,确定并采取必要的纠正干预措施,并在此基础上对原有的控制措施作必要的修改,并应有必要的记录。

(3) 记录 各种记录应作妥善的标识、保持与处置,其重点是环境管理体系实施和运作所必需的记录和有关环境目标和措施实现程度的记录。

(4) 审核 应定期审核组织自身的环境管理体系,审核内容和程序涉及审核活动、区域和频度,实施和管理审核活动的职责,审核结果的通报,对审核人员的能力要求和审核方法。

8.5.1.6 管理评审

组织的最高管理者对环境管理体系应进行定期评审,对环境管理方针、目标和程序的评审应由其原先负责制定的职能部门和层次承担,评审结果、结论和建议应形成文件,以便采取必要的改进措施。

8.5.2 辐射环境管理的目标和原则

作为环境管理中一个重要的领域,辐射环境管理应遵循 ISO 14000 环境管理系列标准所提出的总的要求、管理体系的结构框架和运作要素,建立不同层次的辐射环境管理体系。应根据环境辐射的特点,确定辐射环境管理的目标和原则。

8.5.2.1 辐射环境管理的目标

本底辐射和放射性物质的存在是环境的天然与永久的特性,因此,对环境的辐射照射及其危害只能加以限制,而不能完全予以消除。除本底辐射照射之外,某些人类活动会增加公众的辐射照射或受照的可能性,社会接受这类活动所增加的辐射所伴有的危险,前提条件是必须从中获益。然而,对于这些活动所伴有的辐射危险,必须通过辐射环境管理,实施辐射安全标准加以限制和防止。

实践的正常实行肯定会产生某些辐射照射,一般情况下,其照射量大小是可以预计的,对这类可预计的“正常照射”的控制方法是限制所产生的剂量的大小;对于有可能发生,但不能肯定事实上一定会发生的“潜在照射”,控制方法是限制其发生概率,如果真的发生了这类照射,则采取干预措施,限制可能产生的照射剂量的大小。

鉴于此,辐射环境管理的目标可作如下的表述:保护环境,保护公众的健康,将环境辐射对公众及其后代造成的辐射照射及健康危害降低到可合理达到的尽可能低的水平。

8.5.2.2 辐射环境管理的原则

依据上述辐射环境管理目标和电离辐射防护及辐射源安全的基本原则,辐射环境管理应遵循以下几项原则。

(1) 保护公众健康的原则 辐射环境管理应确保对公众健康提供社会可接受水平的保护,这意味着必须采取有效的措施,对公众照射加以控制。

这一原则应用于实践,要求妥善安全地管理放射性废物,严格控制流出物的释放,并特别注意公众各种可能的照射途径,通过辐射环境影响评价,确定公众的受照剂量,确保其保持在公众剂量限值(或约束值)和考虑了经济和社会因素之后可合理达到的尽可能低的水平以下。实践对公众健康的辐射危害及其它危害相应的代价与实践本身代价之和应低于实践所带来的利益,而且,应力求使辐射环境管理代价和相应的危害代价两者之和达到最低水平。

这一原则应用于干预,个人剂量限制和约束的原则就不再适用。这种情况下,可推导出具有指导意义的剂量干预水平,当公众的预期剂量超过干预水平时,则应采取必要的干预行动,降低公众的受照剂量。对于干预行动也应在利大于弊的原则下判断其正当性,并针对其方式、规模和持续时间谋求最优化,使之给出最大的净利益。

(2) 保护环境的原则 辐射环境管理应确保对环境提供社会可接受水平的保护。

放射性废物管理最理想的措施是使其所含的放射性核素浓集并加以封隔,完全杜绝其在环境中的稀释和弥散。但是,在一定的条件下,气载及液体流出物在获得审管机构认可后将在许可限值范围内排入环境,或在低于清洁解控水平的条件下免于控制或重复利用。对

此,必须有严格的安全控制措施,采用合适的环境迁移模式和参数,通过环境影响评价确定环境对废物中核素的可接受量(环境容量),并根据核设施的具体情况进一步确定许可排放量。

非放射性物质的排放也应按照有关的环境标准严加控制,各类废物管理设施应与主体工程同时设计、同时施工、同时投入运行。要充分考虑实践对人以外其它物种的辐射影响及对天然资源(土地、森林、地面水、地下水及矿藏)的未来利用可能产生的不利影响。

(3) 跨国界保护的原则 辐射环境管理应考虑本国的核实践对其它国家公众的健康和环境可能造成的影响,使之至少不超过本国法律所许可的水平,这是评价辐射环境管理是否符合正当性及最优化原则的一项重要准则。

对于放射性核素跨国界的正常或潜在释放,来源国应与邻国及可能受影响的其它国家签订必要的协定,及时传递信息,必要时应进行协调并采取补救行动。

应严格控制放射性废物的国际贸易、越境处理和处置。一个国家只有在具有健全的管理法制和管理体系,充分可靠的技术、设施和专业人员,并在本国政府认可和必要的国际监督条件下,方可接受其它国家的放射性废物加以回收利用、处理或处置。

(4) 保护后代的原则 辐射环境管理应确保对后代的预期健康影响不大于当代人可接受的水平,不给后代遗留过大的管理责任及负担。

实践的实行与其后果的显现可能相隔很长的年代,这意味着目前实践的受益虽被当代人所享有,但其伴有的辐射危害及相应的代价中,有相当一部分却要由相隔许多代后的公众来承担,辐射环境管理应充分考虑这种形式的利益与代价之间分配的不公。高放射性废物处置设施及非3级退役而长期封闭的核设施对后代具有潜在照射的危险,其预期健康影响的评价有很大的不确定性,目前的原则是这种影响不应大于当前的可接受水平,这意味着现行的公众照射剂量限值同样适用于对后代公众照射的控制。

辐射环境管理本身可能持续涉及好几代人的一段相当长的历史时期,作为目前实践的主要获益者,当代人应承担最主要的管理责任。但有些管理责任不可避免地将留给后代承担,当代人应为之创造必要的条件,开发并完善放射性废物管理、核设施退役、事故应急补救行动所需的技术,建立相应的管理体系,制定周密的管理计划,建造必要的设施,实行有效的控制,提供长期可靠的资金支持体制。

(5) 依法管理的原则 国家应根据本国的政治经济体制,核实践的类型、规模及远近期规划,建立与辐射环境管理相关的目标、战略、法律框架和管理体系,制定必要的法律、法规、标准和导则,建立或指定相对独立的管理机构,明确各相关方的管理职责。

(6) 污染源控制的原则 污染源控制是环境管理和控制公众照射的基础,只有在污染源控制失效时,才采取干预行动,对环境放射性污染及受照射的公众成员施加控制。

污染源控制的基础是严格执行辐射源和实践的豁免原则;采取必要的措施控制放射性废物的产生,将其活度、体积保持在实际可以达到的尽可能低的水平;对所产生的废物则应妥善安全地处置,确保其与环境长期有效的隔离;严格控制气载及液体流出物的释放。

(7) 辐射源安全的原则 核设施在整个运行寿期内及退役后的安全,是实现良好的辐射环境管理的根本保证,其选址、设计、建造、投产、运行、退役及废物处置库的最终封闭都应优先考虑安全要求,采取必要的质量保证措施,防止事故的发生,尽量减小事故一旦发生可能造成的后果,整个过程中都应同时考虑对公众健康和环境的保护。

8.5.3 管理体系和审管控制

8.5.3.1 辐射环境管理体系的基础结构

国家通过包括审管机构在内的一个管理体系的运作,实施强制性的辐射环境管理。此外,国家应提供某些必不可少的,但已超出了受权法人(核设施营运者)职责或能力范围的辐射防护与安全服务或某些干预。

国家应为辐射环境管理体系的运作建立必要的基础结构,其中包括法律、法规和条例;受权对按法律要求应受控制的活动行使审批、检查职能,强行实施法律法规要求的审管机构;足够的资源和相当数量的受过培训的专业人才。国家基础结构还必须提供超越受权法人的法定职责范围的着重于社会事务的管理方法和手段。例如,国家主管部门应为一般环境中的辐射监测、放射性废物的处置和干预准备(特别是可能导致公众受到严重照射的事故应急干预)作出相应的安排,负责控制没有其它组织负责管理的辐射源,建立相应的手段,向公众和新闻媒介及时通报辐射环境管理的有关事宜和管理程序。

8.5.3.2 审管机构的职责

为了进行有效的辐射环境管理,国家应建立或指定一个(或几个分担不同审管职责的)审管机构。审管机构必须拥有充分的权力和足够的资源,并应独立于被审管的实践、核设施及其主管政府部门或机构,使之作为安全主管部门能保持其判断和决策的独立性。

审管体制的类型与被审管的实践和源的规模、复杂程度、安全含义及本国的审管传统等多种因素有关,执行审管任务的机制也可能不同。审管机构本身应具有足够数量的专家,否则就应建立必要的专家顾问咨询机制和机构。

审管机构的职责包括:

①强制执行有关辐射环境管理的法律和法规,建立严格的审管程序,制订发布相应的规章、标准和导则;

②履行审管职能,对从事会引起或可能引起公众照射的实践的申请书进行评价,对法律规定必须遵守某些特殊要求的任何实践和源进行授证,否决不符合辐射环境管理要求的任何实践的申请;

③实施定期检查,必要时强行实施一切可能采取的行动,切实保证一切实践和源都符合有关法律、法规和标准的要求,直至中止、撤消不合要求的实践和设施的运行许可证;

④要求各相关方发展安全文化,其中包括工作人员、管理部门、管理人员和组织的安全及环境保护意识和承诺,对所有人员(包括最高管理者)对安全和环境保护有关职责履行情况的究查。

8.5.3.3 核设施营运者的职责

负责核设施营运的注册者或许可证持有者是对辐射环境管理负主要责任的主要方,其相关的职责为:

①确立符合辐射环境管理要求的防护和安全目标,建立本单位相应的辐射环境管理体系,明确有关机构的分工与职责;

②制定、实施与实践和干预有关危险的性质和程度相适应的、符合环境管理要求的防护和安全纲要,并形成文件。该纲要内容应包括为达到管理目标所需措施的正确实施和资源的提供渠道,对有关措施和资源渠道的定期审查和核实,对可能出现的措施的失效和资源的

短缺所采取的纠正及预防措施,各相关方之间咨询、合作的安排,关于各有关部门与个人履行职责情况的记录保存;

③应允许由审管机构正式授权的代表对其受证从事的实践进行相应的检查,并查阅有关辐射环境管理的记录档案;

④本单位内出现违反管理要求的情况时,应及时调查违规行为的详情、原因和后果,采取相应的纠正、预防措施,并及时、如实地向审管机构通报。

8.5.3.4 审管形式

(1) 通知 涉及某种实践中诸如源的开采、水冶、处理、设计、制造、建造、装配、采购、进口、出口、销售、借出、租用、接收、选址、定位、调试、持有、使用、运行、维护、检修、转移、退役、拆卸、运输、贮存、处置等的各种活动,只要这类实践或源产生的照射未被豁免或排除,从事这些活动的有关法人都应向审管机构提交关于这类活动意图的通知书。

(2) 申请注册和授证 负责营运任何辐照装置、放射性矿物开采和水冶设施、放射性物质处理装置、核设施或放射性废物管理设施的法人,或负责从事审管机构尚未明确是否必须注册的任何源的应用的法人,都必须向审管机构申请注册,以获得许可证形式的授证。申请授证者必须向审管机构呈送支持这种申请所必需的一切相关资料;在获得授证之前,不得擅自从事上述任何活动;对实践和源所伴有的公众照射的性质、剂量水平和可能性进行估计,并采取相应的防护措施;如照射可能性大于审管机构规定的某一水平,即应进行安全评价和环境影响评价,作为申请书的一部分呈交审管机构。

已得到授权的法人必须负责提出和实施本单位辐射环境管理所需的技术和组织措施,即使指定他人代行管理职能,受证法人仍是负主要责任的主要方。营运者对已受证的实践或源作任何更改,都必须另行申请专门授证。

(3) 排除和豁免 根据审管机构的规定,某些情况(如大部分天然照射)可完全排除在辐射环境管理的审管范围之外,对某些实践或源的豁免则应遵照辐射源和实践的豁免管理原则,向审管机构申报并得到认可后方可实施。

8.5.3.5 审管程序和途径

申请注册和授证是辐射环境管理最高的审管形式,其审管程序和途径最为完备,其中包括对安全分析和环境影响报告书的评审、现场视察、检查和经验反馈,以及执法行动等。

在核工程建设的选址阶段,主要审查选址阶段的环境影响报告书、场址对核设施的影响和应急可行性分析、燃料和废物运输的可行性分析;在设计阶段,主要审查初步安全分析报告、设计阶段环境影响报告书和质量保证大纲;在申请试运行许可证阶段,主要审查最终安全分析报告,试运行阶段环境影响报告书、应急计划与准备、技术规范书等。

安全分析报告和环境影响报告书是独立完整的文件,都随工程建设的进展逐步深化,应根据各阶段评审活动中积累的经验逐步改进其编写内容。

现场视察、检查、经验反馈和执法行动的意义在于确认现场的安全防护是否偏离发放许可证时所批准的条件,并发现新问题,一旦查出严重的违规情况,则采取相应的执法行动,以维护审管制度的严肃性。

8.5.4 辐射环境管理标准

8.5.4.1 电离辐射防护与辐射源安全标准体系

国际原子能机构(IAEA)1988年发表的INSAC-3报告完整而系统地提出了世界范围内核电厂设计和运行的安全目标和原则,这些目标和原则虽是针对核电厂的,但也适用于其它核设施。此后,ICRP于1990年发表了第60号报告,对辐射防护的基本原则、体系和剂量限制制度提出了一整套新的建议。以这两个报告为基础,IAEA等6个有关国际权威机构于1994年推出了新的“国际电离辐射防护和辐射源安全的基本安全标准”。几乎与此同时,ISO自1996年起又陆续推出了ISO 14000环境管理系列标准。以上一系列文件的发表,提出了不少新的概念和变化,使辐射防护和辐射源安全的体系更趋完善,将环境管理纳入了国际标准化轨道。显然,辐射环境管理标准是辐射防护和辐射源安全标准体系中重要的组成部分,同时,也应妥善、恰当地与环境管理及其它有关领域中的标准体系接轨。

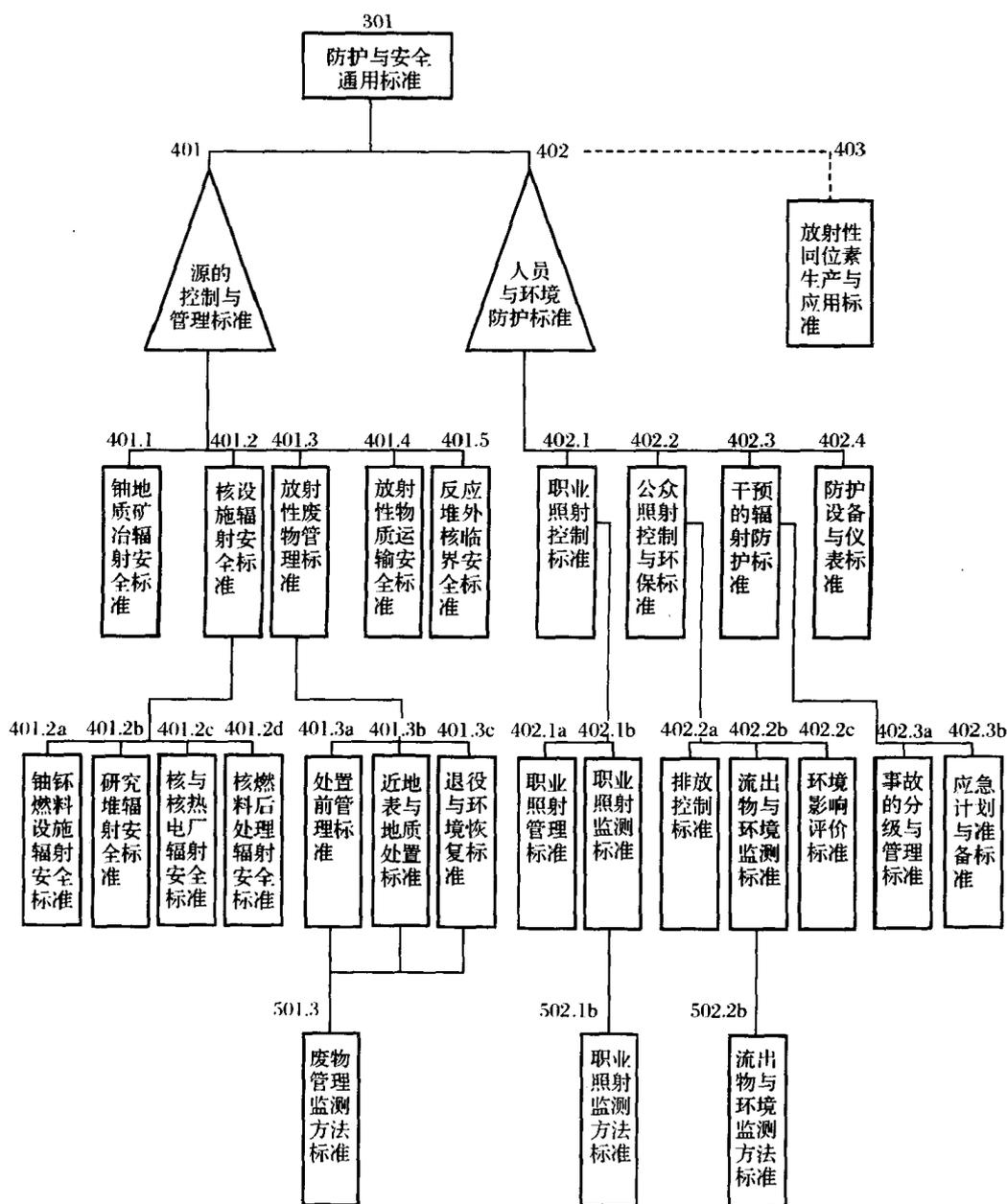


图 8.4 辐射防护与辐射源安全标准基本体系框图^[8]

根据 ICRP 关于采用个人剂量限值和以对源的控制为基础对公众照射实施控制和管理的原则,辐射防护和辐射源安全标准体系分为两大部分。第一部分(401)是有关源的控制和管理标准,其中包括铀地质与矿冶辐射安全标准(401.1)、核设施辐射安全标准(401.2)、放射性废物管理标准(401.3)、放射性物质安全运输标准(401.4)和反应堆外核临界安全标准(401.5)等 5 个门类;另一部分(402)是有关人员与环境辐射管理标准,其中包括职业照射控制标准(402.1)、公众照射控制与环境保护标准(402.2)、干预的辐射防护标准(402.3)和防护设备与仪表标准(402.4)等 4 个门类。这 9 个门类中的某些门类,又根据涉及的管理控制对象的特点和性质,进一步分为若干更具体的子门类(图 8.4),以进一步体现各单项标准的适用对象,使整个标准体系更为科学和合理。表 8.8 列出与辐射环境管理有关的某些重要的单项标准名录。

表 8.8 涉及辐射环境管理的辐射防护及核安全标准一览^[8]

序号与门类	标准名称
301 防护与安全通用标准	1. 电离辐射防护和辐射源安全的基本安全标准
401 源的控制与管理标准	1. 辐射源和实践的豁免管理原则 2. 固体材料中放射性核素的清洁解控水平 3. 放射性流出物排放限制规定 4. 辐射防护原则对潜在照射源的应用——危险约束值
401.1 铀地质矿冶辐射安全标准	1. 铀矿地质放射防护和环境保护规定 2. 铀矿冶辐射防护规定 3. 铀矿堆浸、地浸环境保护技术规定 4. 铀、钍矿冶放射性废物安全管理技术规定 5. 铀、钍矿冶废物管理设施的选址、设计、建造和运行 6. 铀、钍矿冶废物管理设施的运行和运行后监测、监督和维护 7. 铀、钍矿冶废物管理的安全评价
401.2 核设施辐射安全标准	1. 核设施的安全原则
401.2a 铀、钍燃料设施辐射安全标准	1. 铀加工及燃料制造设施辐射防护规定 2. 铀加工及燃料制造设施放射性废物管理系统设计技术规定 3. 用于评价燃料制造厂核临界事故潜在照射后果的假定
401.2b 研究堆辐射安全标准	1. 研究堆辐射防护规定 2. 研究堆流出物控制系统设计与监督准则
401.2c 核电厂与核热电厂辐射安全标准	1. 压水堆核电厂辐射防护规定 2. 压水堆核电厂放射性固体废物处理系统技术规定 3. 压水堆核电厂放射性废液处理系统技术规定 4. 压水堆核电厂放射性废气处理系统技术规定 5. 核电厂低、中水平放射性固体废物暂时贮存技术规定 6. 核热电厂辐射防护规定
401.2d 核燃料后处理厂辐射安全标准	1. 核燃料后处理厂辐射防护规定 2. 核燃料后处理厂高放固体材料操作和贮存设施设计准则 3. 核燃料后处理厂退役的设计规定 4. 核燃料后处理厂放射性废物管理系统技术规定 5. 用于评估核燃料后处理厂核临界事故潜在照射后果的假定
401.3 放射性废物管理标准	1. 放射性废物管理规定 2. 放射性废物的分类 3. 放射性废物安全管理的质量保证
401.3a 处置前管理标准	(共 22 项标准)
401.3b 近地表及地质处置标准	(共 16 项标准)

续表

序号与门类	标准名称
401.3c 退役与环境恢复标准	(共 13 项标准)
501.3 废物管理监测方法标准	(共 11 项标准)
401.4 放射性物质运输安全标准	1. 放射性物质安全运输规定 2. 放射性物质运输包装质量保证 3. 放射性物质运输货包表面辐射水平的测量 4. 铀矿石和铀化合物的安全运输规定
401.5 反应堆外核临界安全标准	(共 14 项标准)
402.2 公众照射控制与环境保护标准	1. 限制放射性物质释放的源相关限值的确定与应用准则 2. 核燃料循环放射性流出物归一化排放量管理限值 3. 核电厂环境辐射防护规定 4. 铀矿冶放射性流出物排放控制规定 5. 铀加工与核燃料制造设施放射性流出物排放控制规定 6. 核燃料后处理厂放射性流出物排放控制规定
402.2a 排放控制标准	1. 限制放射性物质释放的源相关限值的确定与应用准则 2. 核燃料循环放射性流出物归一化排放量管理限值 3. 核电厂环境辐射防护规定 4. 铀矿冶放射性流出物排放控制规定 5. 铀加工与核燃料制造设施放射性流出物排放控制规定 6. 核燃料后处理厂放射性流出物排放控制规定
402.2b 流出物与环境监测标准	1. 环境核辐射监测规定 2. 核设施流出物监测的一般规定 3. 核电厂环境辐射监测规定 4. 铀矿冶环境辐射监测规定 5. 铀加工及核燃料制造设施流出物放射性活度监测规定 6. 核燃料后处理厂流出物及环境辐射监测规定 7. 生产堆退役环境和流出物监测规定 8. 低中水平放射性废物近地表处置场环境辐射监测一般要求
402.2c 环境影响评价标准	1. 核设施环境影响评价一般规定 2. 压水堆核电厂运行工况下的放射性源项 3. 压水堆核电厂常规排出的气载流出物在大气中迁移和弥散的估算方法 4. 评价核设施液态流出物在天然水体中弥散的数学模型 5. 尾矿处置场放射性和非放射性污染物在地下水体中迁移的估算模式 6. 评价核电厂事故和常规流出物在水体中弥散的模型 7. 评价核电厂潜在事故后果的大气弥散模型 8. 反应堆流出物常规排放所致个人年剂量的计算方法 9. 关键人群组受照剂量评价模型与参数选用准则
502.2b 流出物与环境监测方法标准	(共 56 项标准)
402.3 干预的辐射防护标准	1. 核事故与辐射事故的分级与管理标准
402.3a 事故分级与管理标准	1. 核电厂营运单位应急响应职能与组织机构准则
402.3b 应急计划与准备标准	2. 核电厂营运单位应急计划执行程序准则 3. 核电厂应急计划与准备的评价准则 4. 核电厂场外应急准备与响应准则 5. 应急计划区划分准则 6. 场外应急响应职能与组织机构准则 7. 保护公众的干预准则

8.5.4.2 电离辐射防护和辐射源安全的基本安全标准

IAEA 等 6 个国际机构推出的这一标准目的在于对电离辐射照射所伴有危险的防护和可能产生这种照射的辐射源的安全提出基本要求,该标准提出的基本原则适用于广泛的会引起或可能引起辐射照射的实践和源。作为一项实施导则,该标准对制定与辐射防护、辐射源安全和辐射环境管理有关的法律、法规、标准、导则具有普遍的指导意义,其中与公众照射有关的主要内容包括:

(1) 适用与排除 明确界定了应按本标准提出的各项基本原则实施安全管理的各类实践、源、照射和干预。

(2) 实施的责任和责任方 明确界定了对实施本标准负主要责任的主要方和负各自相应次要责任的其它各方,规定了主要责任方和其它各方应承担的一般责任和特定责任。

(3) 实施的监督和检查 主要责任方(注册者或许可证持有者,用人单位)应接受监管机构对其获准实践的防护与安全进行监督。规定了发生违反本标准中任何适用要求时,主要责任方应采取的行动和监管机构可能采取的措施。

(4) 对实践的要求 审管的基本原则和基本要求,辐射防护要求,营运管理要求,技术要求和对安全状态的确认。

(5) 对干预的要求 审管的基本原则和基本要求,辐射防护要求。

(6) 公众照射的控制 控制责任,外辐射源的控制,封闭场所中放射性污染的控制,参观访问人员的控制,放射性废物管理,放射性物质向环境排放的控制,公众照射的监测,消费品所致公众照射的控制。

(7) 潜在照射的控制——核安全 安全控制责任,安全评价,对设计的要求,对运行操作的要求,质量保证要求。

(8) 应急照射情况的干预 对干预的管理责任,应急计划,干预的决策和干预水平,事故后的评价和监测,从事干预工作人员的防护。

(9) 慢性照射情况的干预 对干预的管理责任,补救行动计划,补救行动的正当性判断,慢性照射情况的行动水平和剂量约束。

8.5.4.3 源和实践的豁免管理标准

与此有关的标准规定了源和实践豁免的管理原则和豁免水平。如监管机构确认某一实践和实践中相关的源满足这些原则与水平的要求,即可被辐射防护与辐射源安全标准的要求(包括对通知、注册或许可证审批的要求)所豁免,但豁免不适用于不符合正当性要求的实践。

豁免的一般原则是:

① 实践或源对个人造成的辐射危险度低至不足以引起监管机构关注的水平,1a 实践对任何公众成员预计造成的有效剂量不超过 0.01mSv ;

② 实践或源产生的集体剂量低至在通常情况下不值得进行管理控制的水平,评价范围内公众的集体有效剂量不超过 $1\text{人}\cdot\text{Sv}\cdot\text{a}^{-1}$;

③ 实践或源具有固有的安全性,任何情况下绝不会出现导致不满足以上两项原则要求的故障情景,或防护最优化评价表明唯豁免为最佳选择。

有关标准对实践中使用的放射性物质按不同放射性核素的浓度及总活度提出了具体的清洁解控水平值。对低放射性废水向下水道系统的免管排放作出了具体的控制规定。

8·5·4·4 放射性废物管理标准

放射性废物管理的基本标准规定了放射性废物管理的目标、要求及原则,废物管理职责及质量保证、废物分类体系的基本框架和分类的具体数值标准。

废物处置前管理标准包括对废物的产生,低中放射性废物的分类收集、净化处理、整备(减容、固化、包装)及暂时贮存,高放射性废物的净化、整备、玻璃固化及包装的控制标准。

废物处置标准包括对低、中放射性废物近地表处置及高放射性废物地质处置的控制标准。广义的废物管理标准还包括核设施退役与环境恢复标准、放射性物质运输安全标准及废物监测方法标准等。

8·5·4·5 流出物排放控制标准

本门类标准对流出物排放的控制提出了初级约束值、源相关限值、管理限值、参考水平和免管水平等一系列控制限值的概念。

ICRP 推荐的对公众成员的年剂量限值($1\text{mSv}\cdot\text{a}^{-1}$)属于初级限值(个人相关限值),按照剂量限制制度的要求只适用于对所有相关源产生的总剂量的控制。因此,个体有可能同时受多个源的照射时,初级限值不能全部用于限制某一具体的单个源所导致的个人剂量。对任何一个具体的单个源或实践对个人剂量贡献的限值称为源相关约束值(剂量上界)。该约束值的选择应确保现有的和预计未来的所有源所产生的个人剂量总和不超过初级限值。

管理限值是审管机构根据设定的源相关约束值,对某一指定的实践或源规定的某些具体的控制限值。如向环境排放的流出物体积、核素浓度或总活度的限值,这些限值的选择应确保个人剂量不超过源相关剂量约束(上界)值,并经由防护最优化评价将其限制在可合理达到的尽可能低的水平。

参考水平是营运单位出于管理目的而制定的用于决定是否需采取记录、调查、干预等行动的特定量值(分别称为记录水平、调查水平及干预水平),对于辐射防护中采用的任何量不论是否具有规定的限值,均可建立相应的参考水平。

对流出物排放的免管应按上述对源和实践的豁免管理原则判定,有时可采用“可忽略量”表示其危险完全可以忽略的剂量水平或放射性物质的活度。有的情况下,即使已存在的明确的危险增量水平不会明显改变受照个人总的辐射危险,也不足以说明这样的照射可不受管理控制;反之,有的情况下,虽然某些实践或其相关源涉及大量个体的小剂量照射,但只要相应的集体剂量足够地小,仍可对其实行豁免。

除核设施流出物排放所致的局地照射外,个人相关剂量限值中还应包括所有现存的或预期的辐射照射源导致的地区性照射及全球性弥散的核素所导致的全球照射的剂量贡献。根据这一原则,关键人群组的年有效剂量应按下式控制:

$$E_D + E_A + E_G \leq F \times E_L \quad (8 \cdot 16)$$

式中,

E_D ——某一特定的核设施流出物排放所致局地辐射剂量,即源相关剂量;

E_A ——区域辐射剂量;

E_G ——全球辐射剂量;

E_L ——公众成员年有效剂量限值,即个人相关剂量限值或初级限值;

F ——考虑特定设施未来发展或其它因素,对剂量限值保留一定裕度而采用的分数。

据此,根据设定的 F 值和预期的区域及全球辐射剂量的估计值,可导出源相关的个人剂量上界为

$$E_{UB} = F \times E_L - E_A - E_G \quad (8 \cdot 17)$$

对区域及全球照射贡献的控制,必须通过国际协议实行。目前,我国对压水堆核电厂液体及气载流出物排放所致公众中任何个人(成人)的年有效剂量上界取为 $0.25\text{mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ 。

如某一种放射性核素 i 单位释放量对关键人群组 j 产生的剂量负担为 f_{ijk} ,并假定没有其它放射性核素释放,则可求得核素的年释放量上界($\text{Bq}\cdot\text{a}^{-1}$)为

$$R_{ik}^* = \frac{E_{UB}}{f_{ijk}} \quad (8 \cdot 18)$$

转换因子 f_{ijk} 可通过环境影响评价求得,其中 i 表示核素, j 表示人群组, k 表示排放方式。当多种核素以几种方式排放,不同排放方式和不同核素可能涉及不同的关键人群组,对于任何一种排放方式和放射性核素的组合,其真正的关键人群组也不同。因此,按真正的关键人群组确定排放上界可能变得十分复杂,应根据实际情况,采用某些简化方法进行计算。

为控制公众受照的集体剂量,核设施还应确保按上述原则确定的排放量限值不超过国家对各类核设施放射性流出物排放所规定的归一化排放量管理限值。如压水反应堆核电厂,液态流出物中 ^3H 的归一化排放量限值为 $3.5 \times 10^{13} \text{Bq}(\text{GW}\cdot\text{a})^{-1}$,除 ^3H 以外的其它核素总计不超过 $4.5 \times 10^{11} \text{Bq}(\text{GW}\cdot\text{a})^{-1}$ 。

在确保满足按上述原则确定的排放量限值要求的前提下,还应遵照最优化原则,将排放量降低到可合理达到的尽可能低的水平。

8.5.4.6 流出物和环境监测标准

核设施流出物监测的目的在于判明流出物中放射性核素的浓度或总活度,以便与排放管理限值进行比较;为采用适当的模式评价环境影响,估算公众受照剂量提供实际的源项数据和资料;为判明核设施的运行及放射性废物管理设施工作是否正常提供有效的数据和资料;使公众确信核设施的放射性释放确实受到了严格的控制;迅速发现和鉴定计划外释放的性质、种类及规模;给出是否需要启动警报系统或应急警报系统的信息。

凡有流出物释放的单位,都应按最优化原则编制流出物监测计划,并报主管部门和审管机构备案。流出物监测标准对监测计划的编制、监测点的选择及布设、取样监测频度、监测核素种类及其它有关的监测参数的确定、气载及液态流出物监测的特殊要求、连续监测装置的应用、各类核设施流出物监测的特殊要求等作了原则的规定,营运单位应根据设施的实际情况,按标准的要求制订相应的流出物监测计划。

流出物监测标准对采样方式、采样技术、测量方式、测量技术、测量的质量保证、监测结果的记录、报告和存档也作出了规定,并给出了核设施流出物监测结果报告表的统一格式。

一切源项单位都必须设立或聘用具有法定资质的专业性环境辐射监测机构执行本单位的环境辐射监测任务,其中,核设施必须设立独立的监测机构。各级地方环境管理部门也应建立环境辐射监测机构。

环境辐射监测包括运行前环境本底调查、运行期间的常规监测和事故应急监测,目的在于评价核设施正常工况及事故工况排放造成的环境放射性污染水平,摸清污染变化趋势,追踪测量异常排放时放射性核素在环境中的迁移途径。应按规定定期向主管部门和审管机构报告监测结果,发生环境污染事故则应随时报告。

必须遵循辐射防护最优化原则,事先制定切实可行的环境辐射监测大纲。有关的环境监测标准提出了实施监测大纲所期望达到的目的,制定监测大纲应考虑的因素,本底调查、常规监测、退役监测及事故监测大纲的特殊要求。随着源和环境情况的变化和监测经验的积累,监测大纲应及时调整,在积累了足够的监测资料后,监测大纲一般可以从简。

环境辐射监测标准还对就地测量、样品采集、实验室分析测量、数据统计处理、监测结果的评价与上报、监测的质量保证作了相应的规定。

8.5.4.7 环境影响评价标准

辐射环境影响评价的有关标准规定了评价应涵盖的区域范围,评价子区的划分、评价的基本剂量标准、指标和方法。环境影响评价属于预断评价,应选用合适的模式和参数,分别估算正常工况与事故工况下关键人群组的有效剂量和评价范围内的集体剂量。退役核设施的辐射环境影响评价应包括拆除过程中和封存后的辐射环境质量评价,前者属于现状评价,应结合环境监测资料,以模式计算正常拆除作业及发生拆除事故时公众的个人剂量和集体剂量。

环境影响评价应充分收集各种有关的基础资料,其中包括核设施的工程概况、放射性废物管理设施、放射性物质的运输、固体及液体废物贮存设施、区域自然环境和区域社会环境等方面的资料和数据。

环境影响评价标准涉及各种核设施正常工况与事故工况下的源项估计,气载及液体流出物在环境中迁移、弥散、转移的估算模式与参数,评价过程中必要的环境监测、关键人群组受照剂量估算模式与参数的选用,评价结论与建议和对评价工作的管理职责等。

8.5.4.8 干预的辐射防护标准

干预的辐射防护标准包括事故分级与管理标准和应急计划与准备标准。

按事故发生后可能导致的场外影响、场内影响及纵深防御降级的程度为准则,核事件可分为七级,可能导致公众受到超过剂量限值以上量级照射的场外影响的事件称为事故(4~7级);可能导致公众受到低于剂量限值水平照射的极小的场外影响,但会导致工作人员过量照射并丧失纵深防御能力的事件为严重事件(3级);安全上无重要意义的事件为0级。显然,事件分级是应急状态分级的基础。

应急计划与准备计划涉及场内(营运单位)及场外应急响应职能与组织机构,场内外应急响应能力的保持,场内外应急计划的制定、练习、演习与评价,应急计划区的划分,保护公众的应急干预原则和措施、干预水平和导出干预水平的确定、应急辐射监测等。

参 考 文 献

- 1 International Commission on Radiological Protection. 国际放射防护委员会 1990 年建议书:Publication 60. 李德平等译. 北京:原子能出版社,1993
- 2 International Atomic Energy Agency 等. 国际电离辐射防护和辐射源安全的基本安全标准:Safety Series No. 115. 维也纳:国际原子能机构,1997
- 3 International Organization for Standardization. Environmental Management Systems—Specification with Guidance for Use:ISO 14001,1996
- 4 中华人民共和国国家标准. 环境管理体系规范及使用指南:GB/T 24001-1996. 北京:中国标准出版社,1997
- 5 孙世荃编著. 人类辐射危害评价. 北京:原子能出版社,1996
- 6 刘克良等编. 放射损伤与防护. 北京:原子能出版社,1995

- 7 International Atomic Energy Agency. The Principles of Radioactive Waste Management: Safety Series No111 – F. Vienna: IAEA, 1995
- 8 嵯凤官. 辐射防护与源安全标准体系表(1995年修订版)和“九五”标准制修订计划建议:核标准科研报告. 北京:核工业标准化研究所安防室,全国核能标准化技术委员会秘书处,1995
- 9 International Atomic Energy Agency. 限制放射性流出物向环境释放的原则:Safety Series No. 77. 维也纳:国际原子能机构,1990
- 10 潘自强著. 辐射防护的现状与未来. 北京:原子能出版社,1997

第9章 辐射环境影响评价方法

对涉及辐射照射的实践实施辐射环境管理,在满足实践正当性要求的前提下,对于公众正常照射的防护,应通过代价-利益分析,对公众照射剂量(集体剂量和个人剂量)确定最优化的控制水平,并用源相关剂量约束值和个人相关剂量限值对个人剂量加以约束和限制;对于潜在照射的防护,则应对有关事件或事件序列的发生概率及事件一旦发生可能造成的公众照射剂量加以控制(危险控制)。因此,对拟议中的核设施项目必须进行辐射环境影响评价,估算其可能造成公众照射的集体剂量、个人剂量及个人危险,并与相应的剂量约束值或危险约束值进行对比评价。

有鉴于此,对拟议中的实践只进行常规的工程分析和一般性的经济分析是远远不够的,为了更全面地阐明实践将带来的社会、经济和环境后果,应对与核设施项目有关的环境现状,工程建设、运行中的环境状况和一旦发生事故将造成的环境后果分别进行客观的质量评价和影响预测评价。这类环境评价采用“合理的”环境系统分析方法,根据符合客观实际的理性认识,阐明、理解环境系统而不受个人感情或其它政治因素的左右。事实表明,只有进行科学、合理的环境影响评价,才能真正符合实践正当性和辐射防护最优化的要求。

任何实践及工程项目建设都有自身明确的目的,但必须同时考虑自身与社会的可持续发展,因此,必须妥善解决其对资源与环境的保护和开发利用之间的矛盾。尽早地、全面地、经常地进行环境影响评价,有助于及时、合理地协调、平衡和解决这类矛盾,以实现全社会可持续发展的总目标。

环境预测是环境影响评价的核心,是对实践实行良好规划和科学管理的基础,环境影响评价应结合拟议中的实践和具体核设施项目,对一种或多种未来可能发生的情况进行预测。而且,由于环境条件处于不断变化之中,不同时期、不同地区的环境影响评价应考虑的因素和评价标准都可能会有所不同。

根据涉及的经济开发计划与管理不同层次,环境影响评价也可相应地分为宏观的及针对具体设施项目的评价,必要时还可分为长期的和短期的环境影响评价。

9.1 概 述

9.1.1 环境影响评价概论

9.1.1.1 环境质量评价及其分类

环境质量评价是对环境素质优劣的定量评述,它按照一定的评价标准和评价方法,确定、说明和预测一定区域范围内人类活动对人的健康、生态系统和环境的影响程度。

环境质量评价以国家规定的环境标准或污染物在环境中的本底水平为依据,将环境素质的优劣转化为定量的可比数值,并将这些定量的结果划分等级,以说明环境受污染的程度。

环境在时空上有着较大的差异,人类的社会活动又多种多样,因此,环境质量评价可分

为多种类型。

按环境质量评价涉及的时间范围可分为环境质量回顾评价、环境质量现状评价和环境质量预断评价,预断评价又称为环境影响评价。

按评价涉及的环境要素(环境物质)可分为单个环境要素的质量评价和整体环境质量的综合评价,有时还可以是部分环境要素的联合评价。单个环境要素的质量评价有大气、地面水、土壤、农作物等的污染评价,部分环境要素的联合评价有地面水-地下水联合评价、土壤-农作物联合评价及地面水-地下水-土壤-农作物联合评价等。

按评价涉及的区域范围可分为建设项目(单个设施)环境质量评价、城市环境质量评价、区域环境质量评价和全球环境质量评价等。

按评价选择的参数可分为化学评价、物理评价(辐射评价、噪音评价等)、生物学评价、生态学评价和卫生学评价等。

对会导致增加总的辐射照射的人类活动(国际放射防护委员会(ICRP)称为“实践”)进行的环境质量评价称为辐射环境质量评价,按评价涉及的时间范围也可分为辐射环境质量回顾评价、辐射环境质量现状评价及辐射环境影响评价。

(1) 环境质量回顾评价及环境影响事后验证评价 通过各种手段获取某些区域的历史环境资料,对该区域的环境质量发展演变进行评价,这是环境质量评价的组成部分,是环境现状评价和环境影响评价的基础,又可作为事后评价,对环境质量预测评价的结果进行验证。

环境影响事后验证评价是对工程设施竣工投产后的环境影响进行的系统调查和评价,目的在于检验证实原先的预测评价结论是否正确可靠。事后评价完善了环境影响评价制度,具有补充和验证的作用,有利于环境评价和预测方法的改进和发展,提高环境影响评价和预测的精度,弥补工程设施环境影响评价中的缺漏,为消除已存在的环境影响提供及时的解决办法。

(2) 环境质量现状评价 依据一定的标准和方法,着眼于当前情况,对一个区域内人类活动所造成的环境质量变化进行评价,为区域环境污染综合防治提供科学依据。环境质量现状评价包括环境污染评价、生态评价、美学评价和社会环境质量评价等。

(3) 环境影响评价 对建设项目、区域开发计划和国家某项政策实施后对环境可能造成的影响进行预测和估计,评价中不仅要研究建设项目开发、建造和运行对自然环境的影响,也要研究其对社会和经济的影响;既要研究污染物对大气、水体和土壤等环境物质的污染途径,也要研究污染物在环境中的输运、迁移、转化规律以及对人和生物的作用途径和危害程度,并据以制订有效的防治对策,把环境影响限制在可以接受的水平上。

法定的环境影响评价制度要求,在进行对环境有影响的建设、开发活动时,应事先对其可能造成的环境影响进行科学的预测和评估,制定防止或减少环境危害的措施,编写环境影响报告书或填写影响报告表,报经环境管理审管部门审批后才能进行设计和建设。这项制度是贯彻“预防为主,防治结合,综合治理”的环境保护方针的重要手段,起着促进可持续发展和保护环境的双重作用,实现经济效益、社会效益和环境效益的协调统一。

环境影响评价应由持有审管机构颁发的环境影响评价资质证书的法人单位进行。

9.1.1.2 环境影响评价的程序和管理

(1) 环境筛选 凡新建或改扩建工程,由建设单位向环境管理部门(对核工程,还包括

核完全辐射环境管理审管机构)上报建设计划并提出申请,由审管机构组织对拟议中项目的环境影响进行初步筛选,以便按所涉及问题的性质、潜在规模和敏感程度确定需要进行何种环境分析或评价。

可能对环境造成敏感的、不可逆的、多方面综合广泛的、带行业性的、或以往尚未有过的重大不利影响,环境后果严重的项目列为 A 类项目,这类项目必须进行全面的环 境影响评价。

可能对环境产生较小的、不太敏感的,涉及面不太大的影响,不可逆影响因素较少且易于采取控制或补救措施减缓其影响的,环境影响程度有限的项目列为 B 类项目,这类项目一般不要求进行全面的环 境影响评价,但应作专项的环境影响评价。

对环境不产生不利影响,或影响极小的项目列为 C 类项目,这类项目一般不需要进行环 境影响评价,只办理备案(填报告表)手续。

环境筛选审查目的在于对拟议中的项目和环境有关的各个要素给予恰当的考虑,通过鉴定,排除肯定不存在环境影响的要素;对于存在环境影响的要素,则确定其关键性的环境问题,确定应作评价的类型,并在项目的计划、设计和评价中及早认明,并给予恰当的考虑。

(2) 环境影响评价工作程序 环境影响评价工作程序可大致分为三个阶段(图 9.1),第一阶段为准备阶段,主要工作为研究有关文件,进行初步的工程分析和环境现状调查,筛选重点评价项目,确定各单项环境影响评价的工作等级,编制评价工作大纲;第二阶段为正式工作阶段,主要工作是进一步进行工程分析和环境现状调查,并进行环境影响预测和评价;第三阶段为报告书编制阶段,主要工作是汇总、分析第二阶段工作所得到的资料数据,并作出结论,完成环境影响评价报告书的编制。

如需进行多个厂址的优选,应对各个厂址分别进行预测和评价。如通过评价对原选厂址作出否定结论时,对新厂址的评价应按上述工作程序重新进行。

9.1.1.3 环境影响评价工作等级的划分

环境影响评价工作等级是指需要进行评价的各单项应达到的评价深度,工作等级划分的依据为建设项目的工程特点(工程性质与规模、能源的使用量和类型、源项等)、项目所在地区的环境特征(自然环境特点、环境敏感程度、环境质量现状及社会经济状况等)、国家或地方政府颁布的有关法规(包括环境质量和污染物排放标准)。

各单项环境影响评价可划分为三个工作等级,其中一级最为详细,二级次之,三级较简略。一般情况下,一个项目的环境影响评价中各单项所需的评价工作等级不一定相同,对个别工作等级低于三级的单项评价,可只作简单的叙述分析或不作分析;对各单项的评价工作等级均低于三级的项目,不需编制环境影响报告书而只填报报告表。

9.1.1.4 环境影响评价大纲的编制

环境影响评价大纲是评价工作的指导性技术文件,也是检查报告书内容和质量的主要判据,应在开展评价之前,按工作程序在充分研究有关文件,进行初步的工程分析和环境现状调查的基础上编制。

评价大纲一般包括的内容有:①总则(评价任务的由来、编制依据、控制污染与保护环境的目标、采用的评价标准、评价项目及其工作等级和重点等);②建设项目概况;③地区环境简况;④建设项目工程分析的内容与方法;⑤环境现状调查(调查参数、范围、方法、时期、地点和次数等);⑥环境影响的预测和评价(预测方法、内容、范围、时段及有关参数的估值方

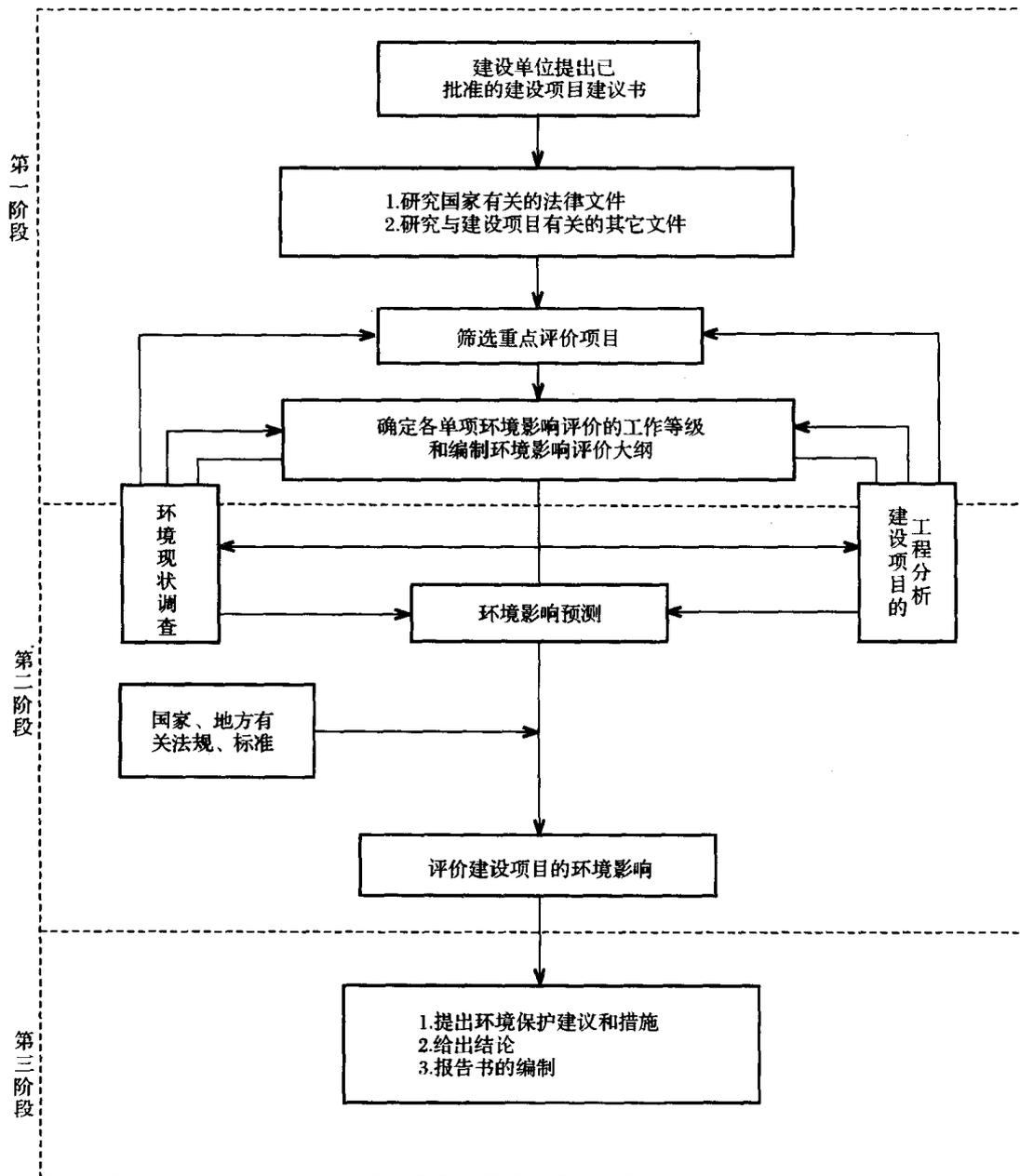


图 9.1 环境影响评价工作程序图

法);⑦评价工作成果清单,拟提出的结论和建议的内容;⑧评价工作的组织和计划安排;⑨经费概算。

9.1.2 辐射环境影响评价概论

9.1.2.1 评价范围与评价子区

(1) 评价范围 核燃料循环系统,陆上固定式核动力厂和核热电厂,拥有生产或操作量相应于甲、乙级实验室(或操作场所)并向环境排放放射性物质的研究、应用设施,均应进行

辐射环境影响评价。

核动力厂及核燃料循环中的大中型设施,应以主要放射性污染物排放点为中心,半径为80km的周围区域作为评价范围。

(2) 评价子区 根据释放到环境中的放射性核素的输运途径(气途径及水途径),结合当地环境特征划分评价子区,一般方法是在评价范围内按一定的半径距离划同心圆,再按16个方位划分扇形区,两相邻同心圆弧与两相邻方位线围成的小区域作为评价子区(图9.2)。

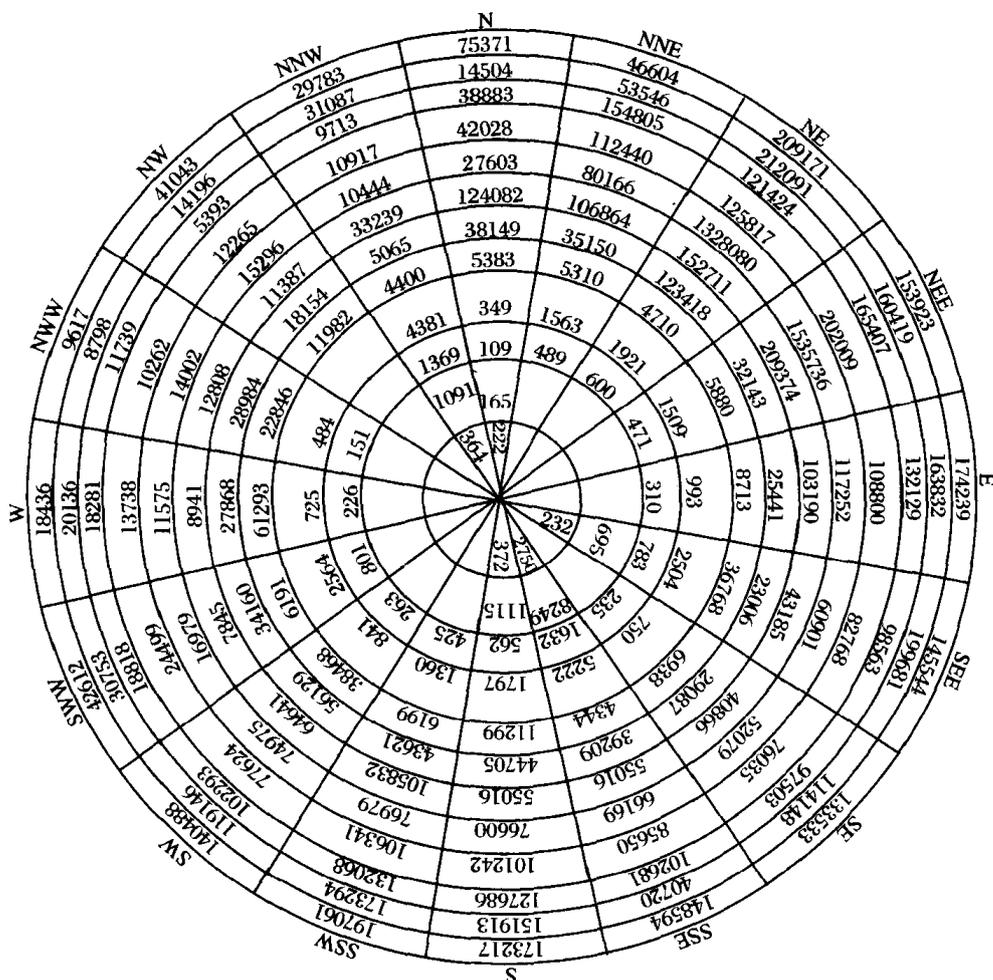


图 9.2 某单位辐射环境影响评价范围内子区的划分及人口分布^[12]

9.1.2.2 关键人群组、关键核素和关键照射途径

(1) 关键人群组 每一评价子区内的公众成员可按性别和年龄进一步划分为若干人群组,在评价范围内每一人群组中,个体从一给定实践或源受到的照射在一定程度上可认为是均匀的,当某一个人群组的人均受照剂量大于整个受照群体中所有其它人群组时,即称为关键人群组。关键人群组的人均剂量可用以度量该实践或源所产生的个人剂量(源相关剂量)的上限。

(2) 关键核素 某一给定实践或源向环境释放的各种放射性核素中,就其对人的照射

而言,其中某一种核素的剂量贡献最大而具有更为重要的意义时,称为关键核素。

(3) 关键照射途径 某一给定实践或源涉及的对人照射的各种途径中,其中某一种照射途径所致剂量贡献最大而具有更为重要的意义时,称为关键照射途径。

显然,就个体的照射而言,不同人群组照射涉及的关键核素及关键照射途径可能有所不同;此外,就群体的照射而言,其涉及的关键核素与关键照射途径也可能与考虑个体照射时有所不同。因此,关键核素与关键照射途径的确定,应对关键人群组平均受照剂量及群体的集体剂量的估算结果进行综合考虑而慎重选定。

确定关键人群组、关键核素和关键照射途径是辐射环境影响评价的重要目的,它将为实践或源的辐射环境管理提出防护与管理的重点,为放射性流出物的排放控制及环境辐射监测大纲的制定提供可靠的理论依据。

9.1.2.3 评价的基本剂量标准和指标

(1) 基本剂量标准 核设施正常工况的辐射环境影响评价采用 ICRP60 号报告建议的公众成员的平均年有效剂量基本限值 $1\text{mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ 作为基本剂量标准,如连续 5a 内平均不超过 $1\text{mSv}\cdot\text{a}^{-1}$,其中个别年份内允许适当放宽。

对于陆上固定式核动力厂和核热电厂,正常工况下放射性流出物排放所致关键人群组平均年有效剂量的预示值不得大于 $0.25\text{mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ (作为源相关个人剂量约束值),对其它类型的核设施进行辐射环境影响评价时,对基本剂量标准也要考虑剂量的合理分配份额(见第 8 章有关内容)。

(2) 评价指标 辐射环境影响评价采用的基本剂量评价指标为关键人群组的人均年有效剂量和评价范围内整个受照群体公众的集体有效剂量。

9.1.2.4 评价方法

辐射环境影响评价和管理的基本原则是将环境对公众造成的辐射照射降低到可合理达到的尽可能低的水平,整个评价过程(特别是对评价结论的分析和建议)中都应充分体现这一原则。

辐射环境影响评价系预断评价,应选用合适的模式和参数估算正常工况与事故工况下上述两项剂量的量值。

对正常运行工况估算预示的关键人群组人均年有效剂量,必须小于个人剂量约束值 ($0.25\text{mSv}\cdot\text{a}^{-1}$),并应对预示的个人剂量及集体剂量按防护最优化原则作进一步的评价,指出进一步降低剂量的可能性、涉及的经济代价及其合理性。

对实践或源可能发生的不同等级的事故情况进行估算所预示的个人剂量,显然不能用个人剂量约束值加以控制,它仅预示一旦发生事故公众成员可能受到的最大剂量。根据不同事故情景、分期和区域公众受照的主要途径、可能采取的干预防护措施及相应的干预水平,预示的个人剂量值可为干预措施选用的决策提供依据。

辐射环境质量现状评价应以模式计算为主,并结合环境辐射监测资料,估算正常工况和事故工况下的关键人群组人均年有效剂量和整个受照群体的集体有效剂量。

按核设施项目实施过程的不同阶段,应分别进行选址阶段、建设阶段、运行阶段及退役阶段的辐射环境影响评价。退役阶段的评价应包括退役过程和退役终态的辐射环境影响评价,前者按现状评价方法估算剂量,后者按预断评价方法估算剂量。

9.1.2.5 报告书的编制

环境影响报告书是环境影响评价程序和内容的书面表达形式,应全面、客观、公正、概括地反映环境影响评价的全部工作。

辐射环境影响评价报告书应根据环境特点、核设施的工程特点及评价工作等级,按以下全部或部分内容编制。

(1) 概述 报告书的编制目的、依据(项目建议书,评价大纲及其审查意见,评价单位及其资质证书,评价委托书或任务书,建设项目可行性研究报告等);采用的评价标准;控制污染与保护环境的目标。

(2) 基础资料

1) 项目概况 项目名称、水源、职工人数、主要原料、产品及生产规模;主要设施及其位置,总平面图(含生活区);与放射性物质排放、处理、贮存有关的主要设施和工艺。

2) 放射性废物处理设施 气载、液体及固体放射性废物处理系统的主要技术参数,净化处理能力,处理工艺流程图。

列表给出液体、气载、固体放射性废物的产生量、贮存量和排放量。

3) 放射性物质的运输 运输放射性物质的种类、形态、总量、活度或比活度、包装方式、装运路线。

放射性物质卸载后车辆的残留放射性测定数据,沾污状况、沿途公众受照射时间和人数。

4) 固体废物贮存场(库)和液体废物贮存罐 废物设计贮存场(库)的位置、建筑面积、贮存方式,与生物圈隔离的程度。

固体废物的收集包装、埋藏和贮存情况。

临时废物场(库)的位置,周围环境特点,废物中核素成分和数量。

废物贮存场(库)和液体废物贮存大罐使用寿命,周围土壤、岩石对核素的滞留能力,放射性物质可能渗漏的情况。

5) 区域自然环境

①地形 单位周围的地形、地貌特征,必要的地形图。

单位的区域图,标出单位排放点位置及其距居民点的距离。

②水文 废水受纳水体的水文学及水力学参数,如河宽、河深、河道分布、水力坡度、水温、流速、流量(平均月流量,全年枯水期及丰水期流量)、泥沙含量等。

有可能造成地下水污染的单位,应给出至少 5km 范围内地下水分布状况以及水位、流速、流向、流量资料。

废水受纳水体的水化学特征,如水质分类、pH 值、硬度、化学需氧量(COD)、生化需氧量(BOD)、溶解氧(DO)、 SO_4^{2-} 、 SO_3^{2-} 等。

③气象 单位所在地的气象概况资料,如年均及月均气温、湿度、降水量及其在数年内的极端值变化。

单位附近或当地气象台(站)至少 1a 以上的地面逐时观测资料,按帕斯奎尔天气类型分类方法列表给出 16 个方位、不同大气稳定度、长期平均风速、风向联合频率。

风玫瑰图和降水风玫瑰图。

不同大气稳定度下的混合层高度。

事故工况下剂量估算所需的气象参数。

6) 区域社会环境

① 人口分布 各评价子区的人口数、人口增长率和规划人口数,相应各年龄组(婴儿、幼儿、少年、成人)的人口数。

在地图上标出 10~15km 范围内的重要城镇、工矿企业和水域娱乐场所,评价范围内 10 万人口以上城市、自然保护区、风景旅游区、疗养区位置。

② 生态资源 图示标出单位边界,水源分布,森林、植被、农田、水利设施、交通线路和公园位置。

评价范围内陆生和水生生物的种类、数量、生长期、销售地域及数量,主要食用禽畜的商品提供量(肉、蛋、奶)、销售地域及数量。

对放射性碘排放量较大的单位,给出家畜饲料来源、品种、日消费量及产自评价范围内的份额。

评价范围内各年龄组人群对上述产品的年消费量及来自评价范围内的份额。

③ 土地和水资源利用 评价范围内现有及规划中的土地利用状况及其历史变迁资料。评价范围内的水系分布,单位附近水系的利用状况。

5km 范围内居民饮用水源分布、水位、饮水人数和饮水量。

评价范围内农田、森林、牧场灌溉用水来源、水量、灌溉作物种类与面积。

评价范围内动物饮用水来源和饮水量。

在地图上标出排污沟、废物排放口、废物库位置,评价范围内地面水和地下水体污染概况,主要污染物及数量。

(3) 源项

1) 气载、液体流出物和固体废物

① 气载流出物 正常工况下气载流出物流量、核素成分、物理及化学形态、年产量及年排放量。

事故工况下气载流出物的核素成分、物理及化学形态、释放方式、持续时间和释放量。

② 液体流出物 正常工况下液体流出物流量、浓度(范围和均值)、核素成分、年产生量和年排放量。

事故工况下液体流出物的核素成分、释放方式、持续时间和释放量。

③ 固体废物 固体放射性废物的种类、数量、活度或比活度。

本单位固体废物库或贮存场所与生物圈的隔离程度,分析可能的渗漏情况、核素成分及释放途径。

2) 流出物监测 描述监测装置及其探测限、能量相关性、测量方法、标定和刻度方法、流量、效率等。

气载流出物监测点位置、监测频度、核素成分、年释放率,采样头设计示意图。

液体流出物监测点位置、监测频度、核素成分及年排放率。

(4) 环境监测 按环境影响评价要求制订的环境监测计划,监测涉及的环境物质,按“三关键”原则确定的监测点布设,监测频度,采样与监测方法,监测的质量保证,监测数据和结果的建档保存。

设施运行前 2a 以上的环境天然贯穿辐射水平和主要环境物质中重要核素含量的本底资料。

设施运行后逐年的 γ 照射量率和主要环境物质中重要核素含量的变化,设施运行时环境监测对照点的位置。

实验室分析方法,测量装置及性能,分析样品名称、取样量、采样地点、采样频度,样品数目、核素成分及其浓度(范围、均值、标准误差)。

就地监测仪表、装置及其性能,监测点分布及监测结果(必要时以图表形式给出)。

放射性污染指示生物名称,对污染物的反应特性,对指示生物的检验结果。

(5) 剂量评价

1) 正常工况下放射性物质释放的环境影响

① 气途径 气载流出物的浸没外照射和地面沉积外照射;吸入污染空气的内照射,经生物链转移途径的内照射。

② 水途径 岸边照射,污染水域内水的浸没外照射,饮用污染水的内照射,食用污染水产品的内照射,食用污染作物的内照射。

③ 其它途径 固体废物的外照射及其它途径的照射,含放射性物质的废料再利用造成的照射,放射性物质运输造成的照射。

2) 事故工况下放射性物质释放的环境影响 可能发生的事故释放分类,事故排放方式,持续时间,释放核素成分、状态和总量。

各类事故发生概率,公众照射途径,可能造成的环境损害及生态损害后果。

3) 剂量估算

① 气途径 采用的大气扩散模式及环境转移参数,估算地面沉积率和大气扩散因子。按年平均气象条件求得的正常工况下气载流出物释放造成的个人有效剂量和集体剂量。

按事故时气象参数或本地区最不利气象条件求得事故工况下气载流出物释放造成的最大个人有效剂量和集体有效剂量。

② 水途径 采用的水体扩散模式,废水接纳水体的稀释因子及有关参数,水体中主要核素的沉积因子。

不同河段水体中核素的平均浓度,正常工况下废水排放造成的人群组年有效剂量。

采用适当的计算模式、生物浓集因子和有关参数求得的重要水生动、植物体内重要核素的浓度及辐射剂量。

按事故排放时水体的水文学参数求得的不同河段水体中核素的平均浓度,事故工况下废水排放造成的人群组有效剂量。

③ 其它途径 固体废物收集、贮存、运输对人造成的外照射剂量,固体废物经淋溶或其它过程可能进入环境物质和地下水而对人造成的剂量,含放射性物质的废矿石、废渣、煤灰渣再利用对人造成的剂量,含放射性物质的废料中的核素成分,最大比活度、再利用方式、剂量计算模式和剂量转换因子。

放射性物质运输对人造成的外照射剂量。

④ 估算结果的表征 汇总列出气途径、水途径和其它途径造成的公众成员中关键人群组的平均年有效剂量。

汇总给出正常运行工况和事故工况下放射性物质释放造成的公众成员中关键人群组照射的平均年有效剂量或事故有效剂量。

评价范围内正常运行工况和事故工况下放射性物质释放造成的年集体有效剂量或事故

集体有效剂量。

(6) 评价结论和建议 按环境辐射基本剂量标准,结合核设施合理分配的剂量上界的份额,对剂量估算结果进行分析评价;分析并预测辐射环境质量的发展变化趋势,作出对核设施辐射环境质量的结论;确定关键人群组、关键核素和关键照射途径。

剂量估算结果与本地区天然本底辐射剂量的比较评价。

依据将环境辐射照射降低到可合理达到的尽可能低的水平的原则,提出适合本设施的剂量管理目标值(剂量上界),进行环境治理的最优化分析。

分析本设施造成环境污染的主要途径及管理上的薄弱环节,提出环境治理对策、管理措施和有关环境治理工程的建议。

提出减少和防止事故发生的预防措施及事故应急环境治理措施。

9.2 环境辐射剂量的估算与评价

只要不发生重大的核事故,环境辐射对公众的照射通常属于低剂量率、小剂量的长期慢性照射,其对人体健康的危害主要表现为随机性效应的发生。如前所述,随机性效应的发生率与辐射剂量大小之间呈线性无阈关系(正比关系),但效应发生后的严重程度则与剂量大小无关。根据随机性效应的这种剂量-响应关系,环境辐射剂量的估算及与相应剂量限值或约束值的比较评价是辐射环境影响评价的主要内容,也是辐射环境健康危害评价的基础。

9.2.1 环境辐射剂量估算的整体模式

环境辐射剂量估算需要采用一些由合理的假设构成的模式近似地表征放射性核素向环境释放的源项特征,进入环境后的输运、迁移过程,对人造成照射的各种途径,辐射剂量估算及健康危害评价的基本程序。整体评价模式应能表征流出物的释放特征,各类环境物质对污染核素的输运和弥散能力,公众照射途径和食物链转移,人对放射性核素的摄入和代谢特征。通过引入恰当的参数值对模式进行计算,求得有关的剂量值,作出健康危害的估计,由模式参数的不确定度估计预示剂量值及危害程度的离散程度。整体评价模式包括源项模式、环境输运与迁移模式、食物链转移模式、人体代谢模式和剂量模式。根据预示剂量值进一步作健康危害评价时,还应包括剂量-效应模式。

图 9.3 及图 9.4 所示为随气载及液体流出物释放的放射性核素在环境中的输运、迁移过程及对人的照射途径。

9.2.1.1 源项模式

源项是环境影响评价模式中重要的输入项,也是整体模式中灵敏度最大的参数项。

对环境造成直接影响的源项是释放项 Q_r ,它与初始源项 Q_0 之间一般呈线性关系:

$$Q_r = Q_0 F_1 F_2 F_3 \cdots \quad (9.1)$$

式中 F_1 为气载或液载转化率(或浸出率、泄漏率等),为核设施中放射性核素转入气载或液体废物中的份额; F_2 为气载或液体废物穿透各种包容屏障的透过率; F_3 为气载或液体废物经净化处理后残留而向环境释放的核素的份额。

源项模式应表明流出物的释放条件(地面源或高位源,点源或体源,瞬时源或连续源等),释放核素的形态和某些理化特性(化学形态、溶解度、生化态、吸附特性、挥发性等)和释

放量(总活度、比活度、核素组分及其半衰期等)。

9.2.1.2 环境输运和迁移模式

环境输运和迁移模式包括放射性物质进入环境后在各类环境物质中的输运、弥散和迁移过程及相关的参数,采用这些模式,根据源项参数,可估算大气、地面水、地下水、土壤等环

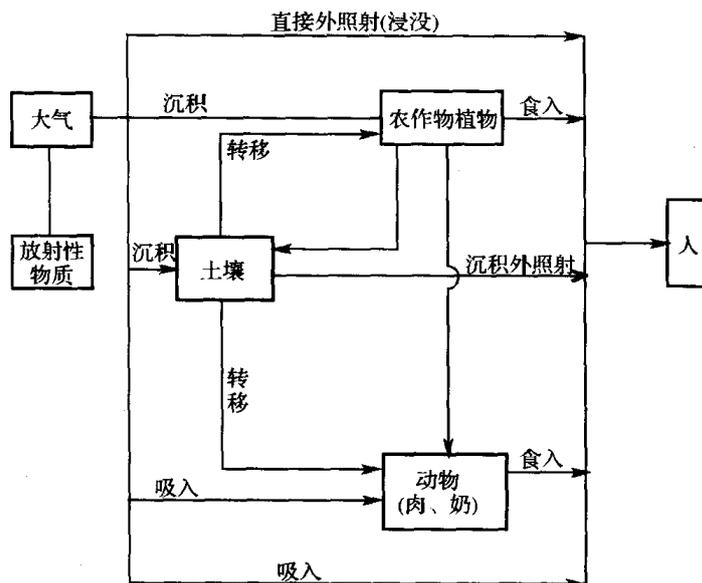


图 9.3 气载放射性流出物对人的照射途径

境物质的污染水平、空间分布及其随时间的变化。

(1) 源点周围的近场初始混合 一般情况下,污染源既非“点”源,也非被动污染源,相对于环境存在着初始动量及初始温差,因此,由于热射流的卷吸作用,污染源附近存在着强烈的非扩散输运机理导致的扩展与混合过程。这种近场混合过程对气载流出物的释放表现为烟团或烟羽的抬升(或下曳),对近地空气污染浓度计算表现为有效释放高度的影响;在地面水体中则表现为射流及浮力作用导致的混合。

近场混合的估算常采用物理模拟和量纲分析方法,使用这种方法要求对运动过程的物理机理有透彻的了解,并通过实验确定有关的参数值。

(2) 远场的湍流混合 对于污染物的远场湍流混合过程,可将污染源近似地视作被动污染源处理,通常采用浓度梯度扩散理论、湍流统计理论或湍流相似理论及相应的模式、参数进行估算。

对于气载放射性核素在大气中的输运和弥散,根据气象资料确定大气稳定度类型后,选用恰当的弥散参数 σ_y 和 σ_z 值,采用按点源弥散的高斯模式对不同条件所导出的计算公式,可分别求得高位源和地面源、长期释放和短期释放以及各种特殊条件下下风向不同距离处近地空气污染浓度的分布。采用干沉积和湿沉积模式,选用恰当的干沉积速度 V_d 及降雨冲洗因子 Δ 值,可分别求得不同条件下的地面沉积率,进而估算评价表层土壤中核素污染水平及其随时间的变化。采用相应的呼吸量参数,可由空气污染浓度估算不同年龄组人群对放射性核素的吸入量。

对于排放废水中所含放射性核素在地面水及地下水中的输运和弥散,根据受纳水体的

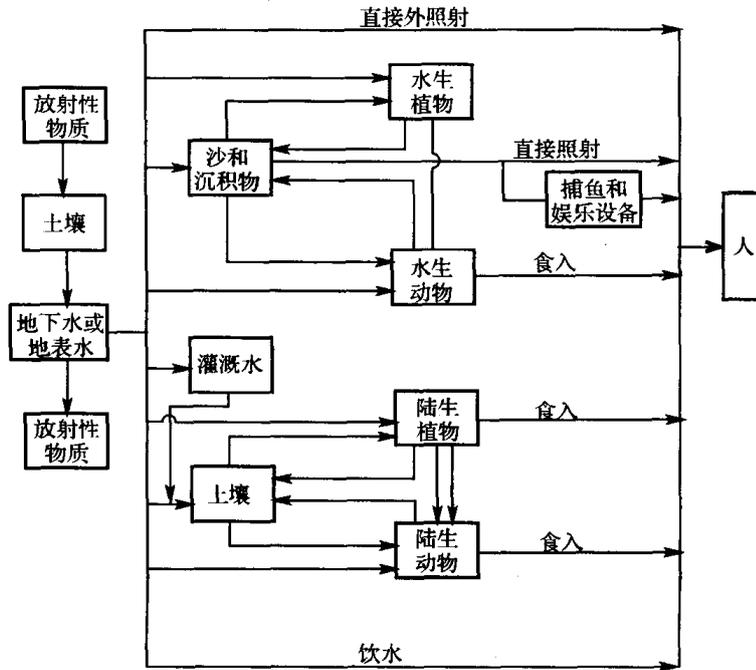


图 9.4 液态放射性流出物对人的照射途径

类型和特点,采用相应的弥散模式和参数值,可分别求得不同排放条件下各类水体中污染核素浓度的分布。根据固、液两相间物质交换平衡原理,引入适当的吸附分配系数 K_d 值,可求得水中悬浮固体及底质的污染水平。采用相应的饮水量参数,可由水的污染浓度估算不同年龄组人群通过饮水途径对放射性核素的食入量。

9.2.1.3 生物链转移模式

放射性核素在生物链中的转移、易位是其对人造成内照射的重要途径,根据核素载运介质的不同,可分为陆地生物链转移及水生物链转移。

气载放射性核素的生物链转移,系由沉积(干、湿)→截留→滞留→易位而进入陆生植物的可食部位,由饲料→易位而进入动物的可食部位(肉、奶)。目前对这一转移过程的各种处理模式,均以放射性核素的沉积为输入项,经定常系数截留,而转移率即与库容量线性相关,即为一阶动力学反应:

$$\frac{d\{c\}}{dt} = [\omega]\{c\} + \{s\} \quad (9.2)$$

式中,

$\{c\}$ ——陆地食物链转移过程各环节中核素的浓度;

$[\omega]$ ——转移矩阵;

$\{s\}$ ——转移源项。

各种元素的转移矩阵份额应通过实验及必要的环境调查确定,由于转移过程受多种因素的影响,故测得的转移系数值差异很大。

对于放射性核素通过水生物链的转移,常采用浓集因子法或比活度法处理。

根据水、空气、土壤等环境物质的污染水平求得水生物、植物、动物类食品中放射性核素

的浓度后,即可根据各类食品供应、消费的方式(产地、加工、运输、销售区域等情况)和数量,进而估算不同子区内不同年龄组人群经由食物链途径对放射性核素的摄入量。

9·2·1·4 人体代谢模式

人体代谢模式涉及放射性核素进入人体后在各种器官和组织中的吸收、分布、滞留和排泄特征,据此可根据摄入量估算放射性核素在各器官组织中的蓄积量及其导致的吸收剂量和当量剂量。

放射性气体和气溶胶被吸入人体后,除一部分直接被呼出外,其余的则在呼吸系统各段沉积下来,沉积核素中一部分直接进入体液,其余的则经由粘液-纤毛途径转移至消化道,进入消化道中的核素中又有一部分在小肠内被吸收而进入体液。放射性核素在这些过程中的转移速率与份额,很大程度上取决于核素存在的化合物形态。非转移性核素进入呼吸系统深部后,将以很低的速率向肺淋巴结转移,并将长期地滞留在其中。

通过饮水与食物途径被摄入人体的放射性核素中,以非转移性化合物形态存在的大多将通过胃肠道后随粪便排出,可转移性化合物形态的核素则主要经由小肠吸收而进入体液。

无论是食入或吸入后由肺转入消化道的放射性核素,其由胃肠道进入体液的分数(f_1)显然与核素化合物的化学形态有关。

完好的皮肤能有效地阻止大部分放射性物质进入人体,但氟化水或水蒸气、碘溶液或碘化合物溶液能通过皮肤而被吸收。

体液中的放射性核素一部分通过肾、肝、肠、皮肤或肺排出,其余的将沉积在其亲和的某个器官中,而氟氧化物、氯化物和钋的化合物等则是全身均匀分布的,其在体液中的浓度在较长时间内呈现简单的指数下降规律。

由各种途径总合造成的全身污染物的排出速率,与其在体液中的浓度有关,通过测定体内污染后不同时刻放射性核素的排出速率,有可能估算出体内核素的负荷量,进而估算内照射剂量。

9·2·1·5 剂量估算模式

剂量估算模式针对不同的辐射和辐射源,对受照几何条件作出必要的简化假设,引入适当的剂量转换因子,采用无限源方法,估算空气浸没及地面沉积所致公众的外照射剂量;对于食入及吸入造成的内照射,则依据各器官组织对辐射危害的相对贡献大小,赋予相应的组织权重因子,由各器官组织的吸收剂量和当量剂量,估算全身有效剂量,进而可估算待积有效(或当量)剂量及集体有效(或当量)剂量。

9·2·2 常规释放所致公众受照剂量的估算

9·2·2·1 空气浸没外照射剂量的估算

因气载流出物常规连续释放而弥散分布于空气中的 β 、 γ 放射性核素,可对站立在地面上的人造成浸没外照射。这种情况下,可认为含污染核素的烟羽已扩展到低层近地空气,其尺度远大于电子在空气中的射程和光子在空气中的平均自由程,因此,可将空气视为核素污染浓度恒定、且为均匀分布的无限大半球形的 β 或 γ 辐射体源。受照者则位于空气-地面的界面上。

根据能量守恒原理,无限大体源中源物质(空气)自身的吸收剂量率等于单位质量物质(空气)中所含的核素在单位时间内发出的辐射能量:

$$\dot{D}_a^a = K \frac{1}{\rho_a} \chi E \quad (9.3)$$

式中,

- \dot{D}_a^a ——空气的吸收剂量率, $\text{Gy}\cdot\text{s}^{-1}$;
- K ——换算因子, $1.6 \times 10^{-10}, \text{g}\cdot\text{Gy}\cdot\text{MeV}^{-1}$;
- χ ——空气中核素的污染浓度, $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;
- E ——核素每次核转变发出的能量, MeV ;
- ρ_a ——空气的密度, $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。

式(9.3)可改写为:

$$\dot{D}_a^a = \chi \cdot (\text{DF})_a^a \quad (9.4)$$

式中,

$$(\text{DF})_a^a = K \frac{1}{\rho_a} E \quad (9.5)$$

为空气中单位核素浓度所致空气的吸收剂量率,又称为空气吸收剂量转换因子,其量纲为 $(\text{Gy}\cdot\text{s}^{-1})/(\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3})$ 。

空气吸收剂量转换因子 $(\text{DF})_a^a$ 乘以光子或电子的组织-空气吸收剂量比、空气-地面之间界面所致的修正因子及组织-体表吸收剂量比,即可求得 β, γ 放射性核素空气浸没外照射当量剂量转移因子 $(\text{DF})_a^T$ 或有效剂量转换因子 $(\text{DF})_a$, 其量纲为 $(\text{Sv}\cdot\text{s}^{-1})/(\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3})$ 。

表 9.1 所示为某些核素的空气浸没外照射有效剂量转换因子 $(\text{DF})_a$ 值。

长期连续照射条件下,公众成员的浸没外照射年有效剂量为:

$$E_a = 3.15 \times 10^7 \bar{\chi} (\text{DF})_a S_F \quad (9.6)$$

式中,

- E_a ——空气浸没外照射年有效剂量, $\text{Sv}\cdot\text{a}^{-1}$;
- $\bar{\chi}$ ——空气中核素的年平均浓度, $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;
- S_F ——考虑公众成员在室外停留的时间份额(居留因子)及建筑物对辐射屏蔽作用导致的剂量降低因子,估算个人剂量时取为 0.7,估算集体剂量时取为 0.5。

表 9.1 空气浸没外照射有效剂量转换因子 $(\text{DF})_a [(\text{Sv}\cdot\text{s}^{-1})/(\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3})]$ ①,⑥

核 素	$(\text{DF})_a$	核 素	$(\text{DF})_a$
^3H	0	^{210}Pb	2.0×10^{-16}
$^{41}\text{Ar}^{②}$	6.1×10^{-14}	^{210}Po	6.1×10^{-19}
^{60}Co	1.5×10^{-13}	^{226}Ra	1.1×10^{-13}
$^{85}\text{Kr}^{②}$	3.5×10^{-16}	^{230}Th	4.1×10^{-16}
^{90}Sr	1.8×10^{-17}	^{234}U	3.4×10^{-16}
^{131}I	2.3×10^{-14}	^{238}U	2.5×10^{-15}
$^{133}\text{Xe}^{②}$	1.9×10^{-15}	^{239}Pu	4.2×10^{-18}
^{137}Cs	3.5×10^{-14}		

①表内数值仅适用于成人组;

②取自文献[4]。

9.2.2.2 地面沉积外照射剂量的估算

因气载流出物常规连续释放而沉积在地面上的 β 、 γ 放射性核素,可对站立于地面上的人造成外照射。这种情况下,可将地面视为核素污染浓度恒定,且呈均匀分布的无限大平面的 β 或 γ 辐射源,受照者则位于地面上。由于电子在空气中的射程很短,这种情况下,一般可不考虑其外照射剂量贡献。

如图 9.5 所示,一无限大光滑均匀污染的地面 σ 上单位面积浓度的 γ 放射性核素对其上方高度为 Z 的P点处造成的空气吸收剂量率为:

$$(DF)_{G,\gamma}^a(Z) = K \sum_i f_{i,\gamma} E_{i,\gamma} \int_{\sigma} \Phi_{\gamma}^a(r, E_{i,\gamma}) d\sigma \quad (9 \cdot 7)$$

式中,

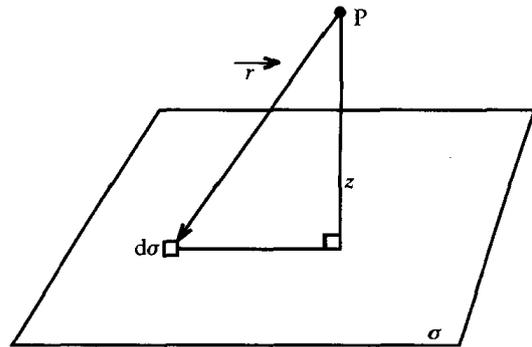
$(DF)_{G,\gamma}^a(Z)$ ——地面上单位面积浓度的 γ 核素所致P点处的空气吸收剂量率,又称为地面沉积空气吸收剂量转换因子, $(Gy \cdot s^{-1}) / (Bq \cdot m^{-2})$;

$f_{i,\gamma}$ ——核素每次核转变发出第 i 种能量为 $E_{i,\gamma}$ 的光子的份额;

$E_{i,\gamma}$ ——第 i 种光子的能量,MeV。

$\Phi_{\gamma}^a(r, E_{i,\gamma})$ ——地面上 $d\sigma$ 微面积源点发射的 γ 光子能量被距离 r 处单位质量空气吸收的份额。

进一步引入组织-空气吸收剂量比 $R_{i,\gamma}$ 及器官与体表组织吸收剂量比 $G_{\gamma}^T(E_{i,\gamma})$,不考虑人体对 γ 射线的自屏蔽作用,且 $Z = 1 \text{ m} = 100 \text{ cm}$, γ 射线的辐射权重因子为1,则可求得受照者体内器官或组织的当量剂量转换因子 $(DF)_{G,\gamma}^T$,并进一步求得全身有效剂量转换因子 $(DF)_G$ 。表 9.2 所示为某些核素的地面沉积外照射有效剂量转换因子值。



长期连续照射条件下,公众成员的地面外照射年有效剂量为:

$$E_G = 3.15 \times 10^7 C_G (DF)_G S_F \quad (9 \cdot 8)$$

式中,

E_G ——地面沉积外照射年有效剂量, $Sv \cdot a^{-1}$;

C_G ——土壤的等效面积污染浓度[见式(7.21)及式(7.22)], $Bq \cdot m^{-2}$;

$(DF)_G$ —— γ 放射性核素地面沉积外照射有效剂量转换因子, $(Sv \cdot s^{-1}) / (Bq \cdot m^{-2})$ 。

表 9.2 沉积外照射有效剂量转换因子 $(DF)_G [(Sv \cdot s^{-1}) / (Bq \cdot m^{-2})]^{[6]}$

核 素	$(DF)_G$	核 素	$(DF)_G$
^{60}Co	1.2×10^{-15}	^{226}Ra	9.6×10^{-16}
^{131}I	2.1×10^{-16}	^{230}Th	5.9×10^{-19}
^{137}Cs	3.2×10^{-16}	^{234}U	5.9×10^{-19}
^{210}Pb	9.8×10^{-19}	^{238}U	2.6×10^{-17}
^{210}Po	4.1×10^{-21}	^{239}Pu	5.9×10^{-20}

9.2.2.3 内照射剂量估算

通过食入或吸入途径进入人体的放射性核素,将分布于体内各个器官或组织。核素发生核转变发出的辐射贯穿能力较强时,体内任何一个器官或组织所吸收的辐射能量中,一部分来自其自身所含的放射性核素,另一部分则来自其它器官或组织中所含的核素;反之,辐射贯穿能力较弱时,器官或组织的吸收能量仅来自其自身所含的核素,其它器官或组织中核素的贡献可忽略不计。

内照射剂量估算时,凡吸收自身或其它器官、组织内核素的辐射能量的器官或组织统称为靶器官,凡含有一定量的某种核素,对自身或其它靶器官造成照射的器官或组织统称为源器官。显然,源器官同时也是一个靶器官。表 9.3 所示为内照射剂量估算中应考虑的一些源器官和靶器官,表中同时给出这些器官组织的质量。

表 9.3 内照射剂量估算中考虑的某些源器官和靶器官^{①,(5)}

靶器官		质量(g)		靶器官		质量(g)	
卵巢	11	下部大肠壁	160	卵巢	11	肾	310
睾丸	35	肾	310	睾丸	35	肝	1800
肌肉	28000	肝	1800	肌肉	28000	胰腺	100
红骨髓(RM)	1500	胰腺	100	红骨髓(RM)	1500	皮质骨	4000
肺	1000	皮肤	2600	肺	1000	小梁骨	1000
甲状腺	20	脾	180	甲状腺	20	皮肤	2600
骨表面(BS)	120	胸腺	20	胃内容物	250	脾	180
胃壁	150	子宫	80	小肠内容物	400	肾上腺	14
小肠壁	640	肾上腺	14	上部大肠内容物	220	膀胱内容物	200
上部大肠壁	210	膀胱壁	45	下部大肠内容物	135	全身	70000

① 除卵巢与子宫外,器官质量为成年男性的参考值。

放射性核素的核转变过程有多种类型,相应地分别发射 α 粒子、 β^- 粒子、 β^+ 粒子、X 或 γ 光子、内转换电子和伴随 α 发射的反冲原子。大多数核转变过程能同时发出一种以上的辐射,其中某一种辐射 i 的份额 f_i 的大小则与核的性质有关。

源器官中核素发出的辐射能量,将被体内各靶器官吸收(辐射贯穿能力很强时,也会有部分能量逸出体外),如将源器官 S 中所含某种核素发出的第 i 种辐射的能量被靶器官 T 吸收的份额记作 $AF(T \leftarrow S)_i$,则源器官 S 中该种核素发生一次核转变导致靶器官 T 吸收的能量可按下式计算:

$$d(T \leftarrow S) = \frac{K \sum_i f_i E_i AF(T \leftarrow S)_i}{M_T} \quad (9.9)$$

式中,

$d(T \leftarrow S)$ ——源器官 S 中某种核素一次核转变所致靶器官 T 的吸收剂量, Gy/核转变;

f_i ——核转变过程中核素发出第 i 种能量为 E_i 的辐射的份额;

E_i ——第 i 种辐射的能量,对连续能谱的 β 射线,可近似地取其平均能量 $\bar{E}_\beta \approx$

$$\frac{1}{3} E_{\beta}^{\max}。$$

M_T ——靶器官 T 的质量, g。

对上式中每一种辐射乘以相应的辐射权重因子 $W_{R,i}$, 即可求得靶器官 T 的当量剂量:

$$\begin{aligned} h(T \leftarrow S) &= \frac{K \sum_i f_i E_i AF(T \leftarrow S)_i W_{R,i}}{M_T} \\ &= K \sum_i SEE(T \leftarrow S)_i \\ &= K SEE(T \leftarrow S) \end{aligned} \quad (9 \cdot 10)$$

式中,

$h(T \leftarrow S)$ ——源器官 S 中某种核素一次核转变所致靶器官 T 的当量剂量, Sv/核转变;

$SEE(T \leftarrow S)_i$ ——第 i 种辐射所致靶器官 T 的比有效能量, MeV·g⁻¹/核转变;

$SEE(T \leftarrow S)$ ——源器官 S 中某种核素一次核转变所致靶器官 T 的比有效能量, MeV·g⁻¹/核转变。

实际上,放射性核素进入人体后,将在受照者一生中持续地给出辐射能量,如第 8 章所述,个人单次(或 1a 内)摄入放射性物质后,某一器官或组织所受到的当量剂量率(或年当量剂量)在其后 τ 期间的积分值称为该器官在 τ 期间的待积当量剂量 $H_T(\tau)$ 。设 $t=0$ 时刻人摄入 1 Bq 的某种放射性核素后,其在某一相关的源器官 S 中的初始活度为 $q_s(0)$,摄入后 t 时刻的有效滞留分数为 $r_s(t)$,则 t 时刻源器官 S 内滞留的活度为

$$q_s(t) = q_s(0) r_s(t) \quad (9 \cdot 11)$$

而 0— t 时间段内核素在源器官 S 内总共发生的核转变次数为

$$\begin{aligned} U_s(t) &= \int_0^t q_s(t) dt \\ &= q_s(0) \int_0^t r_s(t) dt \end{aligned} \quad (9 \cdot 12)$$

同理, a 年龄组人群中公众成员在开始摄入的第一年(t_a)内摄入 1 Bq 的某种核素后,在其后 τ 年内($\tau=70-t_a$, 70 为人的预期寿命)在源器官 S 内发生的核转变总次数为

$$\begin{aligned} U_s(\tau) &= \int_{t_a}^{t_a+\tau=70} q_s(t) dt \\ &= q_s(t_a) \int_{t_a}^{t_a+\tau=70} r_s(t) dt \end{aligned} \quad (9 \cdot 13)$$

于是,公众成员在 t_a 年 1 a 内摄入 1 Bq 的某种放射性核素后在此后一生内对靶器官 T 造成的待积当量剂量为

$$\begin{aligned} (DF)_a^T(S) &= h_{\tau}(T \leftarrow S) = U_s(\tau) h(T \leftarrow S) \\ &= K U_s(\tau) SEE(T \leftarrow S) \end{aligned} \quad (9 \cdot 14)$$

式中,

$(DF)_a^T(S)$ —— t_a 年 1 a 内摄入 1 Bq 某种放射性核素后靶器官 T 由源器官 S 接受照射的待积当量剂量, Sv·Bq⁻¹。

放射性核素往往分布在体内几个器官或组织中,因此,靶器官 T 往往受到多个源器官 S 的照射,其受到的总的待积当量剂量为:

$$(DF)_a^T = \sum_s (DF)_a^T(S) = K \sum_s U_s(\tau) SEE(T \leftarrow S) \quad (9 \cdot 15)$$

式中,

$(DF)_a^T$ —— t_a 年 1 a 内摄入 1 Bq 某种放射性核素后靶器官 T 受到的总的待积当量剂量, $Sv \cdot Bq^{-1}$ 。

对全身所有器官的待积当量剂量各乘以相应的组织权重因子 W_T 后求和,即可得到 t_a 年 1 a 内摄入 1 Bq 某种放射性核素后,在其后一生中全身的待积有效剂量

$$(DF)_a = \sum_T W_T (DF)_a^T = K \sum_T W_T \sum_s U_s(\tau) SEE(T \leftarrow S) \quad (9 \cdot 16)$$

式中,

$(DF)_a$ —— t_a 年 1 a 内摄入 1 Bq 某种放射性核素所致待积有效剂量, $Sv \cdot Bq^{-1}$ 。

显然,这样求得的 $(DF)_a$ 值与摄入时的年龄 a 有关,故又称为年龄相关待积有效剂量转换因子。

采用吸入和食入途径有关的参数,对式(9·16)分别进行计算,即可分别求得吸入和食入待积有效剂量转换因子 $(DF)_{h,a}$ 及 $(DF)_{g,a}$ 。

(1) 食入内照射剂量的估算 公众成员经饮水和食物途径摄入放射性核素后,除胃肠道受到照射外,由胃肠道进入体液而导致在其它器官或组织中的蓄积也会使这些器官组织受到照射。对于 γ 放射性核素而言,胃肠道与其它器官组织还互为靶器官和源器官而相互造成照射。

a 年龄组公众成员 t_a 年 1 a 内经饮水或食物途径摄入某种放射性核素后,在其一生(至 70 岁)中导致的待积有效剂量为:

$$E_{g,a} = 365 M_{g,a} (DF)_{g,a} \quad (9 \cdot 17)$$

式中,

$E_{g,a}$ —— a 年龄组公众成员 1 a 食入放射性核素的待积有效剂量, $Sv \cdot a^{-1}$;

365——1a 内的天数, $d \cdot a^{-1}$;

$M_{g,a}$ —— a 年龄组公众成员每天食入的核素量, $Bq \cdot d^{-1}$ 。

表 9.4 所示为不同年龄组的食入待积有效剂量转换因子。

表 9.4 不同年龄组的食入待积有效剂量转换因子 $(DF)_{g,a} (Sv \cdot Bq^{-1})^{(4)}$

核 素	年 龄 $a \leq 1$ 岁		f_1^D ($a > 1$ 岁)	1~2 岁	7~12 岁	>17 岁
	f_1	$(DF)_g$				
氟化水	1.000	6.4×10^{-11}	1.000	4.8×10^{-11}	2.3×10^{-11}	1.8×10^{-11}
OBT ^②	1.000	1.2×10^{-10}	1.000	1.2×10^{-10}	5.7×10^{-11}	4.2×10^{-11}
¹⁴ C	1.000	1.4×10^{-9}	1.000	1.6×10^{-9}	8.0×10^{-10}	5.8×10^{-10}
⁶⁰ Co	0.600	5.4×10^{-8}	0.100	2.7×10^{-8}	1.1×10^{-8}	3.4×10^{-9}
⁹⁰ Sr	0.600	2.3×10^{-7}	0.300	7.3×10^{-8}	6.0×10^{-8}	2.8×10^{-8}
⁹⁰ Y	0.001	3.1×10^{-8}	1.0×10^{-4}	2.0×10^{-8}	5.9×10^{-9}	2.7×10^{-9}
⁹⁵ Zr	0.020	8.5×10^{-9}	0.010	5.6×10^{-9}	1.9×10^{-9}	9.5×10^{-10}
⁹⁵ Nb	0.020	4.6×10^{-9}	0.010	3.2×10^{-9}	1.1×10^{-9}	5.8×10^{-10}

续表

核素	年龄 $a \leq 1$ 岁		$f_1^{\text{①}}$ ($a > 1$ 岁)	1~2 岁	7~12 岁	>17 岁
	f_1	(DF) _g				
¹⁰⁶ Ru	0.100	8.4×10^{-8}	0.050	4.9×10^{-8}	1.5×10^{-8}	7.0×10^{-9}
¹³¹ I	1.000	1.8×10^{-7}	1.000	1.8×10^{-7}	5.2×10^{-8}	2.2×10^{-8}
¹³⁷ Cs	1.000	2.1×10^{-8}	1.000	1.2×10^{-8}	1.0×10^{-8}	1.3×10^{-8}
¹⁴⁴ Ce	0.005	6.6×10^{-8}	5.0×10^{-4}	3.9×10^{-8}	1.1×10^{-8}	5.2×10^{-9}
¹⁴⁷ Pm	0.005	3.6×10^{-9}	5.0×10^{-4}	1.9×10^{-9}	5.7×10^{-10}	2.6×10^{-10}
²¹⁰ Pb	0.600	8.4×10^{-6}	0.200	3.6×10^{-6}	1.9×10^{-6}	6.9×10^{-7}
²¹⁰ Po	1.000	2.6×10^{-5}	0.500	8.8×10^{-6}	2.6×10^{-6}	1.2×10^{-6}
²²⁶ Ra	0.600	4.7×10^{-6}	0.200	9.6×10^{-7}	8.0×10^{-7}	2.8×10^{-7}
²³⁰ Th	0.005	4.1×10^{-6}	5.0×10^{-4}	4.1×10^{-7}	2.4×10^{-7}	2.1×10^{-7}
²³⁴ U	0.040	3.7×10^{-7}	0.020	1.3×10^{-7}	7.4×10^{-8}	4.9×10^{-8}
²³⁵ U	0.040	3.5×10^{-7}	0.020	1.3×10^{-7}	7.1×10^{-8}	4.7×10^{-8}
²³⁸ U	0.040	3.4×10^{-7}	0.020	1.2×10^{-7}	6.8×10^{-8}	4.5×10^{-8}
²³⁹ Pu	0.005	4.2×10^{-6}	5.0×10^{-4}	4.2×10^{-7}	2.7×10^{-7}	2.5×10^{-7}

①除幼儿外的各年龄组相应的 f_1 值所对应的元素化合物类型见文献[4]之表 II ~ IV;

②OBT: 有机束缚氡;

③2~7 岁, 12~17 岁两年龄组数据从略。

(2) 吸入内照射剂量的估算 因气载流出物常规连续释放而弥散分布于空气中的放射性核素, 可通过吸入途径对公众造成内照射。

被吸入人体内的放射性液体或固体, 在空气中均以气溶胶微粒形态存在, 气溶胶粒子的形状很不规则, 颗粒大小也各不相同, 其放射性活度和质量均呈现某种形式的谱分布。如果某个气溶胶粒子的活度或质量是上述谱分布中活度或质量的中值, 且它在空气中的沉降末速度与直径为 Φ 的一个单位密度球体相同时, Φ 即定义为具有上述谱分布的气溶胶粒子的放射性活度中值或质量中值空气动力学直径(分别以 AMAD 及 MMAD 表示, 单位为 μm)。

吸入放射性气溶胶后, 呼吸系统各部分会受到照射, 同时, 体内其它器官或组织也会受到照射, 这种照射一部分来自肺内沉积的核素, 另一部分则来自吸入物质从呼吸系统转移到身体其它器官或组织而造成的照射。

a 年龄组公众成员 t_a 年 1 a 内经吸入途径摄入某种放射性核素后, 在其一生中(至 70 岁)导致的待积有效剂量为:

$$E_{h,a} = 5.27 \times 10^5 R_a \bar{\chi} (\text{DF})_{h,a} \quad (9 \cdot 18)$$

式中,

$E_{h,a}$ —— a 年龄组公众成员 1 a 吸入放射性核素的待积有效剂量, $\text{Sv} \cdot \text{a}^{-1}$;

5.27×10^5 ——1a 内的分钟数, $\text{min} \cdot \text{a}^{-1}$;

R_a —— a 年龄组公众成员的呼吸率, $\text{m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$;

$\bar{\chi}$ ——空气的年平均污染浓度, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;

$(\text{DF})_{h,a}$ —— a 年龄组公众成员的吸入待积

有效剂量转换因子, $\text{Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$ 。

表 9.5 各年龄组的呼吸率 R_a , ($\text{m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$)⁽⁶⁾

1~2 岁	7~12 岁	>17 岁 ^①
2.66×10^{-3}	0.010	0.015

① 男女两性的平均值。

表 9.5 所示为不同年龄组的呼吸率, 表 9.6

所示为按 ICRP 新呼吸道模型及有关参数给出的不同年龄组的吸入待积有效剂量转换因子。

表 9.6 各年龄组的吸入待积有效剂量转换因子 $(DF)_{h,a}$ ($Sv \cdot Bq^{-1}$)^{①,④}

核素	类别	年龄 $a \leq 1$ 岁		f_1 ($a > 1$ 岁)	1~2 岁	7~12 岁	>17 岁
		f_1	$(DF)_h$				
氟化水	F	1.000	2.6×10^{-11}	1.000	2.0×10^{-11}	8.2×10^{-12}	6.2×10^{-12}
	M	0.200	3.4×10^{-10}	0.100	2.7×10^{-10}	8.2×10^{-11}	4.5×10^{-11}
	S	0.020	1.2×10^{-9}	0.010	1.0×10^{-9}	3.8×10^{-10}	2.6×10^{-10}
¹⁴ C	F	1.000	6.1×10^{-10}	1.000	1.7×10^{-10}	2.9×10^{-10}	2.0×10^{-10}
	M	0.200	8.3×10^{-9}	0.100	6.6×10^{-9}	2.8×10^{-9}	2.0×10^{-9}
	S	0.020	1.9×10^{-8}	0.010	1.7×10^{-8}	7.4×10^{-9}	5.8×10^{-9}
⁶⁰ Co	F	0.600	3.0×10^{-8}	0.100	2.3×10^{-8}	8.9×10^{-9}	5.2×10^{-9}
	M	0.200	4.2×10^{-8}	0.100	3.4×10^{-8}	1.5×10^{-8}	1.0×10^{-8}
	S	0.020	9.2×10^{-8}	0.010	8.6×10^{-8}	4.0×10^{-8}	3.1×10^{-8}
⁹⁰ Sr	F	0.600	1.3×10^{-7}	0.300	5.2×10^{-8}	4.1×10^{-8}	2.4×10^{-8}
	M	0.200	1.5×10^{-7}	0.100	1.1×10^{-7}	5.1×10^{-8}	3.6×10^{-8}
	S	0.020	4.2×10^{-7}	0.010	4.0×10^{-7}	1.8×10^{-7}	1.6×10^{-7}
⁹⁰ Y	M	0.001	1.3×10^{-8}	1.0×10^{-4}	8.4×10^{-9}	2.6×10^{-9}	1.4×10^{-9}
	S	0.001	1.3×10^{-8}	1.0×10^{-4}	8.8×10^{-9}	2.7×10^{-9}	1.5×10^{-9}
	F	0.020	1.2×10^{-8}	0.002	1.1×10^{-8}	4.2×10^{-9}	2.5×10^{-9}
⁹⁵ Zr	M	0.020	2.0×10^{-8}	0.002	1.6×10^{-8}	6.8×10^{-9}	4.8×10^{-9}
	S	0.020	2.4×10^{-8}	0.002	1.9×10^{-8}	8.3×10^{-9}	5.9×10^{-9}
	F	0.020	4.1×10^{-9}	0.010	3.1×10^{-9}	1.2×10^{-9}	5.7×10^{-10}
⁹⁵ Nb	M	0.020	6.8×10^{-9}	0.010	5.2×10^{-9}	2.2×10^{-9}	1.5×10^{-9}
	S	0.020	7.7×10^{-9}	0.010	5.9×10^{-9}	2.5×10^{-9}	1.8×10^{-9}
	F	0.100	7.2×10^{-8}	0.050	5.4×10^{-8}	1.6×10^{-8}	7.9×10^{-9}
¹⁰⁶ Ru	M	0.100	1.4×10^{-7}	0.050	1.1×10^{-7}	4.1×10^{-8}	2.8×10^{-8}
	S	0.020	2.6×10^{-7}	0.010	2.3×10^{-7}	9.1×10^{-8}	6.6×10^{-8}
	F	1.000	7.2×10^{-8}	1.000	7.2×10^{-8}	1.9×10^{-8}	7.4×10^{-9}
¹³¹ I	M	0.200	2.2×10^{-8}	0.100	1.5×10^{-8}	4.7×10^{-9}	2.4×10^{-9}
	S	0.020	8.8×10^{-9}	0.010	6.2×10^{-9}	2.4×10^{-9}	1.6×10^{-9}
	F	1.000	8.8×10^{-9}	1.000	5.4×10^{-9}	3.7×10^{-9}	4.6×10^{-9}
¹³⁷ Cs	M	0.200	3.6×10^{-8}	0.100	2.9×10^{-8}	1.3×10^{-8}	9.7×10^{-9}
	S	0.020	1.1×10^{-7}	0.010	1.0×10^{-7}	4.8×10^{-8}	3.9×10^{-8}
	F	0.005	3.6×10^{-7}	5.0×10^{-4}	2.7×10^{-7}	7.8×10^{-8}	4.0×10^{-8}
¹⁴⁴ Ce	M	0.005	1.9×10^{-7}	5.0×10^{-4}	1.6×10^{-7}	5.5×10^{-8}	3.6×10^{-8}
	S	0.005	2.1×10^{-7}	5.0×10^{-4}	1.8×10^{-7}	7.3×10^{-8}	5.3×10^{-8}
	M	0.005	2.1×10^{-8}	5.0×10^{-4}	1.8×10^{-8}	7.0×10^{-9}	5.0×10^{-9}
¹⁴⁷ Pm	S	0.005	1.9×10^{-8}	5.0×10^{-4}	1.6×10^{-8}	6.8×10^{-9}	4.9×10^{-9}
	F	0.600	4.7×10^{-6}	0.200	2.9×10^{-6}	1.4×10^{-6}	9.0×10^{-7}
	M	0.200	5.0×10^{-6}	0.100	3.7×10^{-6}	1.5×10^{-6}	1.1×10^{-6}
²¹⁰ Pb	S	0.020	1.8×10^{-5}	0.010	1.8×10^{-5}	7.2×10^{-6}	5.6×10^{-6}
	F	0.200	7.4×10^{-6}	0.100	4.8×10^{-6}	1.3×10^{-6}	6.1×10^{-7}
	M	0.200	1.5×10^{-5}	0.100	1.1×10^{-5}	4.6×10^{-6}	3.3×10^{-6}
²¹⁰ Po	S	0.020	1.8×10^{-5}	0.010	1.4×10^{-5}	5.9×10^{-6}	4.3×10^{-6}
	F	0.600	2.6×10^{-6}	0.200	9.4×10^{-7}	7.2×10^{-7}	3.6×10^{-7}
	M	0.200	1.5×10^{-5}	0.100	1.1×10^{-5}	4.9×10^{-6}	3.5×10^{-6}
²²⁶ Ra	S	0.020	3.4×10^{-5}	0.010	2.9×10^{-5}	1.2×10^{-5}	9.5×10^{-6}
	F	0.005	2.1×10^{-4}	5.0×10^{-4}	2.0×10^{-4}	1.1×10^{-4}	1.0×10^{-4}
	M	0.005	7.7×10^{-5}	5.0×10^{-4}	7.4×10^{-5}	4.3×10^{-5}	4.3×10^{-5}
²³⁰ Th	S	0.005	4.0×10^{-5}	5.0×10^{-4}	3.5×10^{-5}	1.6×10^{-5}	1.4×10^{-5}

续表

核素	类别	年龄 $a \leq 1$ 岁		f_1 ($a > 1$ 岁)	1~2 岁	7~12 岁	>17 岁
		f_1	(DF) _h				
²³⁴ U	F	0.040	2.1×10^{-6}	0.020	1.4×10^{-6}	8.0×10^{-7}	5.6×10^{-7}
	M	0.040	1.5×10^{-5}	0.020	1.1×10^{-5}	4.8×10^{-6}	3.5×10^{-6}
	S	0.020	3.3×10^{-5}	0.002	2.9×10^{-5}	1.2×10^{-5}	9.4×10^{-6}
²³⁵ U	F	0.040	2.0×10^{-6}	0.020	1.3×10^{-6}	7.5×10^{-7}	5.2×10^{-7}
	M	0.040	1.3×10^{-5}	0.020	1.0×10^{-5}	4.3×10^{-6}	3.1×10^{-6}
	S	0.020	3.0×10^{-5}	0.002	2.6×10^{-5}	1.1×10^{-5}	8.5×10^{-6}
²³⁸ U	F	0.040	1.9×10^{-6}	0.020	1.3×10^{-6}	7.3×10^{-7}	5.0×10^{-7}
	M	0.040	1.2×10^{-5}	0.020	9.4×10^{-6}	4.0×10^{-6}	2.9×10^{-6}
	S	0.020	2.9×10^{-5}	0.002	2.5×10^{-5}	1.0×10^{-5}	8.0×10^{-6}
²³⁹ Pu	F	0.005	2.1×10^{-4}	5.0×10^{-4}	2.0×10^{-4}	1.2×10^{-4}	1.2×10^{-4}
	M	0.005	8.0×10^{-5}	5.0×10^{-4}	7.7×10^{-5}	4.8×10^{-5}	5.0×10^{-5}
	S	1.0×10^{-4}	4.3×10^{-5}	1.0×10^{-5}	3.9×10^{-5}	1.9×10^{-5}	1.6×10^{-5}

① 类别 F、M、S 分别表示肺快速、中速和慢速吸收, f_1 为相应类别的组分由胃肠道向血液的转移份额, 各类别组分相应的化合物类型、吸收动力学模型及参数可参阅有关的 ICRP 报告^[4];

② 2~7 岁, 12~17 岁两年龄组数据从略。

9.2.3 事故释放所致公众受照剂量的估算

放射性流出物的事故释放大体可分为两种情况: ① 瞬时释放或环境条件基本不变的短期释放; ② 连续释放(几小时或几天内), 可能是接近均匀的连续释放, 也可能是非均匀的连续释放。对于非均匀的连续释放, 可将释放时间划分为几个较小的时段, 每一时段近似地按均匀释放处理。

连续释放的剂量估算, 可采用上述适用于常规释放的剂量公式, 对于瞬时或短期释放的剂量估算, 则应结合释放情况考虑某些特殊的因素。

9.2.3.1 烟羽外照射剂量的估算

对于气载流出物的短期地面释放, 可按类似于式(9.6)的公式估算无限大半球形体源对人的浸没外照射剂量

$$E_{a,t} = \psi_t (DF)_a S_F \quad (9.19)$$

式中,

$E_{a,t}$ ——从释放开始到某一时刻 t (如从现场撤离时间) 期间公众成员的浸没外照射有效剂量, Sv;

ψ_t ——同一期间内空气的时间积分浓度, $\text{Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$;

S_F ——考虑居留因子及屏蔽因子所致的剂量降低因子, 对最大受照个人取 1.0, 对群体取 0.7;

$(DF)_a$ ——浸没外照射有效剂量转换因子, $(\text{Sv} \cdot \text{s}^{-1}) / (\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3})$ 。

对于高位源短期释放, 可采用有限烟云团模式估算烟羽的 γ 外照射剂量, 图 9.6 为计算所相应的坐标系。

t_0 时刻高位瞬时排放某种 γ 放射性核素的总活度为 Q , 假设释放所形成的烟云团的中

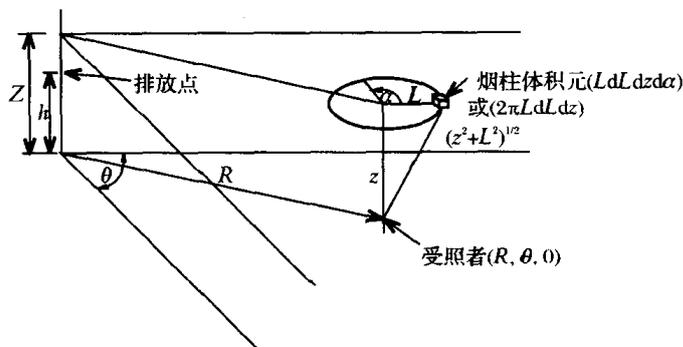


图 9.6 有限烟云团模式坐标系统

心在 $X-Z$ 平面内以与有效释放高度处平均风速 \bar{u} 相同的速度向下风向飘移,在释放后某一时刻 t 移至 $(\bar{u}t, 0, h)$ 点处。对于单次喷射式释放所形成的各向同性烟云团,可认为 $\sigma_x = \sigma_y = \sigma_z = \sigma_i$, 并假设地面为全反射,则受照者所在的 $(x, y, 0)$ 点处的空气吸收剂量为实源与像源所致剂量之和。若气载流出物在 t_r 时间段内以恒定的速率连续释放,则释放开始后不久烟云团将形成稳定连续的烟羽,其对地面上 (x, y) 点处造成的空气吸收剂量可按下式计算:

$$D_{a,t}^e(x, y) = \frac{1.79 \times 10^{-13} Q_t(x)}{x \bar{u}} \sum_i f_{i,\gamma} E_{i,\gamma} \mu_{a,i} I \quad (9 \cdot 20)$$

式中,

$D_{a,t}^e(x, y)$ ——整个释放期间 (x, y) 点处空气的吸收剂量, Gy;

x ——下风向距离, m;

\bar{u} ——释放期间有效释放高度处的平均风速, $m \cdot s^{-1}$;

$Q_t(x)$ ——距离 x 处对核素沉积和衰变导致的耗减进行修正后的 $0-t$ 期间虚设释放总量, Bq;

$\mu_{a,i}$ ——空气对能量为 $E_{i,\gamma}$ 的 γ 射线的线性吸收系数, cm^{-1} ;

I 为与 γ 射线能量 $E_{i,\gamma}$ 、释放高度 h 、稳定度 S 及弥散参数 σ_x 有关的吸收修正项

$$I = I_1 + KI_2 \quad (9 \cdot 21)$$

式中, $K = (\mu - \mu_a) / \mu_a$, 其中 μ 为空气对 γ 射线的总减弱系数(为吸收减弱系数 μ_a 与散射减弱系数 μ_s 之和, cm^{-1})。图 9.7 及图 9.8 所示为 I_1 及 I_2 的积分值, 图中空气减弱项采用 μ_h 表示(注意 μ 及 h 的量纲应取一致), 故直接采用此两图查得的 I_1 及 I_2 值计算得到的将为烟羽中心线下方($y=0$)的空气吸收剂量, 当 $y \neq 0$ 时, 可取 $S = (h^2 + y^2)^{1/2}$ 求得 μ_s 值取代图中 μ_h 查得相应的 I_1 及 I_2 值。

释放期间 (x, y) 点处公众成员所受烟羽的全身有效剂量为:

$$E_a \approx 0.7D_a^e \quad (9 \cdot 22)$$

显然, E_a 的量纲为 Sv。

当然, 亦可采用常规释放条件下空气浸没外照射剂量估算方法将 D_a^e 依次换算为生物物质的吸收剂量、体表组织吸收剂量、器官当量剂量和全身有效剂量。

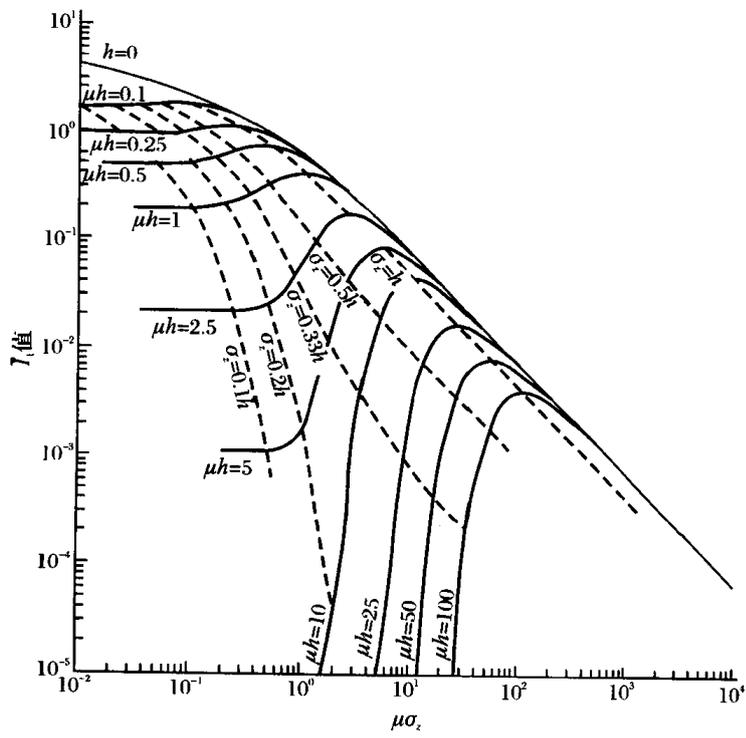


图 9.7 I_1 积分值

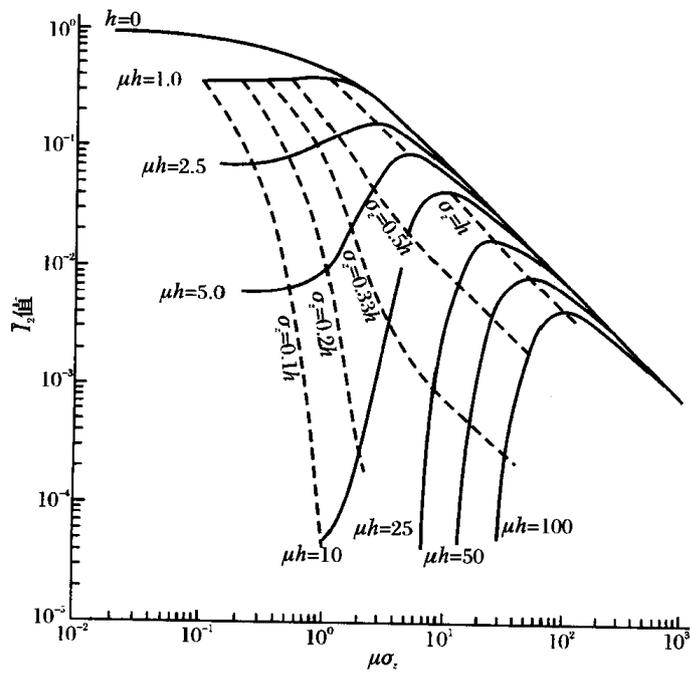


图 9.8 I_2 积分值

9.2.3.2 吸入内照射剂量的估算

从事故释放开始($t=0$)到 t 时刻期间 a 年龄组公众成员因吸入而受到的待积有效剂量为:

$$E_{h,a,t} = 1.67 \times 10^{-2} R_a \psi_t (DF)_{h,a} \quad (9 \cdot 23)$$

式中,

$E_{h,a,t}$ —— $0 \sim t$ 期间的吸入内照射待积有效剂量, Sv;

1.67×10^{-2} ——每秒钟相当的分钟数, $\text{min} \cdot \text{s}^{-1}$;

ψ_t —— $0 \sim t$ 期间空气的时间积分浓度, $\text{Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$ 。

9.2.3.3 地面沉积外照射的估算

在气载流出物事故释放停止以后, 释放过程中放射性核素的沉积所导致的地面污染将存在相当长的时期, 其污染浓度随核素的衰变及环境中其它清除过程而逐渐降低。一般情况下, 忽略释放期间地面污染的清除过程, 并取释放停止的时间 $t=0$, 此时的地面面积污染浓度为 $C_G(0)$, 则释放停止后第 t 年中公众所受到的地面外照射年有效剂量为:

$$\begin{aligned} E_G(t) &= 3.15 \times 10^7 \int_{t-1}^t S_F C_G(0) e^{-\lambda_e^G t} (DF)_G dt \\ &= \frac{3.15 \times 10^7 S_F C_G(0) (DF)_G}{\lambda_e^G} [e^{-\lambda_e^G(t-1)} - e^{-\lambda_e^G t}] \end{aligned} \quad (9 \cdot 24)$$

式中,

$E_G(t)$ ——事故释放停止后第 t 年中的地面外照射年有效剂量, $\text{Sv} \cdot \text{a}^{-1}$;

S_F ——考虑居留因子和建筑物屏蔽因子所致的剂量降低因子, 取常规释放对应的值, 即对个人取0.7, 对群体取0.5;

$C_G(0)$ ——释放停止($t=0$)时地面的面积污染浓度, $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$;

λ_e^G ——地面污染的有效清除速率常数, a^{-1} 。

9.2.3.4 食入内照射剂量的估算

事故释放造成公众成员的食入内照射剂量亦来自经饮水及食物途径摄入的放射性核素沉积导致的一次性污染食物(一般只考虑蔬菜)及释放停止后长期存在的土壤污染造成的食物污染。

事故期间饮水造成的食入内照射待积有效剂量可按下式计算:

$$E_{g,w,a} = C_W V_{w,a} (DF)_{g,a} e^{-\lambda_r t_p} \quad (9 \cdot 25)$$

式中,

$E_{g,w,a}$ ——事故期间饮水造成的 a 年龄组公众成员的食入内照射待积有效剂量, Sv;

C_W ——事故期间水源水的平均污染浓度, $\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$;

$V_{w,a}$ ——事故期间 a 年龄组公众成员的饮水量, L;

λ_r ——核素的物理衰变常数, h^{-1} ;

t_p ——从水源取水至被人饮用之间的时间间隔, 对个人取12h, 对群体取24h。

事故期间食用一次性污染的食物造成的内照射待积有效剂量为

$$E_{g,v,a} = C_V V_{v,a} (DF)_{g,a} (1 - n) \quad (9 \cdot 26)$$

式中,

- $E_{g,v,a}$ ——事故期间食入污染蔬菜造成 a 年龄组公众成员的内照射待积有效剂量, Sv;
- C_V ——事故期间蔬菜中核素的比活度, $Bq \cdot kg^{-1}$ (鲜重);
- $v_{v,a}$ ——事故期间 a 年龄组公众成员的蔬菜食用量, kg (鲜重);
- n ——蔬菜清洗造成的活度耗损, 一般取 0.5。

显然, 式中忽略了蔬菜不可食部分的影响。

由此, 可求得事故期间 a 年龄组公众成员总的食入内照射待积有效剂量

$$E_{g,a} = E_{g,w,a} + E_{g,v,a} \quad (9 \cdot 27)$$

事故释放停止后第 t 年 1 a 中经土壤—农作物—人途径造成 a 年龄组公众成员的食入内照射待积有效剂量可按下式计算

$$E_{g,p,a}(t) = \left[\frac{C_G(0) v_{p,a} B_v (DF)_{g,a}}{P} \times \frac{e^{-\lambda_e^G(t-1)} - e^{-\lambda_e^G t}}{\lambda_e^G} \right] \times e^{-\lambda_e t_h} \quad (9 \cdot 28)$$

式中,

- $E_{g,p,a}(t)$ ——事故释放停止后第 t 年 1 a 中 a 年龄组公众成员食用污染农作物造成的内照射待积有效剂量, $Sv \cdot a^{-1}$;
- $v_{p,a}$ —— a 年龄组公众成员对作物的年食用量, $kg(\text{鲜重}) \cdot a^{-1}$;
- B_v ——作物食用部分从土壤中吸收核素的浓集因子 ($Bq \cdot kg^{-1}$ (鲜重)) / ($Bq \cdot kg^{-1}$ (干土));
- P ——土壤的有效面积密度, $kg(\text{干土}) \cdot m^{-2}$;
- t_h ——作物从收获至食用之间的时间间隔, 对蔬菜, 个人与群体分别取 24 h 和 2 d, 对其它作物, 分别取 30 d 和 0.5 a。

采用类似的方法, 可估算事故释放停止后第 t 年 1 a 中食用动物类食物造成的内照射待积有效剂量。

9.2.4 公众受照剂量的评价

9.2.4.1 个人剂量的评价

采用上述剂量估算模式, 可分别估算正常情况下核设施放射性流出物 1a 内常规释放或事故情况下一次释放所致评价范围内各子区 (d)、各年龄组 (a) 人群所受每种核素 (m) 经由每种照射途径 (j) 受到的年有效剂量 (或一次事故释放导致的有效剂量) ${}_m E_{d,a,j}$ 或其器官组织 T 的年当量剂量 (或一次事故释放导致的当量剂量) ${}_m H_{d,a,j}^T$ 。

若仅对照射途径 j 求和, 可求得每种核素对各人群组照射剂量的贡献

$${}_m E_{d,a} = \sum_j {}_m E_{d,a,j}$$

$$\text{或} \quad {}_m H_{d,a}^T = \sum_j {}_m H_{d,a,j}^T \quad (9 \cdot 29)$$

其中相应于 ${}_m E_{d,a}$ 或 ${}_m H_{d,a}^T$ 最大值的核素为关键核素。

反之, 若仅对核素种类 m 求和, 则可求得每种照射途径对各人群组照射剂量的贡献

$$E_{d,a,j} = \sum_m E_{d,a,j}$$

$$\text{或} \quad H_{d,a,j}^T = \sum_m H_{d,a,j}^T \quad (9 \cdot 30)$$

其中相应于 $E_{d,a,j}$ 或 $H_{d,a,j}^T$ 最大值的途径为关键照射途径。

若同时对照射途径 j 及核素种类 m 求和,则可求得各人群组受到各种核素及各种照射途径所致照射剂量之总和

$$E_{d,a} = \sum_m \sum_j E_{d,a,j}$$

$$\text{或} \quad H_{d,a}^T = \sum_m \sum_j H_{d,a,j}^T \quad (9 \cdot 31)$$

其中相应于 $E_{d,a}$ 最大值的人群组为关键人群组,相应于 $H_{d,a}^T$ 最大值的器官为关键器官。

关键核素、关键照射途径和关键人群组的确定对于核设施流出物排放控制、环境监测计划的制订、辐射环境管理的重点确定都具有十分重要的意义。

按式(9·31)求得的关键人群组年有效剂量 E_{\max} 及当量剂量 H_{\max}^T 中,包括空气浸没及地面沉积外照射和食入及吸入内照射剂量的贡献。由上述对这四种照射途径剂量估算的有关模式可见,其中外照射的贡献为 1 a 内受照的有效剂量或当量剂量,而内照射的贡献则为 1 a 内吸入或食入放射性核素所致的待积有效剂量或待积当量剂量。核设施正常运行情况下,将关键人群组的年有效剂量视为核设施放射性流出物常规释放所致公众成员个人剂量的上限,就核电站的环境剂量控制而言,不能超过源相关个人剂量约束值 $0.25 \text{ mSv} \cdot \text{a}^{-1}$ 。

这种剂量评价方法意味着对关键人群组 1 a 内受到单个人工源导致的外照射剂量与当年来自该源的摄入量所致的待积剂量之和加以控制,以达到控制公众成员终生剂量累积的目的。

但是,将公众成员某 1 a 内所受外照射剂量与由于当年的摄入量而造成的待积剂量相加,作为公众成员 1 a 受到的剂量,从逻辑上讲是不恰当的,这是因为外照射剂量是当年实际受到的剂量,而内照射待积剂量则是“预付”的剂量,两者的内涵是不一致的。因此,这一方法反映了辐射防护与辐射环境管理目前所处的一种无奈境地。

即使在长期连续均匀释放的条件下,由于核设施释放的长寿命核素在环境中的积累,地面沉积外照射和食入内照射剂量都将逐年增高,因此,在这两项剂量估算中选择哪一年作为评价的代表年(即核素在环境物质中积累时间 t_b 的选择)对估算评价结果会有很大的影响。为此,有人提出将单个核设施 1 a 实践所导致关键人群组的剂量负担或截尾剂量负担作为公众个人年剂量的最终水平加以控制^[9],这一方法的基点是实现对源的控制,即控制核设施正常运行时 1 a 内向环境释放放射性核素的量,从而达到控制个人终生剂量累积及其后代未来照射的目的。

事故情况下关键人群组的平均有效剂量是放射性流出物一次事故释放所致公众成员个人剂量的上限,可作为核事故应急中各种干预措施选用的决策依据。

9·2·4·2 集体剂量的估算与评价

整个评价范围内各子区各年龄组人群的年有效剂量(当量剂量)或一次事故有效剂量(当量剂量)乘以相应年龄组的人数,可求得该人群组的年集体有效剂量(年集体当量剂量)

或一次事故所致的集体剂量,对所有年龄组 and 所有子区求和,即可求得整个评价范围内公众的年集体剂量或一次事故集体剂量

$$S_E = \sum_d \sum_a E_{d,a} \times N_{d,a}$$

或

$$S_H^T = \sum_d \sum_a H_{d,a}^T \times N_{d,a} \quad (9 \cdot 32)$$

式中,

S_E ——评价范围内全部公众成员的年集体有效剂量(人·Sv·a⁻¹)或一次事故集体有效剂量(人·Sv);

S_H^T ——评价范围内全部公众成员器官 T 的年集体当量剂量(人·Sv·a⁻¹)或一次事故集体当量剂量(人·Sv);

$N_{d,a}$ —— d 子区内 a 年龄组的人数。

一般情况下,核设施正常运行条件下流出物排放所致评价范围内公众的年集体有效剂量不超过 1 人·Sv·a⁻¹,关键人群组平均年有效剂量不超过 0.01mSv·a⁻¹(皮肤照射年当量剂量不超过 0.5mSv·a⁻¹)时,该实践可予以豁免。

9.3 辐射环境的健康危害评价和风险评价

一般情况下,以对人的防护为基础的辐射环境管理和流出物排放控制对于其它生物种群也提供了足够的保护,也就是说,在辐射环境管理中,只要将人受到的辐射影响控制在预定的可接受水平以下,大体上也就保护了其它生物和生态群落。因此,辐射环境影响评价的对象是人,是辐射环境对人的健康危害评价和风险评价。

在辐射防护和辐射环境管理中,常以辐射产生有害健康效应的发生概率等同于辐射危险。但在其它领域中,“危险”常具有其它一些含义,包括一些不严谨的含义,即一种不自愿接受的事件的威胁,这实际上包括事件发生的概率及其性质,这时,“危险”的含义已扩展为“风险”。反应堆安全分析中,“危险”常指意外事件后果的数学期望值,即事件发生概率与其后果(产生有害健康效应的概率)的乘积,这种双重概率的辐射环境影响评价又称为风险评价。

9.3.1 辐射环境的健康危害评价

只要不发生严重事故,核设施向环境有控制地释放放射性流出物对公众造成的照射是一种小剂量、低剂量率的长期慢性照射。这种照射条件下,辐射健康危害表现为随机性效应的发生,从而导致超额的辐射危害。如前所述,从辐射防护观点考虑,在尚未能确切地搞清小剂量范围内剂量-效应的精确关系的情况下,为了保护人类的健康和安全,可保守地认为小剂量照射引起的随机性效应中,致癌效应是辐射危害的主要组成部分,其剂量-效应关系是线性无阈的。因此,通过环境辐射剂量估算求得关键人群组的有效剂量和群体的集体剂量后,可根据线性无阈的剂量-效应关系,估算评价核设施放射性流出物释放对公众产生的超额辐射危害。

辐射所致的超额危险系数指发生有碍健康的效应的发生概率

$$R = 1 - \prod_{i=1}^N (1 - P_i) \approx \sum_i P_i \quad (9 \cdot 33)$$

式中, P_i 为发生第 i 种效应的概率, 对体内某一器官 T 的随机性效应的发生概率为:

$$P_T = r_T H_T \quad (9 \cdot 34)$$

式中,

r_T ——器官 T 发生严重疾患的概率系数(危险度), Sv^{-1} ;

H_T ——器官 T 所受的当量剂量, Sv 。

辐射对受照者总的健康危害的数学期望值为

$$G = \sum_T r_T H_T g_T \quad (9 \cdot 35)$$

其中包括了全身各器官发生致死性癌、非致死性癌及严重遗传效应的概率系数, 并对以各种疾患预期寿命损失为标志的严重程度采用相应的 g_T 值进行了加权修正。

表 9.7 为 ICRP 第 60 号报告给出的不同器官发生致死性癌的概率 F_T 、寿命损失的相对长度 l_T/\bar{l} 、非致死性癌的相对贡献 $(2 - K_T)$ 及每种器官对总危害的相对贡献 g_T 值。从表中所列数值可求得辐射对受照者总的健康危害的概率系数为:

表 9.7 各器官对总危害的相对贡献^{①, [3]}

器官 T	致死性癌症概率 $F_T(10^4 \text{ 人} \cdot Sv)^{-1}$	严重遗传效应 $(10^4 \text{ 人} \cdot Sv)^{-1}$	寿命损失 相对长度 l_T/\bar{l}	非致死性癌 相对贡献 $(2 - K_T)$	$F_T \times l_T/\bar{l} \times (2 - K_T)$ $(10^4 \text{ 人} \cdot Sv)^{-1}$	相对贡献 g_T
膀胱	30		0.65	1.50	29.4	0.040
骨髓	50		2.06	1.01	104.0	0.143
骨表面	5		1.00	1.30	6.5	0.009
乳腺	20		1.21	1.50	36.4	0.050
结肠	85		0.83	1.45	102.7	0.141
肝	15		1.00	1.05	15.8	0.022
肺	85		0.90	1.05	80.3	0.111
食道	30		0.77	1.05	24.2	0.034
卵巢	10		1.12	1.30	14.6	0.020
皮肤	2		1.00	2.00	4.0	0.006
胃	110		0.83	1.10	100.0	0.139
甲状腺	8		1.00	1.90	15.2	0.021
其余器官	50		0.91	1.29	58.9	0.081
性腺		100	1.33	-	133.3	0.183
总计	500	100	-	-	725.3	1.000

① 性腺中不包括卵巢癌。

$$r = \sum_T F_T \left(\frac{l_T}{\bar{l}}\right) (2 - K_T) = 7.3 \times 10^{-2} Sv^{-1} \quad (9 \cdot 36)$$

其中, 致死性癌的概率系数为

$$r_1 = \sum F_T (\text{不包括性腺}) = 5 \times 10^{-2} Sv^{-1} \quad (9 \cdot 37)$$

严重遗传效应的危害概率系数为

$$r_2 = F_{\text{性腺}} \times \left(\frac{l_{\text{性腺}}}{7}\right) = 1.3 \times 10^{-2} \text{ Sv}^{-1} \quad (9 \cdot 38)$$

由此,非致死性癌等效死亡的危害概率系数为

$$r_3 = r - r_1 - r_2 = 1.0 \times 10^{-2} \text{ Sv}^{-1} \quad (9 \cdot 39)$$

可见, r, r_1, r_2, r_3 即为辐射诱发随机性效应的标称(危害)概率系数(表 8·5)。因此,式(9·35)可改写为

$$\begin{aligned} G &= (r_1 + r_2 + r_3) E \\ &= rE \end{aligned} \quad (9 \cdot 40)$$

式中, E 为受照者所受到的有效剂量, Sv 。按此式即可求得与关键人群组年有效剂量相应的个人 1 a 受照而导致的终生健康危害概率的增量。

9·3·2 辐射环境风险评价

随着“核能是一种清洁、安全的能源”这一论断逐渐被人们认识、理解和接受,核动力在世界能源生产中所占的份额日趋增高。毋庸讳言,核设施同样存在着突发性灾难事故发生的潜在可能,特别是 1986 年前苏联切尔诺贝利核电站事故,在人类历史上造成了继广岛、长崎核爆之后又一次严重的核灾难,促使人们逐渐认识并关心对核设施重大突发性事故造成环境危害的评价问题。

核事故对公众的照射是一种可能发生又不一定会发生的潜在照射,对这种潜在照射所伴随的危险的评价,不仅要考虑事故一旦发生后可能产生的后果(事故照射对关键人群组的有效剂量,对群体的集体剂量以及相应的健康危害估计),也要考虑各类事故发生的概率。由于事故照射的后果是以一定的照射量相应的有害健康效应的发生概率(如癌致死概率)表示的,因此,核设施事故的环境影响则以事故发生概率与事故发生后产生有害效应的概率的乘积表示,这种双重概率的环境危险评价称为辐射环境风险评价。

9·3·2·1 基本概念和评价程序

各种事故 i 的发生概率 P_i 与相应的环境后果(健康危害) G_i 的乘积之总和称为风险,对个体为:

$$R = \sum_i P_i G_i = \sum_i P_i r E_i \quad (9 \cdot 41)$$

对群体为:

$$R = \sum_i P_i G_i = \sum_i P_i r S_{E,i} \quad (9 \cdot 42)$$

上两式中,

R ——源相关的辐射环境风险, $(\text{堆} \cdot \text{年})^{-1}$;

P_i ——第 i 种事故的发生概率, $(\text{堆} \cdot \text{年})^{-1}$

G_i 为第 i 种事故环境健康危害的数学期望值,对个体, $G_i = r E_i$;对群体, $G_i = r S_{E,i}$,其中 E_i 为预示的关键人群组有效剂量(Sv), $S_{E,i}$ 为相应的集体有效剂量预示值($\text{人} \cdot \text{Sv}$), r 为辐射诱发随机性效应的标称概率系数(Sv^{-1})。当预示的个人受照剂量超过某一确定性效应的阈剂量时,则可根据相应效应的中点剂量 $\text{LD}_{50/60}$ 值估计因发生效应而死亡的概率。

如图 9.9 所示,一个完整的风险分析评价程序可分为危害识别、事故概率分析及后果的

估计、风险估计和风险减缓四个阶段。图 9.10 及图 9.11 所示为核设施概率风险评价(也称为概率安全评价)及其中第三级概率后果评价的结构框图。表 9.8 所示为环境风险评价与正常工况环境影响评价的主要差异。

9.3.2.2 源项分析

(1) 危害识别 一般说来,一个核设施内往往有某一部分比较容易发生事故,因此,作为风险分析的第一步,首先将整个设施分解为若干子系统,以确定哪些部分或部件最可能成为失去控制的危险来源及其可能发生的危险种类(核素的短期大量释放、爆炸或火灾);其次确定系统中危险的具体来源;最后,通过对各种危险的筛选,确定风险研究的范围。

表 9.8 事故风险评价与正常工况环境影响评价的主要不同点

项 目	事故风险评价	正常工况环境影响评价
分析重点	突发事件	正常运行工况
持续时间	很短	很长
应计算的物理效应	火、爆炸,向空气和地面水体释放污染物	向空气、地面水和地下水释放污染物,噪声和热污染等
释放类型	瞬时或短时间连续释放	长时间连续释放
应考虑效应类型	突发激烈的效应和事故后期的长远效应	连续、累积的效应
主要危害受体	人和建筑物	人和生态
危害性质	急性、灾难性危害	慢性危害
大气弥散模式	烟团模式,分段烟羽模式	连续烟羽模式
照射时间	很短	很长
源项的确定度	较大的不确定度	不确定度很小
评价方法	概率方法	确定论方法
防范应急措施	需要	不需要

(2) 事故源项分析 控制系统失效、回路冷却系统失效、堆芯温度或中子通量信号传递系统失效等各种初始事件的发生可能导致堆芯出现过热状态,这时,如能及时启动紧急安全干预系统(如打开安全阀、启用应急冷却系统以至紧急停堆),可防止事态的进一步发展;反之,则可能导致燃料元件熔化破裂及放射性核素短期大量释放,如安全壳完整性欠佳,则可能造成严重的环境污染事故。由此可见,事故发生的概率取决于各种初始事件的发生概率及其以不同组合同时发生的概率,为此,常用故障树分析方法系统地描述导致设施出现通常称为顶事件的某一特定状态的所有可能的故障。顶事件可以是一事故序列,也可以是风险定量分析中认为重要的任一状态,通过故障树分析,可估算出某一顶事故的发生概率。

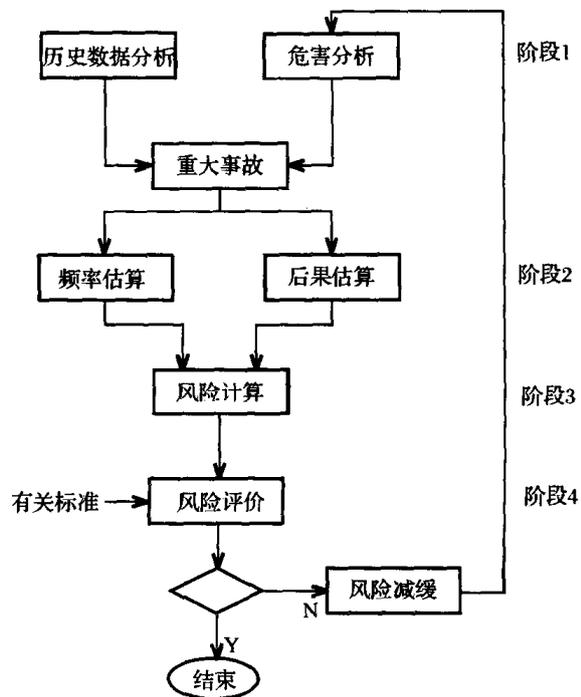


图 9.9 风险分析评价程序

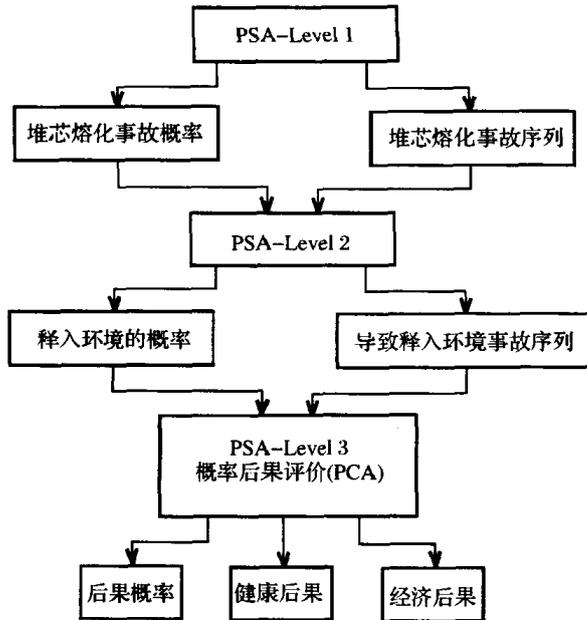


图 9.10 核设施概率风险评价结构框图

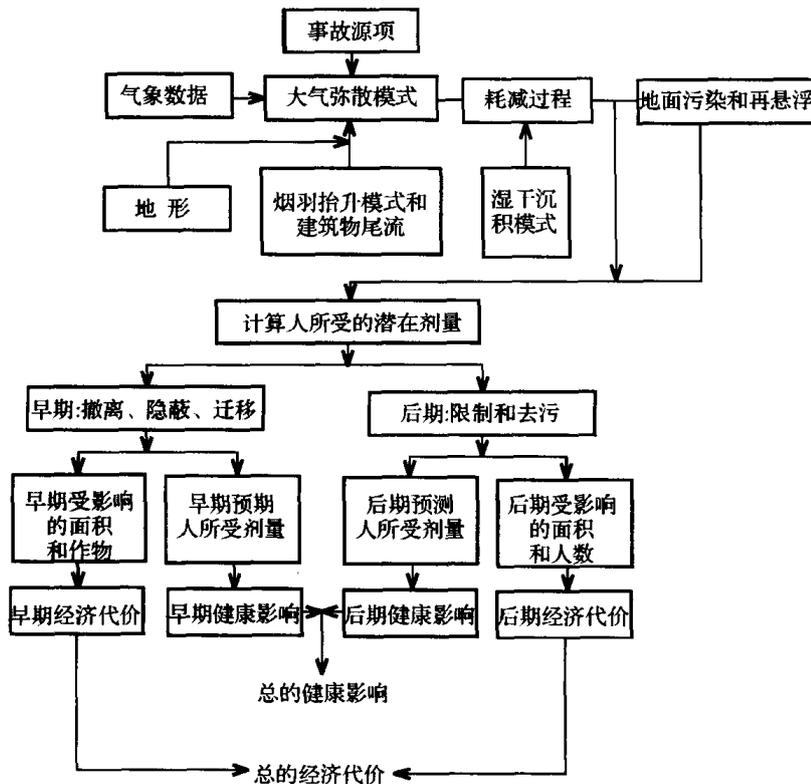


图 9.11 核设施事故概率后果评价结构框图

故障树分析只能给出顶事件发生的概率,确定事故的其它性质则需要进行事件树分析。图 9.12 所示为核电站风险分析中考虑的设计基准事故(失冷事故,即一回路管道破裂)的基本事件树,表明了所有可能发生的事件。其中第一个分支考虑电源的状况,如电源没有丧

失,则转而考虑堆芯应急冷却系统,该系统如果失效,将导致燃料元件熔化,并视安全壳的完整程度,将有不同数量的裂变产物核素释放到环境中去。分析了整个事件树之后,即可得到不同事故链发生的概率与相应的核素释放量分布谱。相应于轻水堆核电站不同应急等级的各种反应堆事故状态一旦出现可能导致的核素释放量及预期发生概率见表 11.3。

事故源项的确定是很复杂的,故障树中各种初始事件的发生概率也很难估算,因此,实际评价中往往通过对本单位或其它同类设施运行史上已发生的各类事故的调查分析确定事故的发生概率,有些事故的源项则是在事故发生后,根据当时的监测资料及天气条件,采用模式推算而求得。表 9.9 为 IAEA 估计的切尔诺贝利核电站事故的源项数据。

表 9.9 切尔诺贝利核电站事故源项数据^[14]

时间间隔	¹³⁷ Cs(TBq·d ⁻¹)	¹³¹ I(TBq·d ⁻¹)	有效烟羽高度(m)
0~24h,1986.4.26	2.2×10 ⁴	1.9×10 ⁵	600
0~24h,1986.4.27	7.0×10 ³	5.5×10 ⁴	600
0~24h,1986.4.28	5.5×10 ³	4.1×10 ⁴	300
0~24h,1986.4.29	4.1×10 ³	2.8×10 ⁴	300
0~24h,1986.4.30	3.0×10 ³	1.9×10 ⁴	300
0~24h,1986.5.1	3.0×10 ³	1.7×10 ⁴	300
0~24h,1986.5.2	5.5×10 ³	2.8×10 ⁴	300
0~24h,1986.5.3	6.3×10 ³	3.0×10 ⁴	300
0~24h,1986.5.4	8.1×10 ³	3.5×10 ⁴	300
0~24h,1986.5.5	8.9×10 ³	3.6×10 ⁴	300
0~24h,1986.5.6	1.1×10 ²	7.4×10 ²	300

9.3.2.3 放射性核素在大气中的弥散

对正常运行的环境影响评价,主要采用高位点源连续释放的高斯模式。事故风险分析中,核素的释放往往是短时间内的突然释放或较长时间内的分段释放,故应采用烟团模式、多烟团模式或分段烟羽模式估算空气的时间积分浓度或瞬时浓度。

瞬时释放形成的烟团所致下风向(x,y,0)处空气污染浓度可按下式计算:

$$\chi(x,y,0) = \frac{2Q}{(2\pi)^{3/2} \sigma_x \sigma_y \sigma_z} \exp\left[-\frac{(x-x_0)^2}{2\sigma_x^2}\right] \exp\left[-\frac{(y-y_0)^2}{2\sigma_y^2}\right] \exp\left[-\frac{z_0^2}{2\sigma_z^2}\right] \quad (9.43)$$

式中,

$\chi(x,y,0)$ ——下风向(x,y,0)处近地空气污染浓度, Bq·m⁻³;

x_0, y_0, z_0 ——烟团中心点的坐标, m;

Q ——事故释放的核素总活度, Bq。

持续时间较长的事释放往往影响下风向几十公里甚至几百上千公里,因此,必须考虑运输、弥散过程中天气条件(风向、风速、稳定度)的变化。变天气条件采用的多烟团模式的基本出发点是将释放运输时间分为若干段,假定一个时间段内释放形成一个烟团,且天气条件保持不变,按每一时段的天气条件计算每个烟团在不同时刻对周围环境某一点处空气污染浓度的贡献,并对每个烟团的贡献进行叠加,即可求得整个释放期间该点处空气的时间积分浓度。

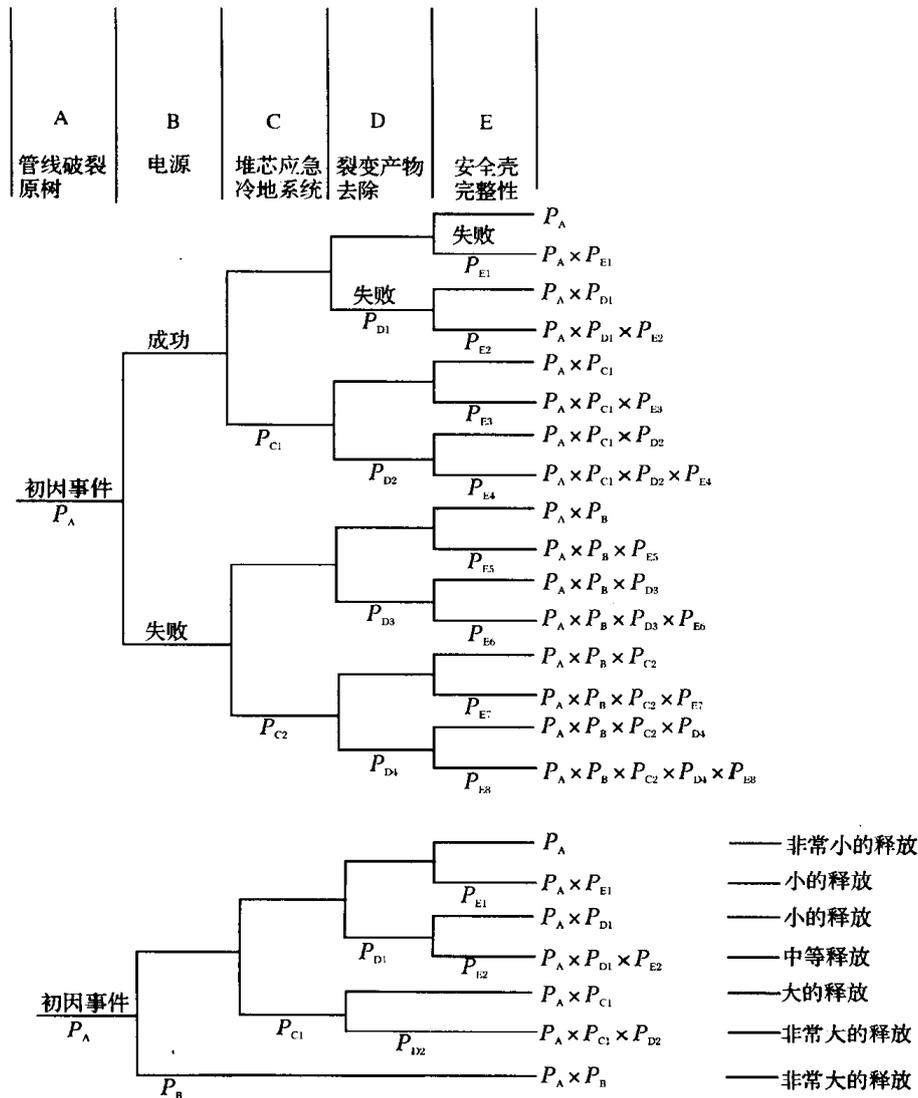


图 9.12 核电站失冷事故事件树

事故发生时的天气条件也完全是随机的,其对事故释放影响的估计应采用相应的天气取样技术,根据全年气象资料,通过统计分析求得不同特征的天气序列的出现次数和频率,以求得不同概率水平的天气条件下相应的空气污染浓度估计值。

9.3.2.4 风险的估计

根据不同发生概率的事故源项数据及不同累积概率水平的天气条件下的弥散计算结果,采用前述事故释放所致公众受照剂量的估算模式及健康危害估算模式,即可求得相应于不同发生概率的事故释放所致公众受照剂量、健康危害及相应的发生概率。对各种事故的危害求和,即可求得核设施潜在的辐射环境风险,这样求得的事事故率风险分析的最终结果可以个人风险及社会风险两种形式表示。

个人风险是指在核设施附近某一特定地点长期生活而未采取任何防护措施的公众成员受事故辐射危害的概率水平($\sum_i P_i r E_i$),如上所述,此危害概率以终生可归因死亡概率表示。显然,个人风险水平与其生活地点与核设施之间的距离有关。如将不同地点处公众成员的

风险估计值用某种形式的等值线图表示,则可确认设施周围哪些区域范围内需要预先采取减少风险的防范、应急措施。

社会风险描述事故发生概率与其造成人员伤亡数的相互关系,因此需要有人口统计资料。社会风险的大小常用“余补累积概率分布”或“余补累积分布函数”表示。

9.4 评价模式不确定度的估计

辐射环境影响评价采用各种数学模式描述放射性核素在环境中的输运、弥散和迁移,估算公众受照剂量,估计其伴随的健康危害和环境风险。模式中用以定量表示核素在空气、水、土壤、食物及人体组织之间转移关系的数值称为模式参数,评价结果则用以对核素向环境释放的可接受性判断,必然影响核设施的设计、许可证申领以及防护、应急措施的选定决策。

许多评价过程中偏向于采用一些保守的假设,如估算公众成员的个人受照剂量时,假设关键人群永久地居留于环境污染最严重的地点,对其行为习惯及膳食习性也作了一系列最不利的假定,因此,模式估算的预示剂量往往过高地估计了实际受照剂量。即使如此,许多情况下预示剂量仍大大低于有关标准设定的剂量控制限值或约束值。根据将照射剂量和辐射健康危害降低到可合理达到的尽可能低的水平这一原则(ALARA原则),辐射环境影响评价应尽可能摒弃太保守的假设,但这又将增加低估实际受照剂量的可能性,因此,对评价模式的不确定度应有恰当的估计。

任何评价模式都具有不确定性,都只能近似地描述现实环境中的各种现象。模式不确定度的基本来源是参数值的误差(参数偏差)、模式方程的误差(模式偏差)及随机采样测量及自然变异导致的参数值变异(参数变异)。

对某一特定环境及释放条件得到的模式及参数值用于对条件差别很大的另一种场合进行评价时,模式预示结果的可信度即大大降低。例如,采用按短期的实验观测结果导出的模式预测长期以至遥远未来的辐射效应;对平坦地区进行近距离弥散实验得到的空气浓度计算公式用于复杂地形及远距离弥散的空气浓度估计;对温室中少数几种盆栽植物测得的植物/土壤浓集因子值用于各种不同现场条件下植物中核素浓度的估计,都会对模式预示结果造成很大的误差。

到目前为止,环境影响评价仍大多采用单值参数模式,忽略了参数值估计不确定度及系统变异的影响,这也会对模式预示结果造成相当大的误差。采用概率模式及具有一定数值分布范围及相应分布概率的参数进行环境影响评价,预示结果亦将具有一定的分布范围及分布概率,这将大大提高模式预示结果的可信度。

9.4.1 不确定度分析范围的确定

辐射环境影响评价模式涉及为数众多的放射性核素、多种照射途径及有关的参数,模式不确定度估计不可能、也不必要对其中每一种核素、每一种照射途径及每一个参数逐一进行分析,首先应合理地确定不确定度分析的范围。

9.4.1.1 核素种类及照射途径的筛选

按给定模式及有关参数的设定值求得各种核素及照射途径所致公众受照剂量(或危害)

后,即可按不同核素及照射途径相应的预示值占相应控制限份额的大小,确定其相对重要性。显然,贡献份额较大的核素及照射途径,其估算结果的不确定度是总预示结果不确定度的主要来源;反之,贡献份额较小的核素与照射途径,则可从不确定度分析过程中剔除。

对核素种类及照射途径进行筛选时,对于按偏保守假设为依据的模式,参考剔除份额可定得大些;反之,对于以非保守假设为依据的模式,参考剔除份额应定得小些。

9.4.1.2 参数的灵敏度分析

参数对模式不确定度贡献的大小可由参数灵敏度分析确定,其基本方法是依次对每个参数的设定值取一微小的数值增减,而其它参数仍保持原先的设定值,以定量估计这一微小的参数值增减对模式预示值大小变动的的影响。由此可排出模式中各参数的灵敏度大小顺序,选取若干灵敏度较大的参数进一步作不确定度分析,进而估计模式预示值的不确定度。

对于稳定平衡模式,参数 $F_{i,j}$ 的灵敏度指数以参数值变化 1% 所致预示值 P 变化的相对百分数表示:

$$S(F_{i,j}) = \frac{F_{i,j} \partial P}{P \partial F_{i,j}} \quad (9 \cdot 44)$$

式中,

$S(F_{i,j})$ ——参数 $F_{i,j}$ 的灵敏度指数;

$F_{i,j}$ ——核素由隔室 j 向隔室 i 的转移系数;

P ——由参数 $F_{i,j}$ 的设定值求得的模式预示值;

$\partial F_{i,j}$ ——参数 $F_{i,j}$ 的数值变化,常取 1% 的 $F_{i,j}$ 值;

∂P ——参数 $F_{i,j}$ 值增减 $\partial F_{i,j}$ 所致模式预示值的变化。

对于预示值为各参数值乘积的相乘模式,每个参数按设定值相同的份额增减进行灵敏度分析,得到的结论必然是各参数具有相同的灵敏度。这种情况下,可通过文献调研确定各参数值的预期变化范围,依次对每个参数取预期的最大值与最小值,而其它参数仍保持原先的设定值,分别求得模式预示值相应的最大值和最小值,以求得各参数的灵敏度指数。这种方法求得的灵敏度指数又称为离散度指数。

$$E(F_{i,j}) = 1 - \frac{P(F_{i,j}^{\min})}{P(F_{i,j}^{\max})} \quad (9 \cdot 45)$$

式中,

$E(F_{i,j})$ ——参数 $F_{i,j}$ 的离散度指数;

$P(F_{i,j}^{\min})$ ——由参数 $F_{i,j}$ 的最小值 $F_{i,j}^{\min}$ 求得的模式预示值;

$P(F_{i,j}^{\max})$ ——由参数 $F_{i,j}$ 的最大值 $F_{i,j}^{\max}$ 求得的模式预示值。

显然,参数的灵敏度(离散度)分析也有助于对核素种类及照射途径的筛选。

9.4.2 模式的可靠性检验

模式预示值不确定度分析最可靠的方法是通过现场实验测量检验模式的可靠性,对模式可靠性有多种不同的解释。从实用角度考虑,只要模式预示结果达到一定的可接受的精确度,便可认为是可靠的。当然,可接受的模式精确度也是主观设定的,应视不同情况而异。

如前所述,现有的辐射环境影响评价模式均采用单值参数的定值模式,对一种释放核

素、一种照射途径及一个靶器官只给出单一的剂量(或危害)预示值。但是,实际情况下核素的释放量、环境物质的污染浓度及群体中个人的行为与生理参数都是变异量。因此,模式可靠性检验实质上是单一的模式预示值与具有一定变异范围的现场实验观测值之间的对比评价(图 9.13)。

9.4.2.1 P/O 比概率密度分布的分析

将图 9.13 中的模式预示值 P 除以相应的观测值分布,可得到模式预示值与观测值之间比值(P/O 比)的概率密度分布曲线(图 9.14),可用以估计模式偏差及系统变异所致模式预示结果不确定度

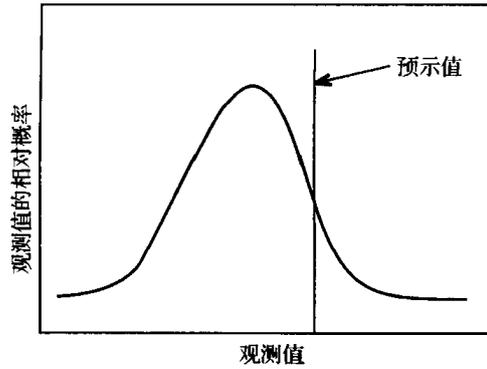


图 9.13 模式预示值及观测值分布曲线

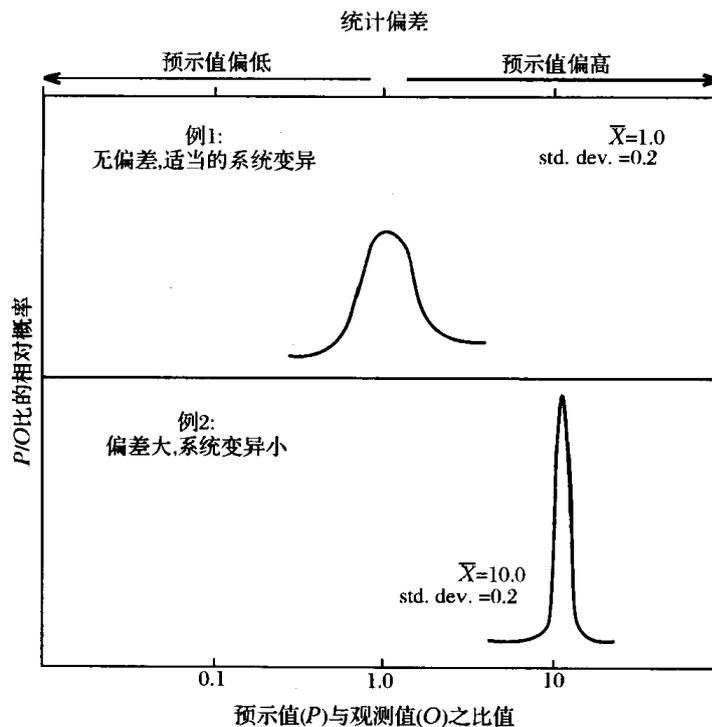
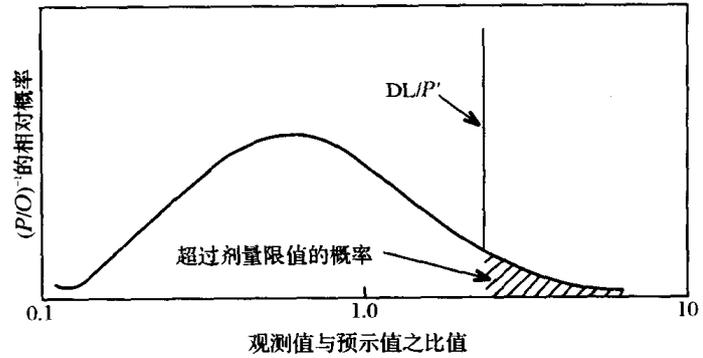


图 9.14 P/O 比分布曲线在模式偏差和系统变异估计中的应用

的大小。其中, P/O 比的几何均值反映模式偏差的大小, P/O 比分布曲线的标准差则反映系统变异的大小。例如,图 9.14 中上图表示 P/O 比的几何均值为 1,标准偏差为 0.2,这意味着不存在模式偏差,而系统变异所致预示值误差范围为 20%,显然,这种情况表明所采用的模式对该系统的预示结果是可信的。下图则表示 P/O 比的几何均值为 10,标准偏差为 0.2,这意味着模式偏差导致预示值对该系统过高估计高达 10 倍,而系统变异所导致的误差范围仅为 2%,这种情况表明应对模式结构进行必要的检验及修正。当然,也可将预示值除以 10,以对模式偏差进行校正,校正后模式预示值的不确定度则主要来自系统变异。

对核设施的辐射环境影响评价,要求模式预示值不得高于规定的限值(如不得超过对该设施规定的公众受照剂量约束值),而且一般认为如预示值低于限值的 0.1 倍,可认为符合

辐射环境管理法规要求;如预示值在限值的 0.1~1 倍范围内,则需进一步确定该模式预示结果的不确定度是否可以接受。为此,可由观测值与预示值之比值(O/P 比)的概率密度分布曲线(图 9.15),求得模式预示值不超过剂量管理目标值(DL)的概率。



$$\int_0^{DL/P'} f(O/P)d(O/P) \geq 1 - Y$$

(9.46)

图 9.15 O/P 比分布曲线在模式不确定度估计中的应用

式中,

DL/P'——对给定系统的剂量约束值 DL 与模式预示值 P' 的比值;

f(O/P)——O/P 比的概率密度分布函数;

Y——可接受的超过剂量约束值的概率。

9.4.2.2 相关性分析

模式可靠性检验的另一种方法是在一系列不同的系统条件下,对模式预示值与观测值进行对比,在两者之间进行相关性分析。预示值与观测值之间如具有明显的相关性,说明模式能良好地反映系统条件变化所导致的观测值的变化;反之,两者之间如相关性不明显,则表明系统条件的某些变化未能在模式中得到恰当的反映,造成这种后果的原因有模式结构及参数方面的缺陷,也可能是系统本身具有较大的变异。

有的情况下,模式预示结果与观测值之间虽有较大的差异,但两者之间却具有明显的相关性(图 9.16),这时,只要将模式预示值用一个常数(校正因子)进行校正,即可得到良好的模式可靠性。

9.4.2.3 可靠性检验的局限性

模式可靠性检验要求在各种系统条件下进行一系列现场实验和测量,这将消耗很多时间和大量的人力物力,因此,检验往往只能局限于模式中某些局部、较短的时间和少数几个观测点。许多情况下,由于实际的环境浓度和公众受照剂量都很低,用现场观测结果进行模式可靠性检验几乎是不可能的。

当然,也可以利用核设施运行中的常规环境监测结果进行模式可靠性检验,但大部分常规监测数据只能提供是否符合有关浓度控制限值的信息,要用于模式可靠性检验,常规监测的采样技术、实验方法及仪器探测限都有待改进。

9.4.3 参数的不确定度分析

当缺乏模式可靠性检验所必需的现场实验观测资料时,只要模式本身的偏差不是很大,可由参数不确定度分析估计模式预示值的不确定度,其基本方法是通过初步筛选确认需要进行不确定度分析的参数,估计其数值的概率密度分布,由此得到模式预示值的概率密度分布,并将其与模式估算给出的定值预示结果或相应的管理目标值对比,以估计模式预示值可能的误差范围或实际结果超过管理目标值的概率。参数不确定度分析还可估计各参数不

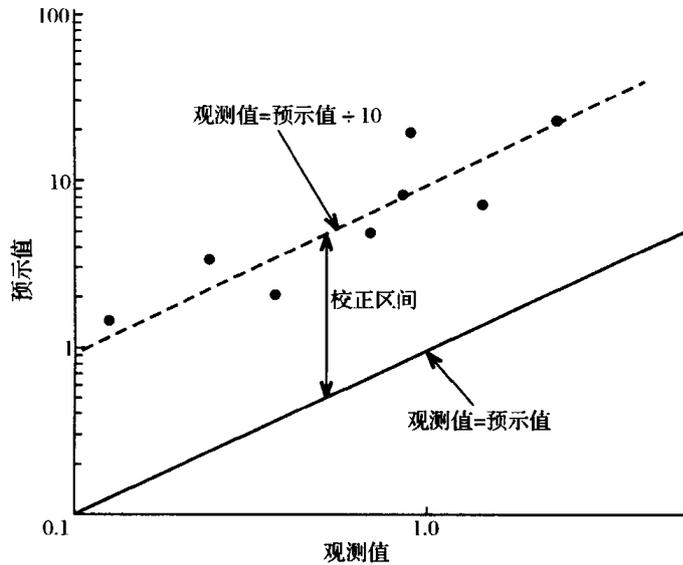


图 9.16 模式预示值与观测值相关性示意图

确定度对模式预示结果总的不确定度的相对贡献份额,这将为改进参数值的估计和降低其不确定度的研究指明方向。

9.4.3.1 参数不确定度的估计

估计参数不确定度最理想的方法是进行现场实验测量,以求得实际条件下参数的均值及变异范围,得不到足够的现场测量数据时,也可通过文献调研,搜集不同作者对与将进行评价的系统条件相似的系统给出的某一个参数的推荐值,并按数值的大小顺序排列,依次取其自然对数,求得各参数值对数值的几何均值 μ 及标准偏差 σ ,则该参数值的几何均值为

$$X_g = e^\mu \quad (9.47)$$

参数值分布的几何标准差为

$$S_g = e^\sigma \quad (9.48)$$

如模式对该参数拟采用的值为 X_m ,则有

$$Z(X_m) = \frac{\ln(X_m) - \mu}{\sigma} \quad (9.49)$$

根据 $Z(X_m)$ 值,由表 9.10 可查得 X_m 在该参数值概率密度分布曲线上相应的累积概率 $(1 - \alpha)$ 值,这将表明,该参数的实际数值有 $(1 - \alpha)$ 的可能会低于 X_m ,同时也有 α 的可能会高于 X_m 。而且, X_g/S_g 、 $X_g \cdot S_g$ 则表示包含均值 X_g 的 68% 概率的上下限参数值范围。

9.4.3.2 根据参数不确定度估计模式的不确定度

对于预示值为相关各参数值之和的相加模式:

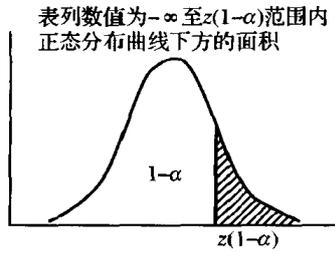
$$P = a + b + c + \dots + n \quad (9.50)$$

式中,

P ——模式预示值;

$a \sim n$ ——模式参数值。

表 9.10 正态分布的累积概率 $(1-\alpha)^{[7]}$



Z	0.00	0.01	0.02	0.03	0.04	0.05	0.06	0.07	0.08	0.09
0.0	0.5000	0.5040	0.5080	0.5120	0.5160	0.5199	0.5239	0.5279	0.5319	0.5359
0.1	0.5398	0.5438	0.5478	0.5517	0.5557	0.5596	0.5636	0.5675	0.5714	0.5753
0.2	0.5793	0.5832	0.5871	0.5910	0.5948	0.5987	0.6026	0.6064	0.6103	0.6141
0.3	0.6179	0.6217	0.6244	0.6293	0.6331	0.6368	0.6406	0.6443	0.6480	0.6517
0.4	0.6554	0.6591	0.6628	0.6664	0.6700	0.6736	0.6772	0.6808	0.6844	0.6879
0.5	0.6915	0.6950	0.6985	0.7019	0.7054	0.7088	0.7123	0.7157	0.7190	0.7224
0.6	0.7257	0.7291	0.7324	0.7357	0.7389	0.7422	0.7454	0.7486	0.7517	0.7549
0.7	0.7580	0.7611	0.7642	0.7673	0.7704	0.7734	0.7764	0.7794	0.7823	0.7852
0.8	0.7881	0.7910	0.7939	0.7967	0.7995	0.8023	0.8051	0.8078	0.8106	0.8133
0.9	0.8159	0.8186	0.8212	0.8238	0.8264	0.8289	0.8315	0.8340	0.8365	0.8389
1.0	0.8413	0.8438	0.8461	0.8485	0.8508	0.8531	0.8554	0.8577	0.8599	0.8621
1.1	0.8643	0.8665	0.8686	0.8708	0.8729	0.8749	0.8770	0.8790	0.8810	0.8830
1.2	0.8849	0.8869	0.8888	0.8907	0.8925	0.8944	0.8962	0.8980	0.8997	0.9015
1.3	0.9032	0.9049	0.9066	0.9082	0.9099	0.9115	0.9131	0.9147	0.9162	0.9177
1.4	0.9192	0.9207	0.9222	0.9236	0.9251	0.9265	0.9279	0.9292	0.9306	0.9319
1.5	0.9332	0.9345	0.9357	0.9370	0.9382	0.9394	0.9406	0.9418	0.9429	0.9441
1.6	0.9452	0.9463	0.9474	0.9484	0.9495	0.9505	0.9515	0.9525	0.9535	0.9545
1.7	0.9554	0.9564	0.9573	0.9582	0.9591	0.9599	0.9608	0.9616	0.9625	0.9633
1.8	0.9641	0.9649	0.9656	0.9664	0.9671	0.9678	0.9686	0.9693	0.9699	0.9706
1.9	0.9713	0.9719	0.9726	0.9732	0.9738	0.9744	0.9750	0.9756	0.9761	0.9767
2.0	0.9772	0.9778	0.9783	0.9788	0.9793	0.9798	0.9803	0.9808	0.9812	0.9817
2.1	0.9821	0.9826	0.9830	0.9834	0.9838	0.9842	0.9846	0.9850	0.9854	0.9857
2.2	0.9861	0.9864	0.9868	0.9871	0.9875	0.9878	0.9881	0.9884	0.9887	0.9890
2.3	0.9893	0.9896	0.9898	0.9901	0.9904	0.9906	0.9909	0.9911	0.9913	0.9916
2.4	0.9918	0.9920	0.9922	0.9925	0.9927	0.9929	0.9931	0.9932	0.9934	0.9936
2.5	0.9938	0.9940	0.9941	0.9943	0.9945	0.9946	0.9948	0.9949	0.9951	0.9952
2.6	0.9953	0.9955	0.9956	0.9957	0.9959	0.9960	0.9961	0.9962	0.9963	0.9964
2.7	0.9965	0.9966	0.9967	0.9968	0.9969	0.9970	0.9971	0.9972	0.9973	0.9974
2.8	0.9974	0.9975	0.9976	0.9977	0.9977	0.9978	0.9979	0.9979	0.9980	0.9981
2.9	0.9981	0.9982	0.9982	0.9983	0.9984	0.9984	0.9985	0.9985	0.9986	0.9986
3.0	0.9987	0.9987	0.9987	0.9988	0.9988	0.9989	0.9989	0.9989	0.9990	0.9990
3.1	0.9990	0.9991	0.9991	0.9991	0.9992	0.9992	0.9992	0.9992	0.9993	0.9993
3.2	0.9993	0.9993	0.9994	0.9994	0.9995	0.9994	0.9994	0.9995	0.9995	0.9995
3.3	0.9995	0.9995	0.9995	0.9996	0.9996	0.9996	0.9996	0.9996	0.9996	0.9997
3.4	0.9997	0.9997	0.9997	0.9997	0.9997	0.9997	0.9997	0.9997	0.9997	0.9998

如 a, b, c, \dots, n 的数值均为正态分布,且在统计学上相互无关,则预示值 P 的数值也为正态分布, P 的几何均值为各参数几何均值之和:

$$X_g(P) = X_g(a) + X_g(b) + X_g(c) + \dots + X_g(n) \quad (9 \cdot 51)$$

P 的几何方差为各参数值几何方差之和:

$$S_g^2(P) = S_g^2(a) + S_g^2(b) + S_g^2(c) + \dots + S_g^2(n)$$

或

$$S_g(P) = [S_g^2(a) + S_g^2(b) + S_g^2(c) + \dots + S_g^2(n)]^{1/2} \quad (9 \cdot 52)$$

对于预示值为相关各参数值之乘积的相乘模式:

$$P = a \times b \times c \times \dots \times n \quad (9 \cdot 53)$$

预示值 P 的自然对数为各参数值自然对数之和。

$$\ln(P) = \ln(a) + \ln(b) + \ln(c) + \dots + \ln(n)$$

即

$$\mu(P) = \mu(a) + \mu(b) + \mu(c) + \dots + \mu(n) \quad (9 \cdot 54)$$

且有

$$\sigma^2(P) = \sigma^2(a) + \sigma^2(b) + \sigma^2(c) + \dots + \sigma^2(n) \quad (9 \cdot 55)$$

这时, $\ln(P)$ 的值呈正态分布,而 P 值则呈近似的对数正态分布,故预示值 P 的几何均值为:

$$X_g(P) = e^{\mu(P)} \quad (9 \cdot 56)$$

P 的标准差为:

$$S_g(P) = e^{\sqrt{\sigma^2(P)}} \quad (9 \cdot 57)$$

无论相加模式或相乘模式,求得模式预示值 P 的几何均值 $X_g(P)$ 和标准差 $S_g(P)$ 后,即可采用与参数值不确定度估计类似的方法估计模式具体预示值 P_m 的不确定度。

某一参数的相对重要性则以其对模式总不确定度的相对贡献份额衡量,对相加模式,参数 i 的重要性指数为

$$I_i = S_g^2(i)/S_g^2(P) \quad (9 \cdot 58)$$

对相乘模式,则为

$$I_i = \sigma^2(i)/\sigma^2(P) \quad (9 \cdot 59)$$

参 考 文 献

- 1 中华人民共和国环境保护行业标准. 环境影响评价技术导则: HJ/T 2.1~2.3-93. 北京: 中国环境科学出版社, 1994
- 2 中华人民共和国国家标准. 核辐射环境质量评价一般规定: GB 11215-89. 北京: 中国标准出版社, 1990
- 3 International Commission on Radiological Protection. 国际放射防护委员会 1990 年建议书: Publication 60, ICRP. 李德平等译. 北京: 原子能出版社, 1993
- 4 International Atomic Energy Agency 等. 国际电离辐射防护和辐射源安全的基本安全标准: Safety Series NO. 115. 维也纳: 国际原子能机构, 1997
- 5 李士骏编. 电离辐射剂量学(第二版). 北京: 原子能出版社, 1986
- 6 潘自强等编. 中国核工业三十年辐射环境质量评价. 北京: 原子能出版社, 1990
- 7 J. E. Till et al. Radiological Assessment, A Textbook on Environmental Dose Analysis: NUREG/CR-3332, ORNL-5968,

USNRC, 1983

- 8 D.H. 斯莱德编. 气象学与原子能. 张永兴等译. 北京:原子能出版社,1979
- 9 刘森林等. 环境辐射影响评价方法讨论——公众照射源相关剂量负担模式基础. 辐射防护,1997,17(3):212
- 10 张永兴. 环境辐射影响评价方法学. 辐射防护,1988,8(4,5):280
- 11 潘自强主编. 中国核工业三十年辐射环境质量评价文集. 北京:原子能出版社,1989
- 12 潘自强主编. 环境危害评价——公众健康危害评价方法及其应用. 北京:原子能出版社,1991
- 13 国家环保局监督管理司. 环境影响评价培训教材(内部资料). 北京:1995

第 10 章 放射性废物管理和核设施退役

整个核燃料循环系统、核能生产及放射性物质在国民经济各领域中的应用,都会产生放射性废物。放射性废物管理涉及对废物产生量的控制、废物的预处理、处理、整备、贮存、运输、处置和对流出物排放的控制,目的在于对放射性核素以气载或液体流出物形式向环境的直接释放及其经由固体废物处置的间接释放实施控制,使其对公众造成的辐射照射保持在可合理达到的尽可能低的水平上。从这种意义上说,流出物排放控制和固体废物的安全处置,既是放射性废物管理的终点,又是辐射环境管理的起点;放射性废物管理是公众照射防护体系中实施源项控制的基础。

广义的放射性废物管理还包括核设施退役与环境恢复的有关作业。核设施服役期满或因计划改变、发生事故等原因而关闭后,设施内、场址及周围环境中残留的放射性污染如不及时清除,将对公众造成持续性的慢性照射。因此,核设施关闭后的退役要从设施中清除残留的放射性污染物、其它危险物料和污染的设备,也要清除场址及周围环境中地下水、地面水和土壤的放射性污染,并妥善处理 and 处置污染的土壤、固体废物和建筑垃圾,使设施和场址可以不受限制或有限制地开放使用。

10·1 放射性废物管理的目标和原则

10·1·1 放射性废物的分类和特点

铀矿石开采和水冶、铀的提纯和浓集、反应堆燃料元件制造、反应堆运行直至乏燃料后处理的整个核燃料循环系统,放射性物质在工业、农业、科学研究及医学等各领域中的应用,都会产生含有放射性核素,或被放射性核素污染而预期不再进一步利用的废弃物。当这类废弃物的放射性核素浓度或比活度大于审管机构所规定的清洁解控水平时,即应作为放射性废物加以妥善的管理。

从物理观点考虑,放射性核素浓度或比活度等于或低于清洁解控水平的废弃物仍然是放射性的,只是因其对公众健康和环境的辐射危害很低而可以解除核审管控制,这类免管废物可按一般非放射性废物加以管理。

10·1·1·1 放射性废物的分类

IAEA 推出的放射性废物安全标准提出了关于放射性废物分类的最新建议,我国按此建议的基本原则修订颁布了新的废物分类标准(GB9133-1995),该标准采用的废物分类构架为:

(1) 按最终处置的要求分类 按最终处置的安全要求,将固体废物分为高放废物、长寿命中低放废物(包括 α 废物)、短寿命中低放废物(简称为中低放废物)和免管废物(图10.1)。表 10.1 所示为固体废物分类的定量依据。

固体废弃物的清洁解控水平可参阅表 10.2。

表 10.1 固体放射性废物分类依据^[1]

废物类型	特 性	处 置 方 式
免管废物	放射性比活度等于或小于清洁解控水平 ^①	不按放射性废物处置要求对待
中低放废物	比活度大于清洁解控水平, 释热率小于 $2\text{kW}\cdot\text{m}^{-3}$	近地表处置或地质处置
短寿命废物	单个废物包装体中长寿命 α 核素比活度不大于 $4 \times 10^6 \text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, 多个包装体平均值不大于 $4 \times 10^5 \text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$	近地表处置或地质处置
长寿命废物	长寿命放射性核素比活度大于上述规定的限值	地质处置
高放废物	释热率大于 $2\text{kW}\cdot\text{m}^{-3}$, 长寿命放射性核素比活度大于上述规定的限值	地质处置

① 清洁解控水平系按公众成员年有效剂量小于 0.01mSv 的豁免水平导出的。

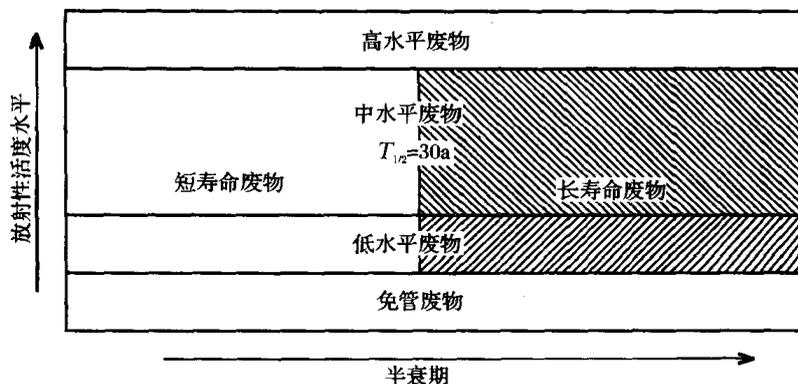


图 10.1 放射性废物分类框架

表 10.2 固体废弃物核素比活度的清洁解控水平^[4]

核素组	核 素	比活度豁免水平 $A_1(\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1})$
高能 β - γ 辐射体	$^{22}\text{Na}, ^{60}\text{Co}, ^{137}\text{Cs}$	$0.1 \sim 1.0$
其它 β - γ 辐射体	$^{54}\text{Mn}, ^{106}\text{Ru}, ^{131}\text{I}$	$1.0 \sim 10^2$
α 辐射体	$^{239}\text{Pu}, ^{241}\text{Am}$	$0.1 \sim 1.0$
碳	^{14}C	$10^2 \sim 10^3$
短寿命 β 辐射体	$^{32}\text{P}, ^{35}\text{S}, ^{45}\text{Ca}$	$10^3 \sim 10^4$

固体废弃物中含多种放射性核素时,应按下式要求控制免管:

$$\sum_i \dot{A}_i / A_{1,i} \leq 1.0 \quad (10 \cdot 1)$$

式中,

\dot{A}_i ——废物所含核素 i 的比活度, $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$;

$A_{1,i}$ ——核素 i 的清洁解控水平, $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ 。

液态废物满足一定条件也可予以免管而排入城市下水道系统。

放射性废物经必要的去污或净化处理后,其核素浓度、比活度或活度等于或小于清洁解控水平时,可由审管机构核准,解除任何进一步审管控制,予以免管。

(2) 按处置前管理要求分类 综合考虑废物处理、整备及处置要求,对气载废物、废水(废液)及固体废物的定量分类依据见表 10.3、表 10.4 和表 10.5。

(3) 放射性废物的非定量分类 除上述两个定量分类系统外,为了更明确地表明放射

性废物的某些特征,还可按以下非定量依据进行分类:

①按废物的产生来源,可分为矿冶废物、核电厂废物、乏燃料后处理废物、退役废物及城市废物等;

②按废物采用的处理、整备方法,可分为可燃废物、可压缩废物等;

③按废物某些特殊的物理性质,可分为挥发性废物、有机废物、生物废物等。

表 10.3 气载放射性废物的分类^[4]

级别	名称	放射性核素浓度 C (Bq·m ⁻³)
I	低放	$C \leq 4 \times 10^7$
II	中放	$C > 4 \times 10^7$

表 10.4 放射性废水(废液)的分类^[4]

级别	名称	放射性核素浓度 C (Bq·L ⁻³)
I	低放	$C \leq 4 \times 10^6$
II	中放	$4 \times 10^6 < C \leq 4 \times 10^{10}$
III	高放	$C > 4 \times 10^{10}$

表 10.5 非 α 固体放射性废物的分类^[4]

级别	名称	放射性比活度 A (Bq·kg ⁻¹)			
		$T_{1/2} \leq 60d^{\text{①}}$	$60d < T_{1/2} \leq 5a^{\text{②}}$	$5a \leq T_{1/2} < 30a^{\text{③}}$	$T_{1/2} > 30a$
I	低放	$A \leq 4 \times 10^6$	$A \leq 4 \times 10^6$	$A \leq 4 \times 10^6$	$A \leq 4 \times 10^6$
II	中放	$A > 4 \times 10^6$	$A > 4 \times 10^6$	$4 \times 10^6 < A \leq 4 \times 10^{11}$ (或释热率不大于 $2kW \cdot m^{-3}$)	$A > 4 \times 10^6$ (或释热率大于 $2kW \cdot m^{-3}$)
III	高放	-	-	$A > 4 \times 10^{11}$ (或释热率大于 $2kW \cdot m^{-3}$)	$A > 4 \times 10^{10}$ (或释热率大于 $2kW \cdot m^{-3}$)

① 包括¹²⁵I($T_{1/2} = 60.14d$);② 包括⁶⁰Co($T_{1/2} = 5.27a$);③ 包括¹³⁷Cs($T_{1/2} = 30.17a$)。

10.1.1.2 放射性废物的特点

放射性废物中所含核素的衰变及随之产生的电离辐射是其原子核本身固有的特性,其辐射强度(活度)只能随时间的推移按指数规律逐渐衰减,除了尚在研究之中的分离-嬗变技术之外,任何物理、化学、生物处理方法或环境过程都不能予以消除。因此,放射性废物在其所含核素的衰变过程中,始终存在着对公众健康和环境造成辐射危害的潜在危险(风险)。

有鉴于此,放射性废物管理的根本任务在于为废物中核素的衰变提供合适的时间和空间条件,将其对公众可能造成的辐射危害始终控制在许可水平以下。基本途径是将气载和液体放射性废物作必要的浓缩及固化处理后,在与环境隔绝的条件下长期安全地存放(处置)。净化后的废物则可有控制地排放,使之在环境中进一步弥散和稀释,固体废物则经去污、整备后处置,污染物料有时可经去污后再循环再利用。

放射性废物中同时也含有多种非放射性污染物质,应该指出的是,一般情况下放射性核素的质量浓度远低于非放射性污染物的浓度,但其净化要求极高。另一方面,由于放射性核素与其稳定同位素的化学性质基本相同,因此,去除废物中稳定性元素的常规处理方法亦可用于去除放射性同位素,例如,水质软化处理中,稳定性钙及⁴⁵Ca 同位素均可被有效地去除,该方法还可用于化学性质与钙相近的放射性锶、钡所污染废水的净化处理。

高放射性废物中常含有各种用途广泛的裂变产物同位素,如加以浓集回收,既可降低废物的活度水平,又可用以制造辐射源,如¹³⁷Cs 可取代⁶⁰Co 及²²⁶Ra 制成密封式辐射源,

^{147}Pm 、 ^3H 可用作发光粉的激发能源。

废物处理过程中产生的各种浓缩物(沉渣、污泥、废离子交换树脂及其固化体)和乏燃料元件等中、高放射性废物,会对人造成外照射,核素的衰变会释放出大量的热量,有的物质会因辐射分解而产生有害气体,这类废物在处理、整备、运输、贮存、处置过程中要考虑必要的屏蔽防护及远距离操作的设备。工作场所或设备应具备必要的通风、散热、冷却等设施。

10.1.2 放射性废物管理的目标和原则

10.1.2.1 放射性废物管理的目标

作为辐射环境管理中污染源控制的重要措施,放射性废物管理应根据最优化分析的结果,采用妥善的方式实施管理,其目标是防止废物中所含的放射性核素以不可接受的量释入环境,使公众和环境在当前或未来都能免受任何不可接受的辐射危害,使之保持在许可水平以下和考虑了经济和社会因素之后可合理达到的尽可能低的水平。

根据这一目标,放射性废物管理必须遵循辐射防护的基本原则。伴有放射性废物产生的任何核设施,都必须具备有效的废物管理设施,确保废物对公众与环境造成的危害所相应的代价与废物管理代价之和远小于核设施运行所带来的利益;应结合防护最优化和个人剂量限制和约束的原则,以有关的辐射环境管理标准为依据,采用合适的模式和参数,通过环境影响评价,确定环境对流出物释放或固体废物处置的可接受量(环境容量),使公众及环境在当前和未来都能免受任何不可接受的危害;在以上前提下,也应力求降低废物管理的经济代价。

长寿命放射性废物对公众与环境造成的辐射危害及风险将长期存在,因此,废物管理不仅要控制当代人的受照剂量,还必须控制后代受照的可能和剂量,后代可能受到的照射剂量同样不应超过目前适用的限值。

10.1.2.2 放射性废物管理的基本原则

放射性废物管理应以安全为目的,以处置为中心。

废物管理设施或实践应保证操作人员和公众所受到的照射剂量不超过相应的剂量限值或约束值,并应在考虑经济和社会因素的条件下,使之保持在可合理达到的尽可能低的水平。

废物管理应贯彻保护后代的原则,即不增加后代对当前产生的放射性废物的管理责任和负担,对后代个人的防护水平按目前的标准控制。

一切伴有放射性废物产生的设施或实践,均应设立相应的放射性废物管理设施,并保证其与主体工程同时设计、同时施工、同时投入运行。

废物管理应遵循“减少产生、分类收集、净化浓缩、减容固化、严格包装、安全运输、就地暂存、集中处置、控制排放、加强监测”的方针。

任何废物管理设施或实践均应事前进行环境影响评价,放射性物质向环境排放的总量和浓度必须低于相应的排放管理限值。

废物管理应实施优化管理和废物最少化原则。应保持废物管理设施在使用寿期内的安全。

10.1.3 放射性废物管理的基本步骤

放射性废物管理涉及废物产生量的控制、废物流特性检测、废物预处理、处理、整备、运输、贮存直至最终处置,是由若干阶段构成的一个完整的过程和体系,图 10.2 所示为废物管理的基本步骤。废物管理设施的规划、设计、建造、运行、关闭和退役,都应妥善考虑各阶段各项管理步骤之间的相互关系。

10.1.3.1 废物产生量和成分的控制

控制废物的产生量和污染物成分,是安全地管理放射性废物的基础,核设施运行应通过最优化分析,选择最佳的工艺和材料,遵循清洁生产的原则,尽量减少废物产生量,并使之易于经济地处理。应严格控制生产过程中各种试剂、材料及添加剂的使用,防止各类废物的混杂;严格控制设备、地面等表面的清洗去污方法及试剂的使用,尽可能使废物成分简单而易于处理;应选用处理效果好、二次废物量少、操作维护简便、投资和运行费用较低的废物处理方案和设备。

10.1.3.2 废物的预处理

废物的预处理包括分类收集、废水的化学调制和固体废物的表面去污,有时还包括废物在相当一段时期内的中间贮存(暂时贮存)。预处理为废物的进一步分类提供了条件,根据废物的产生来源、按工艺参数及监测数据确定的放射性核素浓度或比活度、废物的物理状态和化学组成,确定各类废物的管理方案。核素浓度或比活度等于或低于清洁解控水平的废物,经批准后可予免管,作为非放射性废物进行管理。

废物的收集应确保不扩大污染,并避免交叉污染。非放射性废物与放射性废物应分别收集,以减少必须作专门处理的放射性废物数量; α 废物应与其它固体废物分别收集,以减少具有特殊处置要求的固体废物量;短寿命放射性废物经一定时期的贮存衰变后可予免管,应与其它废物分别收集,以降低管理成本;拟采用不同方法处理、处置的各类废物也应分别收集;被放射性核素沾染的实验动物尸体也应采用专门装置和设施收集保存,避免腐烂。各类废物应有专用的收集设施,并应具有必要的检测和监督手段。

10.1.3.3 废物的处理

为满足安全和(或)经济的要求,可采用物理、化学或生物学方法改变废物的性质,目的在于减小废物的体积,从废物中去除放射性核素,改变废物的化学组成。处理方法有可燃性废物的焚烧,松散性固体废物的压实,湿固体的脱水及干化,气载废物的过滤、吸附和液体废物的蒸发、离子交换、过滤、絮凝及沉降,污染物料的去污等,许多情况下需要几种方法配合

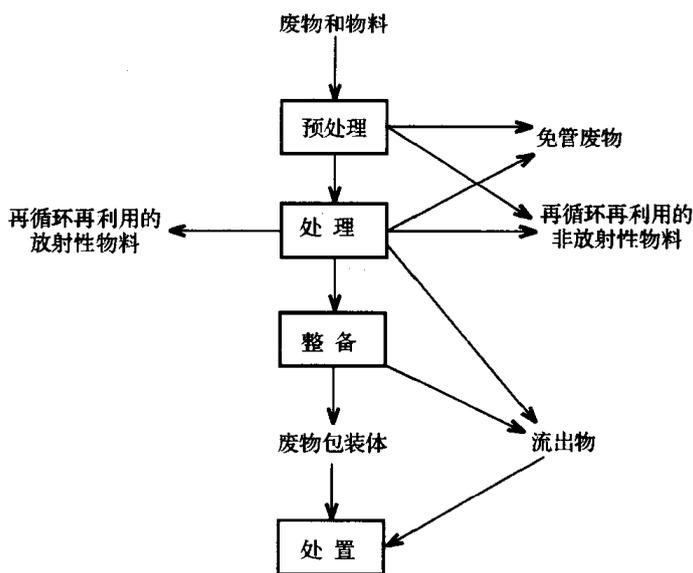


图 10.2 放射性废物管理的基本步骤

使用,以提高净化去污效果。

放射性废物处理效果的评价,不仅要考虑处理后废物中所含核素浓度或比活度的降低程度,还应考虑处理后浓缩物相应于处理前废物的体积减小程度。废物处理应尽可能选择去污比(去污效率)高、减容比(体积浓缩倍数)大的处理方法。

(1) 去污比(净化系数)——DF 处理前后废物中所含核素浓度或比活度的比值称为去污比(净化系数)。

$$DF = \frac{C_b}{C_a} (\text{或} \frac{A_b}{A_a}) = 10^n \quad (10 \cdot 2)$$

式中,

DF——去污比(净化系数),常以核素浓度或比活度降低的数量级 n 表示;

C_b ——处理前废物中核素的浓度,对气载废物为 $Bq \cdot m^{-3}$,对液体废物为 $Bq \cdot L^{-1}$;

C_a ——处理后废物中核素的残留浓度, $Bq \cdot m^{-3}$ 或 $Bq \cdot L^{-1}$;

A_b ——处理前(固体)废物的比活度, $Bq \cdot kg^{-1}$;

A_a ——处理后(固体)废物的残留比活度, $Bq \cdot kg^{-1}$ 。

(2) 去污效率—— K 处理过程对废物中所含核素总活度的去除百分率称为去污效率。

$$K = \frac{A_b - A_a}{A_b} \times 100\% \quad (10 \cdot 3)$$

式中,

K ——去污效率, %;

A_b ——处理前废物中核素的总活度, Bq ;

A_a ——处理后废物中核素的残留活度, Bq 。

当处理过程减容比很大,处理后浓缩物体积很小,处理前后废物体积改变不大时,有

$$K \approx \frac{A_b - A_a}{A_b} \times 100\%$$

或

$$K \approx \frac{C_b - C_a}{C_b} \times 100\% \quad (10 \cdot 4)$$

表 10.6 所示为去污比 DF 与去污效率 K 之间的换算关系。

表 10.6 去污比与去污效率之间的换算关系

DF	K (%)	DF	K (%)	DF	K (%)
2	50	20	95	5×10^2	99.8
5	80	50	98	1×10^3	99.9
10	90	1×10^2	99	1×10^4	99.99

(3) 减容比(体积浓缩倍数) 处理前废物体积与处理后浓缩物体积之比值称为减容比。

$$CF = \frac{V_b}{V_c} \quad (10 \cdot 5)$$

式中,

CF——减容比;

V_b ——处理前废物的体积, m^3 或 L;

V_c ——处理后浓缩物的体积, m^3 或 L。

10·1·3·4 废物的整备

废物整备的目的是将放射性废物转化为适合于装卸、运输、贮存和处置的形态,整备方法有废物的固化(固化、埋置或包容)、装入容器及加外包装。通常的固化方法包括中放废液的水泥或沥青固化和高放废液的玻璃固化等,固化后的废物装入钢桶或厚壁工程容器中进行贮存或处置。许多情况下,整备过程是和处理过程连续一次完成的。

10·1·3·5 废物的贮存

在某些情况下,出于不同的目的,放射性废物需在专用设施内暂时存放一段相当长的时期。短寿命低放射性废物经贮存衰变后,可予以解控,作为非放射性废物处置;反应堆乏燃料元件从堆中卸出后,在冷却池中存放 5~10a,待短寿命裂变产物核素衰变完,释热率明显降低后再进行后处理或作最终处置;许多国家后处理高放废液玻璃固化工厂尚未投入运行,这些废液也都暂时存放在地下贮槽内;在高放废物地质处置库还未建造使用之前,乏燃料元件及其它高放固体废物目前还都处于中间贮存状态。相对于最终处置的永久性不可回取的贮存而言,这类中间贮存又称为暂时贮存或可回取的贮存。

10·1·3·6 废物的处置

放射性废物的处置是将经处理整备后的废物体在具有合理、可靠的安全保证的条件下永久地存放在专门的近地表或地质处置库内,并不再回取。处置库采用多重屏障(包括包装屏障、工程屏障及天然屏障)系统,使废物得以封隔,限制其所含的放射性核素向环境释放迁移。为确保处置库系统的长期安全,近地表中、低放废物处置库的安全隔离期不应短于 300a,深地层高放废物地质处置库的安全隔离期不应短于 10000a。

气载及液体废物经必要的净化处理后,在审管机构核准的排放限值范围内释放到环境中,使之在环境中进一步弥散稀释,也是放射性废物的一种处置方式。

10·2 放射性废水的管理

铀矿石开采和水冶、铀的精制和²³⁵U 的浓集、燃料元件制造、反应堆运行、乏燃料暂存和后处理、同位素生产和使用,都会产生放射性废水或废液。除乏燃料后处理第一循环萃余残液为高放射性废液外,一般均为中、低放射性废水。

10·2·1 中、低放射性废水的净化处理

10·2·1·1 贮存衰变

有些放射性核素的半衰期较短,如核医学诊断、治疗常用的³²P (14.3d)、¹³¹I (8.04d)、¹⁹⁸Au (2.69d)、⁹⁹Mo (2.75d)、^{99m}Tc (6.02h),反应堆运行产生的某些裂变产物及活化产物核素如⁹²Sr (2.71h)、⁹³Y (10.1h)、⁹⁷Zr (16.9h)、¹³²Te (3.26d)、¹³³I (20.8h)、¹³⁹Ba (1.38h)、¹⁴²La (1.54h)等。含这类核素的废水可在贮槽中存放一段时间,待这类短寿命核素衰变到相当低的水平时,可排入下水道或有控制地排入地面水体。

这一方法简单易行,效果可靠,但要有相当容量的贮槽,其净化效果取决于废水中所含核素半衰期的长短及废水的滞留贮存时间。由放射性活度指数衰减规律可知,经过 10 个半衰期后,核素的活度将降至其初始活度的 1/1000 以下。因此,采用这一方法时,废水在贮槽内的滞留贮存时间一般按其所含寿命最长的核素半衰期的 10 倍考虑。

当废水中同时含有半衰期较长的放射性核素时,这一方法可作为预处理方法使用,废水在贮槽中滞留贮存一定时间,待短寿命核素大部分衰变后,再对其它长寿命核素进行净化处理。

10.2.1.2 絮凝沉淀和过滤

放射性核素及其它污染物质,通常以悬浮固体颗粒、胶体或溶解离子状态存在于废水中。其中,除较大的悬浮物颗粒之外,一般都不能用简单的静止沉降或过滤方法除去。向废水中投加明矾、石灰、铁盐、磷酸盐等絮凝剂,在碱性条件下所形成的水解产物是一种疏松而具有很大表面积和吸附活性的氢氧化物絮状物(矾花),缓慢搅拌条件下,矾花不断凝聚长大,废水中细小的固体颗粒、胶体及离子状态的污染物质均可被其吸附载带,除去这些矾花,即可达到净化废水的目的。

废水的酸碱度对絮凝净化效果影响很大,随着 pH 值的上升,废水碱度的提高,水中一系列杂质阳离子(包括某些高价阳离子)本身均能形成氢氧化物沉淀。同时,由于碱度提高,矾花表面负电荷增加,对仍处于溶解状态的阳离子的吸附能力也随之增加,去污效果随之明显提高(图 10.3)。

放射性废水中数量最多的是酸性废水。设备、地面去污用的洗液多为柠檬酸、盐酸、硝酸及乙二胺四乙酸钠(Na-EDTA)等溶液,其废液亦有较强的酸性;某些实验室及废物处理过程本身也会产生一定数量的酸性废水。为了达到良好的絮凝去污效果,通常须采用中和法预先对废水进行化学调制。常用的中和剂有 NaOH、Na₂CO₃、NH₄OH、生熟石灰、石灰石和重碳酸盐等,其中 NaOH、Na₂CO₃ 及 NH₄OH 的反应性能好,使用方便,不产生污泥,可用于任何酸性废水的中和,但成本较高。石灰是最常用的中和剂,同时又起到絮凝剂的作用。

各种絮凝剂对放射性核素的去除有明显的选择性,当废水中存在多种核素时,必须考虑几种絮凝剂的复合使用和合理配比,针对废水的水质情况,通过实验确定。

当废水中含有碘、铯、钡等以阴离子或两性离子状态存在的放射性核素时,上述絮凝剂不能有效地将它们去除。此时,可向废水中投加适量的粉末活性炭将其吸附,或采用特殊的化学试剂使之形成沉淀,这些活性炭粉末或沉淀物可被絮凝剂水解形成的矾花捕集载带而得以去除。

废水中混有各种水生物、润滑剂等有机杂质时,絮凝处理效果将明显下降,甚至完全失

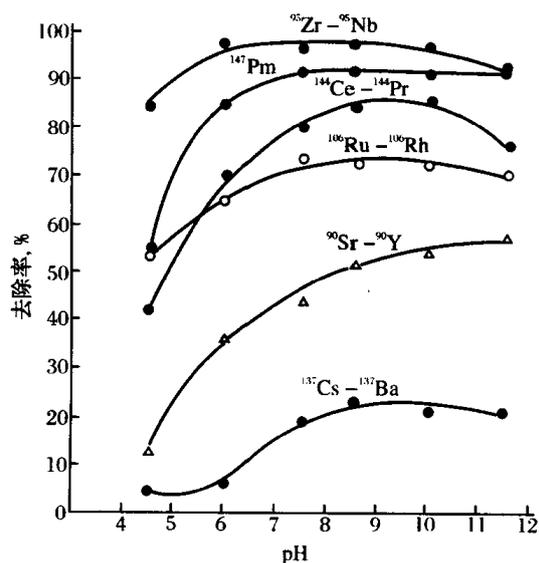


图 10.3 pH 值对聚合铝去除水中各种放射性核素效率的影响^[6]

效。此时,加入适量的 KMnO_4 等氧化剂破坏有机物,可提高去污效果。此外,废水温度、絮凝剂与废水的混合程度、搅拌速度、反应时间的长短等因素对去污效果都有一定的影响。

聚丙烯酰胺等高分子助凝剂是一类水溶性线型大分子化合物,分子量通常在 $10^6 \sim 10^7$ 之间,适量投放在废水中可促进矾花的形成和长大,明显提高去污效果,减少絮凝剂的用量,从而减少污泥量。

图 10.4 所示为用于废水絮凝处理的连续式加速沉淀池的结构示意图。废水在这类沉淀池中的接触、滞留和澄清时间为 1.5~2h。

絮凝沉淀法产生的矾花沉渣(污泥)约为总处理水量的 2% 左右,其活度水平高,含水率

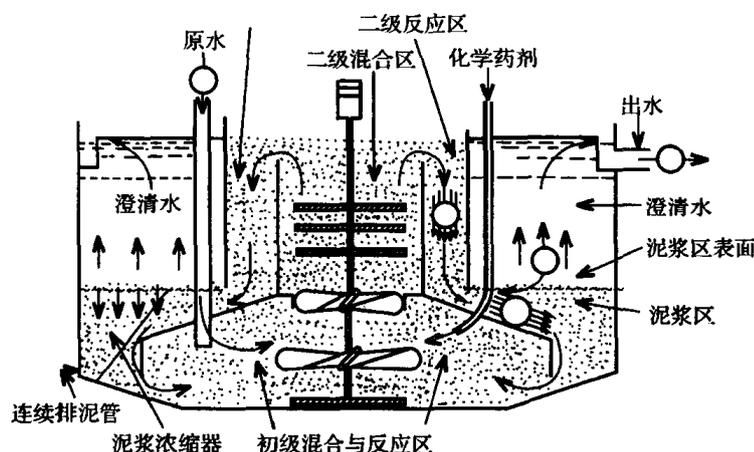


图 10.4 加速沉淀池示意图

在 90% 以上。常用过滤法使之脱水并进一步减容,经水泥固化后贮存或处置。

废水经絮凝沉淀处理后,水中大部分核素已随矾花沉渣得以去除,但仍难免有细小的颗粒残留在水中,影响去污净化效果,因此,澄清水常需进一步采用压力过滤器作过滤处理,以提高净化效果。核事故后水源受到污染时,可采用城市自来水管厂的沉淀、过滤设备进行净化处理。

10·2·1·3 离子交换

经絮凝沉淀处理后,废水中残留的放射性物质多为溶解离子状态,必要时可采用离子交换法作进一步的净化处理。

离子交换法在放射性废水处理中应用十分广泛,某些天然材料(如沸石)对废水中放射性离子分离去除的机制是其对离子的吸着作用,它包括吸附及离子交换两种过程。对于高放射性废液,人工合成的离子交换树脂因其抗辐射性能差而不宜采用,但某些天然无机交换材料如粘土和一些硅酸盐矿物都具有良好的交换性能。在处理中、低放射性废水时,离子交换树脂对去除含盐类杂质较少的废水中可溶性放射性离子具有特殊的作用,因而常用作基本的处理方法。离子交换法常用于反应堆回路水的净化,处理成分单纯的实验室废水。它还广泛用于分离回收各种放射性核素。离子交换法处理废水常用的动态操作系统是以树脂作为滤层的滤柱式操作,其形式有阳、阴交换柱串联或混合交换柱等。离子交换树脂吸着饱和后,用适当的酸、碱溶液或盐溶液淋洗、再生后复用,再生废液经蒸发浓缩、固化后贮存或

处置。

废水中的悬浮物会使离子交换柱堵塞,造成水在柱内呈不均匀流动,出现“沟流”现象,使树脂的有效交换容量大为降低,为此,应采用过滤装置预先除去废水中的悬浮物。

废水的酸碱度对交换作用有一定的影响,一般说来,废水 pH 值较低时,裂变产物核素处于离子状态,因而交换效率较高;碱性条件下,高价离子生成氢氧化物沉淀,如先行滤除后进行交换处理,可达到很高的净化效果。

废水中存在络合物时,宜使用混合树脂床。有机溶剂及油类杂质会使树脂“中毒”而降低交换能力,并使树脂再生不完全。肥皂会堵塞树脂表面的孔隙,油类会在树脂表面形成憎水性膜层,为此,应采用活性炭除油器一类装置对废水进行预处理。

废水中可溶性非放射性杂质离子也能被树脂交换吸着,这就大大降低了对放射性离子的去除效率,因此,可在离子交换柱之前设置电渗析、反渗透等装置先行除去非放射性离子,以提高交换柱对放射性核素的去污效果,延长树脂层的再生周期。

10·2·1·4 蒸发

废水在蒸发器内加热沸腾,水分逐渐蒸发,形成水蒸气,而后冷凝成水,废水中所含非挥发性放射性核素及其它各种化学杂质大部分残留在蒸发浓缩液中,冷凝水的污染程度大为降低,一般可予排放,蒸发浓缩液则进一步固化。

蒸发处理几乎可以去除废水中全部非挥发性污染物质,在废水净化处理工艺中去污效果最好而且最为可靠,对各种成分的废水处理适用性相当广泛。在联合采用蒸发设备和二次蒸汽净化设备的流程系统中,对非挥发性放射性核素的最佳去污比可达 $10^6 \sim 10^7$,废水中如含有氟、碘、钨等挥发性核素时,去污效率将大为下降。

蒸发器本身的去污效率随蒸发速率的增大而下降,但旋风分离器及填料塔等二次蒸汽净化设备要求有相当大的汽流速度才能有效地去除二次蒸汽中夹带的液滴,因此,随蒸发速率的增大,蒸发系统总的去污效率将逐渐增大,超过某一极限速率后,去污效率即急剧下降。

蒸发器内浓缩液中含盐浓度愈高,蒸发过程中液滴飞溅愈多,去污效率随之下降,因此,蒸发中的体积浓缩倍数不可过大,一般为 10~50 倍。

蒸发时如出现泡沫,去污效率亦将明显降低,装设泡沫破碎器,或向蒸发器中投加适量的化学抗泡沫剂,能有效地消除泡沫,提高去污效果。

废水中 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 离子浓度较高时,蒸发器传热管壁上将形成结垢而使传热效率降低,并导致蒸发过程中液滴的飞溅,降低净化效果。在废水中投加适量的硫酸钙晶种、硫酸镁溶液或 EDTA 一类有机化合物,蒸发过程中加强对蒸发液的搅拌或采用强制循环措施,都能有效地防止结垢。结垢严重时,须采用机械刷洗或用稀盐酸溶液清洗蒸发器。

废水中如含有某些有机溶剂(如萃取剂 TBP、稀释剂氢化煤油等)或硝酸,高温下可能发生爆炸,因此,蒸发器设计和使用时应注意防止爆炸,必要时废水应预先去除这类杂质后再行蒸发。

蒸发之后再行离子交换,是一种相当可靠而有效的净化方法,但蒸发处理成本很高,一般只适用于数量较少的中放废液的净化处理,而且,只有在有可靠热源供应时才可选用。

10·2·1·5 电渗析与反渗透

电渗析装置采用的选择性渗透膜是一类离子交换膜。在电解质溶液中,阳离子交换膜上的活性基团发生电解,其正电荷扩散到溶液中,膜上形成负电场,因此,可以吸附溶液中的

阳离子而排斥阴离子。在外加直流电场的作用下,吸附在膜表面上的阳离子即可穿透,而溶液中的阴离子则不能通过。反之,阴离子交换膜则只允许阴离子穿透,而阳离子则不能通过。如将两种膜间隔排列插入电解质溶液中,在直流电场作用下,相邻两膜之间便间隔地形成了淡化区和浓集区(图 10.5),将淡化液(除盐水)和浓缩液分别排除,电渗析过程即可持续进行。除盐后的淡化液可用离子交换法作进一步的净化处理,浓缩液经进一步浓集后固化贮存或处置。

电渗析装置用于废水除盐相当有效,作为离子交换的前级处理使用,可大大提高树脂对放射性核素的吸着交换容量,延长树脂的再生周期。而且,电渗析对废水中放射性离子也有相当的去污效果,但对胶体状态的核素去污效果极差。

反渗透装置采用的醋酸纤维膜是一类半渗透膜,将其插放在溶液中,由于渗透压的作用,水分子可由溶液杂质浓度较低的一侧透过膜到达浓度较高的一侧,使膜两侧的杂质浓度趋于平衡。如在高浓度一侧施加一个大于渗透压的压力,就会出现反渗透现象,水分子将由高浓度一侧向低浓度一侧渗透,使高浓区杂质浓度愈来愈大,低浓区溶液即可得以净化。为能承受较高的压力,反渗透膜常制成螺旋管或中空纤维管形。

反渗透装置能有效地去除水中的盐类杂质,在纯水制备及废水处理中都得到了广泛的应用。用作离子交换装置的前道预处理工艺,对放射性废水中非放射性杂质及放射性核素离子均有相当的净化去污效果。

10·2·2 低放射性废水的排放

低放射性废水经净化处理后,应排入专设的排放槽,根据主工艺参数和取样测量结果,确定槽内废水所含核素的种类、总量和浓度。核素总量和浓度如低于排放管理限值,可有控制地排入地面水体;如符合免管要求,可排入下水道系统中。

10·2·2·1 向地面水体排放的控制原则

为控制废水排放对公众造成的照射剂量,核设施向地面水体排放放射性废水时,各类核素的排放总量不应超过相应的归一化排放量管理限值,并应进一步根据废水排放后在受纳水体中的稀释、弥散、迁移,公众对水体的利用情况(饮水、灌溉、水生物的食品)及相应的照射途径,按第 8 章所述流出物排放控制标准所规定的原则,采用适当的模式和参数,通过辐射环境影响评价,确定核素排放量与关键人群组年有效剂量之间总的转换因子 $R_{i,k}$ 。然后,根据审管机构核准的对核设施废水排放规定的剂量管理限值,确定废水的许可排放量限值。

放射性废水向江河和海洋排放时,排放口位置、排放量限值(排放废水中核素的总活度和浓度)必须得到审管机构的批准认可。排放地域应避开经济鱼类产卵区、水生生物养殖场、盐场、海滨游泳和娱乐场所等。含半衰期大于 30a 的长寿命放射性核素的废水严禁向封闭式湖泊排放。

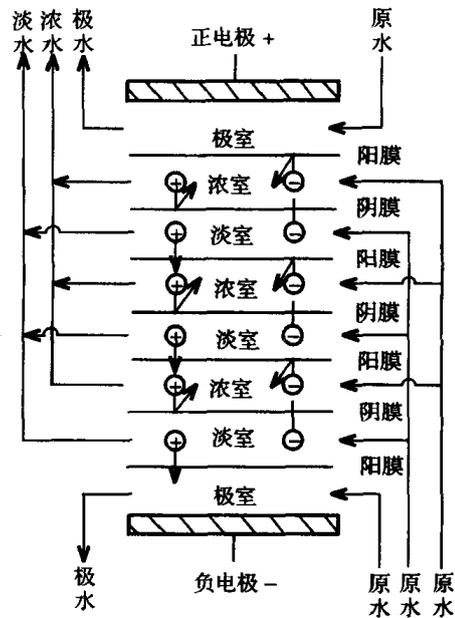


图 10.5 电渗析原理图

10.2.2.2 免管排放的控制原则

当一个核设施每月排放的低放射性废水中所含某种核素的总活度不超过表 10.6 中给出的许可限值 A_1 , 一次排放总活度不超过 $0.1 A_1$, 也不超过 1×10^7 Bq 时, 可予以免管而排入城市下水道系统中。

免管废水应在固定排放点处排放, 排放后需用水冲洗排放口, 以免污染物积累, 排放口应设置相应的标志。

当废水中含有多种放射性核素时, 免管排放应按下述原则控制:

每月排放的各种核素的总活度应满足

$$\sum_i \frac{A_i}{A_{1,i}} \leq 1.0 \quad (10 \cdot 6)$$

一次排放的活度不超过 1×10^7 Bq, 且满足

$$\sum_i \frac{A_i}{A_{1,i}} \leq 0.1 \quad (10 \cdot 7)$$

式中,

A_i ——核素 i 的排放活度, Bq;

$A_{1,i}$ ——核素 i 的许可免管月排放限值, Bq。

表 10.7 某些放射性核素免管排放的月排放限值(Bq)^[4]

核素	A_1	核素	A_1	核素	A_1	核素	A_1
³ H	3×10^9	⁹⁰ Y	2×10^7	²¹⁰ Po	2×10^4	²²⁸ Th	4×10^2
¹⁴ C	9×10^7	⁹⁵ Zr	5×10^6	²²⁶ Ra	2×10^4	²³² Th	4×10^1
³² P	1×10^7	⁹⁹ Tc	3×10^9	⁵⁹ Fe	1×10^7	²³⁸ U	2×10^3
³⁵ S	8×10^7	¹⁰⁶ Ru	4×10^5	⁶⁰ Co	1×10^6	²³⁹ Pu	2×10^2
⁴⁵ Ca	3×10^7	¹⁴⁰ Ba	2×10^7	⁶⁵ Zn	1×10^7	²⁴¹ Am	2×10^2
⁸⁹ Rb	1×10^9	¹⁴⁴ Ce	5×10^5	¹³¹ I	1×10^6	²⁴² Cm	1×10^4
⁸⁹ Sr	5×10^6	²⁰⁴ Te	6×10^7	¹³⁴ Cs	3×10^6	²⁴⁴ Cm	4×10^2
⁹⁰ Sr	1×10^5	²¹⁰ Po	9×10^3	¹³⁷ Cs	4×10^6	²⁵² Cf	1×10^3

10.2.3 放射性废液的贮存

乏燃料后处理流程中, 第一循环所产生的高放废液中含有大量的裂变产物、残留的钷及铀同位素和相当量的超铀元素, 其活度水平很高, 其中⁹⁰Sr、¹³⁷Cs、²³⁸⁻²⁴²Pu、^{241, 242}Am、²⁴²⁻²⁴⁴Cm等核素的半衰期为 13a 至 38 万年, 对公众的辐射危险将长达几百年以至几十万年。

在高放废液玻璃固化工厂投入运行之前, 大多数国家都将乏燃料后处理高放废液经蒸发浓缩后贮存在地下的不锈钢贮槽内, 为了确保贮存安全, 保证废液不致泄漏, 需要采取以下几项防护措施:

① 采取由不锈钢废液贮罐、混凝土罐体的钢质内覆面、混凝土罐体、吸附材料及罐体外粘土回填层组成的“多重屏障”防护体系, 保证对废液泄漏起到安全可靠的屏蔽作用;

② 贮罐内设置冷却系统, 使废液中核素衰变释放的热量得以带出, 将废液温度保持在

沸点以下,并减轻对罐体的热腐蚀;设置排气系统,防止因罐内氢气积累而发生爆炸;

③ 设置废液泄漏监测系统、泄漏废液的抽吸转运系统及备用贮槽,杜绝废液向环境泄漏;

④ 设置搅拌与取样系统,使槽内废液不发生固相沉积,随时取样监视废液的状态,必要时可及时采取对策;

⑤ 按一级核设施厂址要求选定贮存库址。

后处理流程中第二、三循环产生的中、低放废液经蒸发浓缩后贮存于地下双层碳钢贮槽内。

虽然采取了以上各种安全措施,但中高放废液的贮存仍存在着许多安全隐患,最好的措施是尽早地进行固化。

10·2·4 放射性废物的固化或固定

拟固化或固定的废物包括中、高放射性浓缩废液,中、低放射性泥浆,废树脂,水过滤器芯子,焚烧炉灰渣等。某些废物固化前应经脱水,固化或固定后的产物应予以包装,以便于废物的贮存,运输和处理。

10·2·4·1 废物的脱水减容

离心机、烘干机、脱水槽、预涂层过滤器、机械过滤器及擦膜式薄膜蒸发器等都可用于泥浆的脱水减容,浓缩液则常用流化床干燥器及擦膜式薄膜蒸发器进行干化。

10·2·4·2 中低放废物的固化

固化的目标是使废物转变成适宜于最终处置的稳定的废物体,固化材料及固化工艺的选择应保证固化体的质量,应能满足长期安全处置的要求,应满足进行工业规模生产的需要,对废物的包容量要大,工艺过程及设备应简单、可靠、安全、经济。固化体应满足以下几项要求:

- ① 放射性核素的浸出率低;
- ② 游离液体量不超过废物体积的 1%;
- ③ 具有良好的化学、生物、热和辐射稳定性;
- ④ 具有足够的机械强度;
- ⑤ 比表面积小,整体性好。

中、低放射性废物常采用水泥、沥青及塑料固化工艺进行固化。

(1) 水泥固化 水泥固化适用于中、低放废水浓缩物的固化,泥浆、废树脂等均可拌入水泥而予以固化,水泥与废物的配比约为 1:1,要求搅拌均匀,待凝固后即成为固化体。水泥固化设备简单,经济代价小,操作方便,但增容大,核素的浸出率较高。铯、锶、钚离子与水泥结合比较牢固,铍、钨离子则易为雨水、地下水或海水浸出。

(2) 沥青固化 沥青固化适用于中、低放废水浓缩物的固化,沥青固化体核素浸出率较低,减容大,经济代价小,固化温度不应超过 150~230℃,否则固化体可能燃烧。硝酸盐及亚硝酸盐废液不宜采用沥青固化。

10·2·4·3 高放废液的玻璃固化

高放废液的玻璃固化已经实现工业化规模应用,玻璃固化体具有良好的抗浸出、抗辐射和抗热性能,但玻璃固化技术复杂,成本高,因此,对高放废物管理的最佳策略仍处于探索阶

段。

10.3 气载放射性废物的管理

10.3.1 气载放射性污染物的分类

铀矿石开采、破磨过程产生的气载放射性废物中含有铀矿石粉尘、惰性气体²²²Rn及其子体的氧化物气溶胶。反应堆正常工况运行时,燃料元件中产生的气态及颗粒态裂变产物绝大部分包容在元件包壳中,直到乏燃料后处理元件去壳时才全部释放。其中主要的放射性核素为碘同位素,惰性气体(氡、氡、氡同位素),⁹⁰Sr、¹³⁷Cs、钷及超钷元素,³H和¹⁴C等。由此可见,气载放射性废物中的污染物可分为惰性气体、放射性粉尘和气溶胶、碘同位素等挥发性核素、氟化氢气(HT)或氟化水蒸气(HTO)等四种类型。气载放射性废物的净化处理应针对这四类污染物的特性选用合适的方法和工艺。

与液体废物相比,气载放射性废物排放可能造成的污染范围更大,对环境的影响更难预测和控制,因此,其净化处理及排放控制更应引起足够的重视。

10.3.2 粉尘与气溶胶的分离

一般的工业除尘设备可用于分离气载放射性废物中的粉尘及颗粒较大的气溶胶物质,亚微米颗粒的气溶胶污染物则需采用高效过滤装置净化去除。

10.3.2.1 除尘

一般工业中空气除尘可分为三个阶段:

① 粗净化,主要去除粒径大于 $60\mu\text{m}$ 的粉尘颗粒,为多级净化系统中的第一级,常用的装置为降尘室和旋风分离器;

② 中净化,主要去除粒径为 $10\sim 60\mu\text{m}$ 的粉尘颗粒,净化后空气粉尘浓度一般不大于 $100\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$,常用的装置为泡沫除尘器;

③ 细净化,主要去除粒径小于 $10\mu\text{m}$ 的粉尘颗粒,净化后空气粉尘浓度为 $1\sim 2\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$,常用的装置为布袋、填料及油过滤器。新型的电除尘器对微米粒径颗粒物的去污效率可达99%以上。

10.3.2.2 气溶胶的过滤

放射性气溶胶颗粒的平均几何直径为 $0.02\sim 0.7\mu\text{m}$,而且质量浓度很低,通常为 $10^{-3}\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ 量级,大部分低效过滤器对这类颗粒的去污效率仅为5%左右,通常空气调节与通风系统中使用的性能最好的过滤器,对气溶胶的去污效率也只有80%~85%。

对放射性气溶胶最有效的过滤装置是高效微粒空气(HEPA)过滤器,这是一种一次使用失效后即行废弃的干式过滤器,对粒径为 $0.3\mu\text{m}$ 的气溶胶颗粒去污效率在99.9%以上。这种过滤器的滤芯由玻璃纤维、石棉纤维或合成纤维滤膜褶起来包裹在波纹板上而构成,波纹板既增加滤芯的机械强度,也提供空气在褶间的流动通路。滤膜是以孔径为 $1\sim 4\mu\text{m}$ 的织物为基质材料的亚微孔纤维织物,层间用有机粘合剂粘合。玻璃纤维滤膜有良好的耐火性能,而可燃的石棉纤维滤膜则具有特殊的用途。滤膜的厚度仅为 $4\mu\text{m}$,质量厚度为 $80\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$,因此,质地脆弱易碎,操作必须十分小心。温度超过 200°C 时,由于粘合剂烧尽,滤

膜强度即明显下降。

HEPA 过滤器主要用于去除亚微米粒径的气溶胶颗粒,当载质空气中含有浓度较高的粉尘、雾或棉绒时,滤膜孔隙极易堵塞,为此,必须设置通常的除尘或过滤装置进行预净化,才能保证高效过滤器的去污效果和使用寿命。载质空气中的水分也会使过滤器性能恶化,必须预先去除,为此,可采用织物及非布纹纤维垫分离装置。

10.3.3 碘同位素和放射性气体的去除

过滤法不能去除气载放射性废物中的碘同位素和惰性气体,一般可采用活性炭吸附、活性炭滞留及液体吸收等方法去除。

10.3.3.1 活性炭吸附器

活性炭具有巨大的吸附内表面,其有效活性面积高达 $700\sim 1800\text{m}^2\cdot\text{g}^{-1}$,将其紧密充填在吸附器中,可吸附滞留载质空气中的碘。如要从湿空气中去除甲基碘(CH_3I)一类的有机碘化合物,活性炭须用碘化钾或三乙烯二胺(TEDA)等化学药剂浸渍处理。

未经浸渍处理的活性炭,在 $120\sim 140^\circ\text{C}$ 时仍能从湿空气中有效地吸附元素碘(去污效率大于 99%),载质空气相对湿度小于 70% 时,也能有效地吸附甲基碘,相对湿度大于 80% 时,对甲基碘完全无效。反之,经浸渍处理后的活性炭,在温度高达 135°C ,相对湿度为 100% 的条件下,仍能有效地吸附甲基碘。

活性炭吸附滞留元素碘的机制是碘分子在其活化表面上的物理吸附,滞留甲基碘的机制为浸渍剂与甲基碘之间的化学反应和放射性碘与稳定性碘两者之间的同位素交换。因此,浸渍活性炭对甲基碘的滞留容量与浸渍剂的性质、用量及状态等因素有关。

活性炭吸附器对碘的吸附容量随时间而下降,其原因是空气中碳氢化合物及水分占据了活性炭表面的活性位置,或与浸渍剂反应而导致活性炭“中毒”,浸渍剂的挥发也会导致吸附容量降低。因此,长期不用的吸附器使用前应更换新活化的活性炭。

10.3.3.2 活性炭滞留床

反应堆运行过程中产生的氮、氩等裂变产物惰性气体,在燃料包壳破损时有一部分会释放到一回路冷却剂中,在冷却剂脱气处理时,将伴随其中的溶解态氮、氩混合气体一起释放到大气中。

利用活性炭的吸附特性,使气载废物中的惰性气体在活性炭滞留床中滞留一定的时间,可使其在流出炭床时,惰性气体核素衰变到所要求的水平。

用椰壳、果壳制成的活性炭对氮、氩有良好的吸附性能,滞留床为常温操作,设备与操作过程简单,操作压力低,气体泄漏少。氮、氩混合气体在床内通过时间短,比较安全。炭床体积小,保持干燥状态的滞留床可长期使用,不需再生和更换活性炭。

10.3.3.3 液体吸收装置

液体洗涤吸收是去除气载放射性废物中碘同位素和惰性气体的另一种有效方法。如在淋洗液中掺加适量的 NaOH 或 LiOH ,可使元素碘转化为非挥发性的碱性碘化合物,加入硫代硫酸钠可加速其转化,提高去污效率,洗涤液则应作为放射性废液妥善处理。

各种气体成分在有机溶剂中的溶解度不同,氮、氩等惰性气体在氟利昂中的溶解度比氩、氧、氮要高得多,因此,可用这类致冷剂吸收惰性气体,这一方法制冷成本低,溶剂价廉易得,稳定性好。用洗涤法可从氟利昂中回收惰性气体,浓集后的惰性气体压缩注入高压气瓶

中,以便贮存。

10.3.3.4 低温分馏装置

将气载废物在 -170°C 低温下液化,通过分馏使惰性气体从中分离并得以浓集,这种方法对 ^{85}Kr 的回收率大于99%。

10.3.3.5 延迟衰变箱

反应堆气载废物中大多数放射性核素的半衰期小于1 d,通过贮存-延迟衰变,可使流出物中惰性气体的活度水平大为降低。贮存延迟30 min,惰性气体混合物的活度可降低50倍;延迟3 d,对氦去污比达 10^3 ;延迟35~40 d,对氙的去污比也可达 10^3 ,流出物中残留的气态核素主要是 ^{85}Kr 。

为了保证预定的延迟时间,衰变箱应有专门的设计,确保不同时间进入箱内的载质空气不发生错流,使其在箱内滞留预定的时间而有序地排出。

10.3.4 气载废物排放的控制管理

气载放射性废物的排放理论上也应按由源相关的公众剂量上界 E_{UB} 导出的年排放量上界进行控制管理,但是,气载废物的取样、监测远比废水的监测困难,因此,在核设施正常运行的情况下,通常监测公众生活环境中气载放射性核素的年平均浓度。与之相应的关键人群组因吸入而导致的年有效剂量不得超过对气载废物排放预先确定的其在剂量上界 E_{UB} 中占的份额,否则,即应按表10.7中的规定对排放总量施加限制。

表 10.8 压水堆核电厂气载放射性流出物归一化排放量管理限值^[5]

放射性核素	归一化排放限值 [Bq(GW·a) ⁻¹]
惰性气体	1.0×10^{15}
^3H	1.5×10^{13}
放射性碘	1.5×10^{10}
其它放射性气溶胶	4.5×10^9

10.4 固体放射性废物的管理

铀矿冶过程产生的废矿石及含铀尾矿,其所含核素的比活度较低,但其数量多,体积大,处置不当将对环境和公众健康造成很大的危害。反应堆乏燃料元件经一定时期的冷却贮存后,可作为固体废物作最终处置;反之,乏燃料如进行后处理,则将第一萃取循环产生的高放废液的玻璃固化体作为固体废物处置。此外,中、低放射性废水净化处理过程中产生的浓缩废液的水泥、沥青或塑料固化体,废弃的密封辐射源、金属或塑料容器、管道、阀门、工作服等中、低放射性固体废物也应作妥善的管理和处置。

10.4.1 固体放射性废物的去污和处理

10.4.1.1 表面去污

采用清洗、加热、机械、化学或电化学方法去除废弃的金属或塑料容器、管道、阀门等设备、材料表面的放射性沾染;去污后材料中核素沾染程度低于清洁解控水平时,可作为一般废物处置。不锈钢、碳钢、铜、镍等金属可重新回炉冶炼,再生金属中核素含量可进一步降低,不但具有很大的经济意义,还大大减少了需要长期处置的废物的数量和体积。

常用的化学去污剂有水/水蒸气、强无机酸、盐酸、有机酸/弱酸、络合剂、氧化和还原剂、洗涤剂、表面活性剂和有机溶剂等,常用泡沫去污及凝胶去污工艺进行去污。机械去污可分为表面清洗(清扫、擦洗、洗涤)及表面去除(喷砂、粗琢、钻凿、剥离),与化学去污同时或先后

使用,可获得理想的去污效果。电抛光、超声波、光烧蚀、微波粗琢、微生物降解等方法也可用于某些固体材料的表面去污,去污过程中产生的废液、碎屑应作为放射性废物妥善处理与处置。

10·4·1·2 减容

固体废物减容的目的是减少体积,降低废物包装、贮存、运输和处置的费用。

可燃性废物常用焚烧法减容,应选择适合的焚烧炉,保证燃烧完全,防止或减少有毒、易爆物质的产生,焚烧系统应有完善的排气净化系统,保证排入大气的放射性及其它有毒物质质量低于规定的限值。焚烧灰渣必须固化,装入密封容器后作最终处置。

松散的固体废物可采用压缩减容,表面去污处理后仍需按放射性废物作最终处置的废弃设备则经切割、破碎后再行压缩减容,并用标准容器加以包装。

10·4·2 固体放射性废物的包装、贮存和运输

10·4·2·1 包装

各类固体废物必须加以适当的包装后才能贮存、运输和处置。包装(包括废物容器、外包装容器、屏蔽容器和运输容器等)必须坚固、耐久、安全、经济,应按有关标准规定进行设计、制造和检验,并经审管机构审查批准。

10·4·2·2 贮存

废物的暂时贮存期不可过长,应适时回取进行固化或处置。贮存期间应确保废物的安全和容器的完好,贮存废物的体积和总活度应不超过设计规定或审管机构批准的限值。贮存库应有必要的屏蔽、装运工具、进排风系统和防火、防水、剂量监测及安全保卫措施,应建立废物档案和出入登记制度。经一定贮存期后,核素浓度和比活度降至清洁解控水平以下的废物可予解控,按非放射性废物处置。

10·4·2·3 运输

运输过程中应确保废物不泄漏、不丢失,包装容器不受损坏,工作人员和沿途公众的受照剂量不超过规定的限值,包装不符合标准的废物不得运输。要有安全、可靠的运输及装卸机具,运输路线的选择应考虑沿途的人口、自然与经济条件、交通流量、道路承载能力及通信条件等诸多因素。

10·4·3 固体放射性废物的处置

10·4·3·1 铀、钍矿冶废物的处置

铀、钍废石和尾矿应尽可能回填入废巷道或采空区内,力求减少地面堆存量。地面堆放场应设在废石场或尾矿库中,并采取必要的护坡和加固措施,防止发生坍塌或废物流失事故。应采取必要的措施防止废石和尾矿中的放射性核素和其它有害物质渗入地下水或随地下水迁移而污染水源和农田,堆放场周围应设置监测井,对地下水和渗出水进行监测。堆放场退役后必须进行表面稳定化处理或覆土植被,并保证其表面氡析出率和 γ 辐射率低于规定的限值。

10·4·3·2 中、低放射性固体废物的处置

中、低放射性废液净化处理中产生的泥浆、废树脂及浓缩液经水泥或沥青固化后形成的废物体以及失效废弃的密封辐射源等,经适当包装后,可采用近地表处置或地质处置等方式

作最终处置。

中、低放射性固体废物近地表处置是指在地表下或地表上的、具有防护覆盖层的、有工程屏障或无工程屏障的浅埋处置,或在地下几十米深处的岩洞处置。主要用于所含核素半衰期小于或等于 30 a(包括核素¹³⁷Cs)的中、低放射性废物的处置,其中所含长寿命核素的比活度应小于规定限值。近地表处置场必须确保在 300~500 a 的时间范围内,将废物中的核素限制在场址范围内,防止其以不可接受的数量向环境释放,通过各种途径向环境释放的放射性核素对公众中个人所致的年有效剂量上界亦不得超过 0.25 mSv。

场址选择时,应综合考虑地质、水文、气象、社会和经济等方面的因素,进行相应的代价-利益分析。处置场投入运行前,必须获得国家颁发的许可证,明确限定待处置废物的数量和性质、待处置废物所含核素总量和最大比活度、场内外环境监测计划、对废物处置情况和环境监测结果的报送计划、事故应急计划和补救措施。当处置场达到许可处置的废物数量或总活度限值时,应按核设施退役的有关规定实行正常关闭。

10.4.3.3 高放射性固体废物的处置

反应堆乏燃料元件或其后处理高放废液的玻璃固化体一类高放射性固体废物,经一定时期的贮存后,将放置在地表以下几百米深处稳定地质层中的处置库(地质处置库)内作永久性处置,确保在不短于一万年的长时期内废物中的放射性核素与生物圈可靠地隔离。

为防止废物中核素迁移至地表,确保环境的绝对安全,处置库应具有可靠的防水和滞留放射性核素的作用,为此,设计中通常采用多重屏障系统的设计原理。这一系统一般包括由废物体、废物容器、外包装、回填材料构成的四重工程屏障及地层岩石构成的天然屏障(图 10.6),每一重屏障都具有独特的重要作用。其中,回填材料是废物中核素向外辐射、扩散的缓冲物质,固定和支撑着废物容器在处置库中的位置,并起着密封处置区的作用。目前研究较多的回填材料是膨润土一类的粘土矿物。

10.5 核设施退役

10.5.1 核设施的运行和退役

核设施服役期满关闭,或因计划改变、发生事故等原因而提前关闭后,为保证工作人员和公众免受设施内剩余放射性物质和周围环境中残留放射性污染所导致的长期慢性照射及其它潜在的危害,应有计划地采取一些必要的措施,确保其安全、永久地退役。退役过程中要从设施中清除放射性物质和其它危险物料,对污染的设备和材料进行必要的清理,使原有场址可以不受限制或有限制的开放或使用。

核设施的退役可在其关闭后立即进行,也可在安全关闭一定时期后再行退役。在核设施的设计、运行和关闭阶段,都应采取必要的措施为设施最终安全而方便地退役创造必要的条件。

设计阶段应选择便于日常维修和退役作业的工艺方案,设施建造完毕后竣工图应妥善保存,以供维修及退役时参考。

运行寿期内应尽量减少污染物向场区内部及环境的释放,应采取严格的辐射安全措施和环境监测程序,以便及时发现污染物在场区内的扩散及向场外环境的迁移,并采取相应的

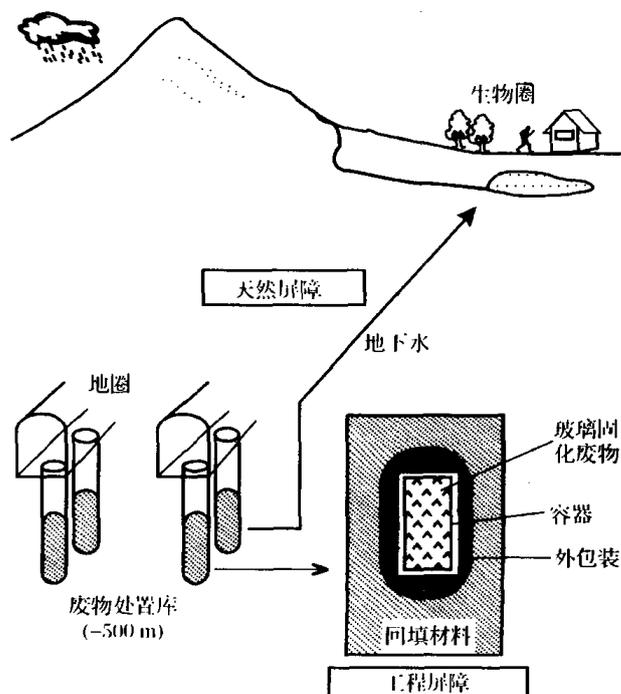


图 10.6 高放射性废物处置多重屏障示意图

纠正措施。应有规范化的日常维修及定期停运维修计划,停运维修目的是检查设备,进行预防性维修及更换必要的设备,使设施在运行寿期内始终保持正常运行状态。

核设施运行寿期结束后的安全关闭应为退役创造条件,应取出反应堆燃料(从堆中取出的乏燃料可返回燃料循环回收利用,或经一定时期的贮存后作为高放射性固体废物作最终处置),排空并冲洗反应堆及辅助设施的工艺系统,拆除并适当处置严重污染的设备,尽可能地清除设施内的工艺物料。

在安全关闭到实际退役工作开始之前的过渡期内,也应对设施进行必要的监视和维护,确保设备不受损坏,不向环境释放任何残留的物料,及早发现退役工作中可能存在的潜在危害。

10.5.2 核设施退役过程

10.5.2.1 退役目标

核设施退役主要的安全目标是控制设施关闭后可能存在的放射性及非放射性潜在危险,保护环境和公众的健康,并限制其对后代可能造成的负担(后代的负担包括其可能受到的潜在照射及在无限限制开放使用之前对关闭后设施监督维护和环境管理的责任)。这意味着在退役过程中和退役后,都应依据国际原子能机构(IAEA)、国际放射防护委员会(ICRP)等国际组织的有关建议和国家有关的法律、法规、标准和导则,对工作人员、公众和环境提供适当的防护,使之免受各种可能的危害。

退役过程中设备和场区的去污,污染设备的切割、拆除、处理和处置,环境的清理等作业都可能对工作人员、公众和环境造成新的危害,对此也必须严加控制。

在技术可行、经济合理并满足安全要求的前提下,退役过程中放射性废物的产生量也应控制在可合理达到的尽可能低的水平,对所产生的废物则应妥为处理和处置。

退役深度的确定、计划的制订、退役作业工艺的选定都应建立在最优化分析的基础上,尽量减少退役费用,力求以最小的经济代价获得降低公众辐射危害的最大利益。

10.5.2.2 退役深度

根据核设施退役后所达到的实际状态、相应的监控要求及场区的可利用程度,退役深度可分为3级。

一级退役,核设施就地有监督地全部封存,到适当的时候再进行去污(延缓去污)作业,或一直封存到污染自行降低到可接受的水平,最终达到允许无限制开放使用的状态。

二级退役,部分封存,对易拆除及不再需要的设施部件进行拆除、清理或去污,使之达到可接受的水平,使该部分设施与场区达到可无限制开放使用的状态,对其它遗留的设施实行有监督的密闭封存,相应的场区可有限制地开放使用。

三级退役,污染的设施去污、清污至可接受的水平或核设施全部拆除,使场区达到可无限制开放使用的状态。这意味着经去污清污后,退役后核设施的设施、材料、厂房、场区和周围环境在开放使用时不会对工作人员和公众中任何个人和群体的健康造成不利影响。

核设施退役深度的确定应充分考虑以下各项因素:

① 国家有关法律、法规、标准、导则对核设施退役的要求,这些要求涉及退役过程中及退役后设施对工作人员及公众所造成的辐射剂量的控制,退役过程中放射性及非放射性流出物的排放控制,退役废物的处理、整备、运输、贮存与处置,退役后设备、部件、材料再利用,设施、厂房、场区无限制开放使用所要求的辐射剂量及放射性污染水平的控制;

② 核设施关闭后放射性废物的贮存量,预期的辐射剂量、放射性污染水平及其随时间的降低速度;

③ 如采用一、二级退役深度,在预期的安全关闭期内核设施长期安全封存的可靠性;

④ 退役后核设施、场区及周围地区的土地使用规划;

⑤ 退役资金的筹集及最优化分析;

⑥ 退役废物的处理、运输、贮存、处置的设备、技术及场址条件;

⑦ 公众的心理承受能力。

10.5.2.3 退役的准备

确定了退役深度,完成了对核设施及周围环境特性的初步调查,进行了退役的辐射安全及环境影响评价,选定了退役作业方案之后,即应进行详细的退役工程设计和费用估算,制定退役作业进度,编制退役计划。

应查明核设施关闭后场区内放射性废物的贮存量,测量场区内外环境中的辐射水平和放射性污染水平,依据对不同退役深度提出的公众受照剂量约束值,导出相应的污染清除水平。在此基础上,确定场区及环境的清污要求和许可的残留水平,确定放射性废物的处理及处置方案,并据以选定去污、清污及拆除的技术、设备和必要的远距离操作设备。

应按工程、设施作业、辐射防护和安全、退役作业及其它有关的退役项目,建立相应的负责机构,配备人员,安排人员的培训,注意各项目之间的协调。

10.5.2.4 核设施退役作业

核设施退役作业包括设施实体退役的一切活动,设施内部应进行全面的清理,以往运行

中涉及的各种可移动的辐射源应清点无误,并作妥善处置。在此基础上,设施内残留的废物和需要屏蔽的系统设备,需经必要的处理后妥善处置,有些材料经去污处理后可就地复用,有的系统设备需要切割、拆除。当某些去污、清污、拆除与处理技术或设备尚处于开发阶段时,退役作业项目中还应包括对这类专项技术的开发,并为此提供必要的资金。要对废物的去污、处理、整备、处置设置就地的贮存及准备场地,应妥善考虑运往异地处置的废物的包装、运输所需的技术、设备和最终处置的场址及设施。

10.5.2.5 退役废物的管理

核设施退役时应核定设施内原有废物的数量、分布和所含核素种类,予以妥善管理;同时严格控制退役作业中放射性废物的产生,分类妥善处理,严格控制排放。

(1) 表面去污 采用清洗、加热、化学或电化学方法去除设施及设备表面的放射性污染,目的在于去除或固定松散的表面污染物,回收利用设备和材料,降低退役作业人员和公众的受照剂量,使厂房和场区或其局部达到不受限制地开放使用的状态,减少需要最终埋藏处置的设备和材料的体积,减少退役后设施内残留的放射性。

(2) 处理和整备 许多情况下,设施内原有的废物和退役过程中产生的废物都应经适当的整备和处理,方可排放或最终处置。处理工艺的选择应考虑技术的成熟性与可靠性,尽可能减少二次废物产生量,易于操作,方便设备的维修,降低处理费用,还应考虑某些安全因素。

固体废物的整备处理工艺包括切割、压实、金属材料的熔炼、固化和稳定化处理;泥浆采用过滤或机械脱水工艺使之减容与稳定;废水通常采用重力沉降、絮凝、过滤技术去除悬浮固体与胶体物质,离子交换去除离子态放射性核素;气载废物常用高效微粒空气(HEPA)过滤器去除气溶胶颗粒,活性炭吸附可从废液和气载废物中除去气溶胶、有机污染物及气体。

(3) 包装、运输和处置 固体废物应严格分类,以便分别处理和处置,要采取有效的管理措施,防止放射性废物的丢失或失窃。废物的包装应有足够的机械强度,以满足装卸、运输的要求。贮存在场区临时废物库中的废物应保证能在规定的贮存年限内随时顺利取出,并送往处置场。废物的贮存与处置应满足中、低放固体废物包装、贮存及近地表处置的技术要求。

核设施退役作业及环境清理中会涉及大量的极低放固体废物(如轻度污染又难以去污的水泥块和土壤),其最终处置应慎重妥善考虑。

10.5.2.6 退役的终止

完成核设施实体退役,废物得到妥善处置,进行了必要的环境清理和恢复,并确认场址已满足有限制或无限制开放使用的准则要求后,退役工程即进入终止阶段。这一阶段内应对场区及场外环境进行普查测量,核实设施内残留的放射性废物及其它有毒、危险废物的数量和分布,适当保留去污及废物处理能力,以应付万一发生超过开放准则许可的污染情况。

10.5.3 核设施退役的环境管理

10.5.3.1 核设施退役的环境管理程序

核设施退役前,营运单位应向国家辐射环境管理部门和主管部门提出退役申请并呈交退役计划和初步环境影响报告书;退役工程和作业应有专门的设计并报经主管部门批准;退役实施过程中应定期提交退役实施情况报告;实体退役完成后,应进行环境辐射普查测量,

并由审管机构授权的部门进行核查;营运单位应根据测量和核查结果编制并申报退役竣工报告书及退役后的最终环境影响报告书,经审查验收合格后,方可结束退役工作。三级退役竣工后的最终状态(退役终态)需经国家验收。退役后的设施和场区可移交接收单位,并进行必要的长期监护。

10.5.3.2 退役过程中的环境管理标准

退役过程中环境管理的主要目标是控制退役作业产生的放射性及非放射性流出物向环境的释放。一般情况下,退役作业对公众造成的照射剂量按核设施正常运行时的剂量约束值控制,每座核电厂退役向环境释放的放射性物质对公众成员(成人)造成的年有效剂量不应超过0.25mSv,其中气载流出物所致的剂量不应超过0.1mSv。退役作业事故对公众造成的照射剂量则按运行事故的剂量限值控制,一次事故所致的有效剂量不得超过5mSv,甲状腺当量剂量不超过50mSv。

退役过程中放射性流出物向环境的排放除按公众剂量约束值控制外,应同时满足核设施年排放量管理限值的要求。

为了满足以上各项环境管理要求,退役过程中产生的气载和液态废物应进行适当的净化处理后方可排放。

10.5.3.3 核设施退役终态的环境管理标准

在正常退役情况下,退役终态的环境管理标准应在实践的防护体系范围内加以考虑。为了适应不同的核设施类型、核素种类和环境条件,退役终态对公众成员的剂量约束值应有一定的选择范围,目前国家正在制定有关标准。

10.5.3.4 退役环境辐射监测

退役环境辐射监测包括退役过程中的监测和退役终态监测,前者目的是对退役作业过程进行监督,后者是为退役终态评价、验收提供依据。

退役过程中环境辐射监测的目的在于为公众受照剂量的估算与控制提供依据,监督退役作业按预先制定的操作程序进行,并及时发现异常情况。在核设施采用三级退役深度(关闭后即行退役,并允许无限制开放使用)时,厂房与场区的监测也应列入环境监测计划中。

退役过程中环境辐射监测的要求与运行期间的监测要求基本相同,但由于潜在释放的可能性大大减小,监测规模可适当缩小。

核设施三级退役达到退役终态后,场址及周围环境中放射性核素的残留水平很低,一般情况下可接近本底水平。因此,退役终态监测应参照本底调查的原则设计监测方案。监测仪器和方法应有较高的灵敏度和较低的可探测限。监测数据应进行统计检验,注意监测结果的正确表达,在与退役终态验收要求(清除水平)进行对比评价时,应妥善考虑测量数据的标准差范围。

10.5.3.5 核设施退役的辐射环境影响评价

核设施退役的辐射环境影响评价包括退役可行性研究阶段及退役终态的环境影响评价。退役环境影响评价的范围应根据不同阶段分别取值,退役作业期间与正常运行时的评价范围相同,以主要排放点为中心半径80km范围为评价区域。退役终态的环境影响评价可根据未来场址的用途结合区域地下水的走向和放射性核素迁移规律等条件取一定的范围。

核设施退役环境影响报告书的内容有:

① 厂址与环境状态,包括人口分布、土地利用和资源概况,气象,水文,地质、地震、居民健康状况、噪声等;

② 分析退役过程各阶段对环境的影响,其中包括各种放射性核素的释放源项、迁移途径及其对环境的辐射和其它影响,评价退役环境保护设施及退役工程三同时的方法措施是否完善与充分;

③ 分析退役过程各阶段作业中可能发生的事,评价事故后果及对环境的影响;

④ 提出退役过程各阶段的流出物与环境监测方案和相应的质量保证措施;

⑤ 评价退役终态是否符合国家有关的环境保护规定的要求。

参 考 文 献

- 1 International Atomic Energy Agency. The Principles of Radioactive Waste Management; Safety Series No 111-F. Vienna: IAEA, 1995
- 2 中华人民共和国国家标准. 放射性废物管理规定; GB 14500-93. 北京: 中国标准出版社, 1994
- 3 中华人民共和国国家标准. 放射性废物的分类; GB 9133-95. 北京: 中国标准出版社, 1996
- 4 中华人民共和国国家标准. 辐射源和实践的豁免管理原则; GB 13367-92. 北京: 中国标准出版社, 1993
- 5 中华人民共和国国家标准. 核燃料循环放射性流出物归一化排放量管理限值; GB 13695-92. 北京: 中国标准出版社, 1993
- 6 章仲侯主编. 放射卫生学. 北京: 原子能出版社, 1985
- 7 中华人民共和国国家标准. 反应堆退役环境管理技术规定; GB 14588-93. 北京: 中国标准出版社, 1994
- 8 中华人民共和国国家标准. 铀矿冶设施退役环境管理技术规定; GB 14586-93. 北京: 中国标准出版社, 1994
- 9 美国能源部主编. 核设施退役手册; DOE/EM-0142P. 王世盛等译. 北京: 核科学技术情报研究所, 1996
- 10 陈式. 慢性照射的防护原则及其在核设施退役中的应用. 辐射防护, 1997, 17(5): 349
- 11 潘自强著. 辐射防护的现状与未来. 北京: 原子能出版社, 1997

第 11 章 核事故应急

任何人类实践活动都存在着发生事故的可能性,因而,必然存在相应的事故应急问题。核设施运行过程中,不可能完全杜绝辐射源事故或具有概率性质的事件或事件序列(包括设备故障和误操作)的发生,因此,工作人员和公众都面临着受到可能产生,又不肯定会产生的潜在照射的危险。减小潜在照射意味着采取必要的措施,确保辐射源的安全(对核设施即为核安全),预防事故或事件(事件序列)的发生,降低潜在照射的产生概率;另一方面,事故或事件一旦发生,则减缓其后果,尽量减小工作人员和公众的受照剂量。对潜在照射的评价,应作为对实践的评价的一部分,但有时也能可导致需要干预。

潜在照射发生并对公众造成应急照射的情况下,应实施必要的核事故应急干预,减少公众的受照剂量。

11.1 核事故与核应急

尽管核设施按纵深防御原则采取了一系列的安全防御措施,在选址、设计、建造、调试、运行和退役各阶段都严格执行有关的法规要求,采取各种质量保证措施,力图保证设施的运行不对工作人员和公众造成不可接受的辐射危害,但仍不可能完全避免事故的发生。核事故一旦发生,将导致放射性核素以不可接受的量释入环境,对工作人员和公众造成不可接受的照射剂量。

11.1.1 国际核事件分级制

IAEA 和经济合作与发展组织核能机构(NEA/OECD)提出的国际核事件分级制,依据场外影响、场内影响及纵深防御降级等三项准则,将涉及核安全和辐射安全的核电厂事件分为七级(表 11.1),其中,场外影响准则适用于造成放射性核素向场外环境释放的事件,其涉

表 11.1 核事件分级的基本依据

级别与说明	准 则		
	场外影响	场内影响	纵深防御降级
7 级 特大事故	大量释放,广泛的健康与环境影响		
6 级 严重事故	明显释放,全面实施场外应急计划		
5 级 有场外危险事故	有限释放,部分实施场外应急计划	堆芯严重损坏	
4 级 主要在设施内事故	少量释放,公众受到规定限值量级的照射	部分堆芯损坏,对工作人员有急性健康效应	
3 级 严重事件	极少量释放,公众受到小部分规定限值的照射	严重污染,工作人员受到过量照射	接近事故——丧失纵深防御措施
2 级 事件			具有潜在安全后果的事件
1 级 异常			偏离规定的功能范围
0 级 低于本表级别			安全上无重要意义

及的最高级(7级)相当于造成广泛的公众健康与环境影响的特大事故;最低级(3级)意味着极少量放射性核素释放的事件,公众成员的最大个人受照剂量远低于年剂量限值。场内影响准则涉及的最高级(5级)意味着反应堆堆芯严重损坏;最低级(3级)意味着场内存在严重污染,工作人员受到过量照射。第三个准则涉及纵深防御降级的事件。无安全意义的设施个别运行参数偏离正常值范围的事件定为0级。

按通常的规律,越是严重的事故,其发生的概率越小,原因是严重事故为多重故障叠加而造成的。据粗略估计,本分级表中事件严重程度每提高一级,其发生概率约降低一个数量级。

表 11.2 所示为按以上三项准则确定的具体指标划分事件等级的国际核事件分级表。

表 11.2 国际核事件分级表

级别	说明	准 则	实 例
7级	特大事故	堆芯核素总量大部分向外释放,一般涉及长、短寿命裂变产物的混合物(放射学上相当于 10^{16} Bq 的 ^{131}I)。可能有急性健康效应,在广大地区(可能涉及一个以上国家)有晚发健康效应,有长期的环境后果。	1986年前苏联切尔诺贝利事故
6级	严重事故	裂变产物向外释放(放射学上相当于 $10^{15} \sim 10^{16}$ Bq 的 ^{131}I)。为限制严重健康效应,很可能需全面实施场外应急计划。	
5级	有场外危险 的事故	裂变产物向外释放(放射学上相当于 $10^{14} \sim 10^{15}$ Bq 的 ^{131}I)。某些情况下,为减少产生健康效应的可能性,需部分实施场外应急计划(如就地隐蔽及撤离)。由于机械效应和熔化,大部分堆芯严重损坏。	1957年英国温茨凯尔事故 1979年美国三哩岛事故
4级	主要在设施 内的事故	放射性向外释放,场外公众最大受照剂量达到 $\text{mSv}^{\text{①}}$ 量级,除当地食品控制可能需要防护行动外,一般不要求场外防护行动。由于机械效应和熔化,反应堆堆芯受到某些损坏。工作人员所受到剂量可能导致急性健康效应(Sv 量级) ^②	1980年法国圣洛浪事故
3级	严重事件	放射性向外释放超过规定限值,场外公众最大受照剂量达 $10^{-1} \text{mSv}^{\text{①}}$ 量级,无需场外防护措施。因设备故障或运行事件造成场内高水平辐射或污染,工作人员过量照射(个人剂量超过 50mSv) ^② 。安全系统的进一步故障可能导致事故工况的事件,或某些初因事件发生,安全系统不能防止事故发生的状况。	1989年西班牙范德略斯事件
2级	事件	虽不直接或立即影响核电厂安全,但有可能导致随后重新评价安全措施的技术事件或异常情况	
1级	异常	没有风险,但表明缺乏安全措施的功能或运行异常,这可能因设备故障或程序不当造成,应与不超过运行限值或运行工况及能按适当程度恰当管理的状况相区别(后述情况一般为“低于本表级别”的工况)	
0级	低于本表级 别	安全上无重要意义	

① 剂量以有效剂量表示,适当时也可用流出物的年排放量限值表示;

② 涉及急性健康效应范围的剂量应以吸收剂量(Gy)表示,为简单计,这里仍以有效剂量表示。

11.1.2 核应急和应急状态

核设施发生事故或事件,使场区内外的某些区域处于紧急状态的情况称为核应急状态(简称为核应急或应急),泛指有必要启动应急响应计划的任何状态。

为了有效地实施应急响应,必须对应急状态作必要的分级,我国和 IAEA 将核电厂应急状态分为以下四级。

(1) 应急待命 有关人员得到通知,进入准备应急的状态。宣布应急待命的目的是提供

执行必要的应急响应的基础,使运行人员作好准备,便于系统分析处理异常情况并作出相应的决策。

(2) 厂房应急 应急状态只限于场内部分区域,这些区域内的人员进入应急状态,并通报场外有关应急机构。宣布厂房应急的目的是启动核设施营运单位的应急组织,如事态恶化,确保应急人员能迅速有效地作出响应,必要时实施预定的应急辐射监测,向场外有关应急机构提供事件或事故的现况资料。

(3) 场区应急 应急状态只限于场区内,场内人员进入应急状态,并通报场外有关应急机构,必要时亦将部分进入应急状态。宣布场区应急的目的是保证场外应急机构立即配备必要的人员,派出人员进行应急环境辐射监测,如事态恶化,场区邻近区域公众可随时撤离,及时与场外应急机构协调,通过政府级应急组织向公众提供必要和正确的信息。

(4) 场外应急 应急状态已超出场区边界,执行全部场内、场外应急响应计划。宣布场外应急的目的是启动预先确定的公众防护行动计划,持续评价场内外有关机构提供的有关设施状态及辐射监测资料,必要时采取补充的防护措施,随时与场外有关应急机构协调,随时向公众提供有关事故的最新信息。

宣布应急状态等级的依据是预先确定的核电厂应急行动水平,即可以用作确定应急状态等级和开始执行相应的应急措施的某些阈值,它们可以是特定的仪表读数或观测值,辐射剂量或剂量率,气载、水载和地表放射性物质的特定污染水平。表 11.3 为轻水堆核电厂不同应急状态等级及相应的堆芯状态、放射性核素释放量及预期发生率。

表 11.3 轻水堆核电厂应急状态等级描述

应急等级	堆芯状态	核素释放量(Bq)		预期发生率
		相当于 ¹³¹ I	相当于 ¹³³ Xe	
应急待命	堆芯燃料没有损坏	很少,不要求场外响应或监测		每堆年 1~2 次
厂房应急	核电厂的安全水平出现实际或潜在的下降	$<3.7 \times 10^{11}$	$<3.7 \times 10^{14}$	每 10~100 堆年 1 次
场区应急	保护公众的核电厂设施功能明显丧失	$3.7 \times 10^{11} \sim 3.7 \times 10^{13}$	$3.7 \times 10^{14} \sim 3.7 \times 10^{16}$	每 100~1000 堆年 1 次
场外应急	堆芯已经或即将发生损坏	$>3.7 \times 10^{13}$	$>3.7 \times 10^{16}$	约每 5000 堆年 1 次

应急待命、厂房应急和场区应急状态由核设施营运单位应急指挥负责确定和宣布,当场外应急状态的初始条件显现并得以证实时,由单位应急指挥向省应急指挥建议,由省应急组织确定场外应急状态,报经国家核事故应急委员会批准后发布场外应急状态的命令和通告,必要时可先实施后报告。

11.1.3 核应急管理的方针和政策

我国核事故应急管理的方针是“常备不懈,积极兼容,统一指挥,大力协同,保护公众,保护环境”。

必须预先做好应付核事故发生的周密计划和准备,确保能随时作出迅速有效的应急响应。核应急工作应尽可能地与有关组织的日常业务有机结合,使应急工作得以落实、保持经常,避免重复投入和浪费。应急准备与响应由政府统一组织和指挥,有关组织和人员不得各行其是,必须明确职责,密切配合,协调一致。在应急准备和响应的全过程中,应采取各种有

效措施,确保公众和应急工作人员的安全,避免或减轻辐射损伤和其它损失,尽快消除事故后果,将损失减小到最低限度。

我国政府已批准了《及早通报核事故公约》和《核事故或辐射紧急援助公约》,对其中有关条款作出保留声明,并承担了相应的义务。同时,积极采用有关国际组织提出的关于核事故应急的标准、导则和建议,如国际核事件分级表、应急计划要考虑设计基准事故和超设计基准事故、干预水平和导出干预水平、应急状态划分、应急计划区、应急响应和防护措施等。

11·2 干预原则和防护措施

11·2·1 干预和干预原则

核事故对公众造成的照射是一种具有一定发生概率但又不一定会发生的潜在照射,潜在照射发生前,应按实践的防护体系(如核电厂的纵深防御)预防(减小事故的发生概率)和缓解(降低事故后果的严重程度)其危害。潜在照射一旦发生,辐射源、照射途径和受照个人均已存在,多数情况下已不可能通过源的控制限制公众的照射,通常只能采取补救行动,即对环境或人的行为进行干预而予以控制。无疑,事故一旦发生,最紧迫的任务是采取有效的校正措施,控制或减小事故源项,尽早停止事故释放,恢复正常状态。同时,必须对照射途径和受照个人采取必要的防护措施,将公众成员的受照剂量控制在引起确定性效应的阈值之下,以避免严重的确定性效应的发生,限制随机性效应的个人危险,并使涉及的个人获得净利益(防护措施本身的危害应小于由此带来的个人危险的降低),减小集体剂量。

显然,核事故的干预也应符合正当性和最优化的原则要求,干预行动相应的经济与社会代价和带来的危险之和应远小于通过干预降低剂量、减小辐射危害所相应的利益,力求获得最大的净利益。

11·2·2 事故分期和照射途径

为确定应急防护措施和干预水平,可将事故过程分为三个阶段。

从出现明显的放射性核素释放的先兆(即开始意识到可能造成场外影响)到释放开始后的最初几个小时为事故早期。在这一阶段,主要照射途径是放射性烟羽的直接外照射和吸入内照射;当烟羽中含有较多的颗粒态放射性物质时,地面沉积物的外照射也会成为重要的照射途径;个人衣服与皮肤沾染所造成的外照射也应予以足够的重视;此外,核设施工作人员与邻近区域内少数公众还可能受到来自核设施的直接外照射。

从开始释放放射性物质后的最初几小时起,直至事故发生后几天至几星期内为事故中期。一般地说,在此以前(早期),大量的核素释放已经结束,而且大部分已沉积于地面,因此,这一阶段的主要照射途径是地面沉积物外照射和食入内照射(系食用直接被污染的水或食物,或食用经食物链转移而间接污染的农作物所致);此外,地面沉积物再悬浮所造成的吸入内照射也是不可忽视的重要照射途径。烟羽外照射、直接吸入内照射及体表沾染外照射已降为次要照射途径。

从事故释放开始后几天至几星期起直至正常生活条件的恢复为事故后期,根据释放核素的性质、数量及受影响地区的特性和范围大小,事故后期持续时间为几周至几年不等。这

一时期内照射途径与事故中期类同,但食入内照射的影响范围可能扩大,涉及的公众人数可能更多。如果后期持续时间很长,核素经土壤向农作物转移造成的食入内照射可能成为重要的照射途径。

表 11.4 所示为核电厂及乏燃料后处理设施事故释放中可能产生明显辐射危害的一些重要的放射性核素。

表 11.4 对核设施事故可能具有潜在危害的一些放射性核素

核 电 厂				乏燃料后处理设施		
⁸⁵ Kr	¹⁰⁶ Ru	¹³³ Xe	¹⁴⁴ Ce	⁸⁹ Sr	¹³⁷ Cs	²⁴⁴ Cm
^{85m} Kr	¹³² Te	¹³⁵ Xe	²³⁹ Np	⁹⁰ Sr	¹⁴⁴ Ce	
⁸⁷ Kr	¹³¹ I	¹³⁴ Cs	²³⁹ Pu	¹³¹ I	²³⁸ Pu	
⁸⁸ Kr	¹³² I	¹³⁷ Cs		¹⁰³ Ru	²³⁹ Pu	
⁸⁹ Sr	¹³³ I	¹⁴⁰ Ba		¹⁰⁶ Ru	²⁴¹ Am	
⁹⁰ Sr	¹³⁵ I	¹⁴⁰ La		¹³⁴ Cs	²⁴² Cm	

11.2.3 应急防护措施

核事故一旦发生,可供选择采用的保护公众免受或少受辐射照射的带强制性的应急防护措施有隐蔽、服用碘片、撤离、避迁、进出通道控制、个人呼吸道和体表防护、人员去污、区域环境去污、食物和饮水控制及医学处理等。

每一种防护措施只对一种或几种照射途径的防护有效,因此,不同事故阶段和不同照射途径可采用的防护措施也有所不同(表 11.5,表 11.6)。

表 11.5 不同事故阶段的防护措施

防 护 措 施	事 故 阶 段		
	早期	中期	后期
隐蔽	* *	*	-
服用碘片	* *	* *	-
撤 离	* *	*	-
避 迁	-	* *	*
进出通道控制	* *	* *	*
呼吸道和体表防护	*	*	-
人员去污	*	*	*
区域环境去污	-	*	* *
食物和饮水控制	*	* *	* *
使用贮存的动物饲料	*	* *	* *
医学处理	*	*	-

* * 高优先使用;
* 低优先使用;
- 不适用或有限使用。

表 11.6 不同照射途径的防护措施

照 射 途 径	事 故 阶 段	防 护 措 施								
		隐 蔽	服 用 碘 片	撤 离	避 迁	通 道 控 制	个 人 防 护	人 员 去 污	区 域 环 境 去 污	食 品 和 水 控 制
来自核设施的外照射	↑ 早期	✓		✓		✓				
烟羽外照射		✓		✓		✓				
吸 入	↑ 中期	✓	✓	✓		✓	✓			
皮肤、衣服污染		✓		✓	✓	✓	✓	✓	✓	
地面沉积物的外照射	↑ 后期	✓		✓	✓	✓			✓	
吸入再悬浮物				✓	✓	✓	✓		✓	
食入污染的水和食物					✓				✓	

(1) 隐蔽 一旦发生核素释放事故,即让人们停留在屋内,关闭门窗和通风系统,并采取一些简易的个人防护措施。对于烟羽直接外照射及地面沉积物外照射而言,这是一种简易有效的防护措施。

隐蔽对公众的防护效果取决于建筑物对外照射的屏蔽性能和通风换气性能,表 11.7 为各类建筑物对烟羽外照射及地面沉积物外照射的屏蔽因子。对烟羽引起的吸入内照射的防护性能主要取决于建筑物的通风换气速率(密闭性),为此,除关闭门窗和通风系统外,必要时可在烟羽到达之前用湿报纸或湿布封闭建筑物,以增加建筑物的密闭性。烟羽一旦飘离,即应打开门窗,加快通风换气,尽快排出室内残留的污染空气。

表 11.7 各类建筑物的平均屏蔽因子⁽⁷⁾

建 筑 物	屏 蔽 因 子	
	烟羽外照射	地面沉积物外照射
木 房	0.9	0.4
木房地下室	0.6	0.05
砖 房	0.6	0.2
砖房地下室	0.4	0.05
高大办公楼	0.2	0.02
高大办公楼地下室	-	0.01

隐蔽所带来的困难、代价和风险都很小,可就地利用住房、公共建筑物作为分散或集中的隐蔽场所。

(2) 服用碘片 ^{131}I 及其它碘同位素是核设施事故释放中可能产生显著辐射危害的一种重要的放射性核素,因此,发放、服用碘片,阻断 ^{131}I 被甲状腺的吸收,对烟羽吸入及食入内照射途径都不失为一种有效的防护措施。

服用稳定性碘阻断甲状腺吸收的效果与服用时间有关,在一次摄入 ^{131}I 后,甲状腺中 ^{131}I 浓度在 6h 内达到最大值的 90%,1~2d 内则达到最大值,因此,应在吸入前或吸入后及时服用碘片,才能达到最佳的防护效果,吸入后 24h 服用已无任何效果。

最常用的稳定碘化合物是碘化钾(KI)和碘酸钾(KIO_3),其中 KIO_3 比较稳定,易于长期保存,一般制成片剂发放服用。对于不适于服用片剂的婴幼儿,可考虑通过食用海带等食物摄取稳定碘。成人在事故最初 1d 内应服用 100mg 碘当量,以后连续 7~10d 内每天服用 50mg,总剂量不超过 1g;1 岁以下儿童以每天服用 50mg 碘当量为宜。

服用碘片一般只适用于对吸入内照射的防护,因此,必须与其它防护措施结合使用。服碘后可能引起甲状腺和其它组织器官的某些不良反应,但其发生率是很低的。

实施这一防护措施,应备够相当数量的碘片或碘制剂,并需妥善保存和定期更换,事故发生时应及时发放,这需要有良好的组织措施作保证。

(3) 撤离 场区附近预期会受到大剂量照射的人数不多的公众,在放射性烟羽到达之前撤离原地,可有效地避免或减少烟羽外照射、吸入内照射、地面沉积外照射、再悬浮物吸入内照射所导致的辐射剂量,这是事故早期可采用的最高等级的公众防护措施,其防护效果与撤离时间有很大的关系,如在烟羽到达前未能及时撤离,烟羽通过期间则不宜采取这一措施,应先行隐蔽,待核素大量释放的烟羽飘离后再考虑实行撤离。当然,如预期还会有大量核素释放,则及早撤离也许还是可取的。不言而喻,公众撤离会涉及交通条件、通讯能力、撤离人员的安置、居民的动员组织、特殊人群(老弱病残和在押犯人等)的安排等多方面的困难,这些因素还受事故及源项的演变和气象因素的变化等诸多条件的制约,也会涉及经济代价、交通安全、公众心理及社会影响等诸多因素,涉及的困难、风险和代价相当大,决策时应慎重进行代价-利益权衡。

(4) 避迁 在事故中后期,当核素释放已经停止或基本得以控制,地面和建筑物表面沉积物所致的外照射即成为公众照射的主要途径,但区域环境去污还需要相当长的时间,为此,可考虑将公众迁离严重污染的地区,以减小长期慢性照射的剂量。

与撤离相比,避迁不是极短时间的人员迁移,其时间要求并不十分急迫,可按计划分批实行,因而涉及的困难和风险相对小得多,但其所需代价也很大,因为避迁涉及的人数比撤离更多,实施持续时间更长,必须考虑在相当长的时期内为大量人群提供居住饮食条件所涉及的经济代价及可能产生的社会与心理影响。

(5) 进出通道控制 进出通道控制是为了控制人员、车辆进出受影响的地区,目的是避免不必要地增加受照人数,避免污染的扩散和车辆、设备、物资的污染,减少对应急工作的干扰,便于清理道路和组织撤离。

(6) 呼吸道和体表防护 这一个人防护措施能有效地防护吸入气载和沉积放射性核素所致的内照射和体表沾染所致的外照射。公众在奔向隐蔽所、停留在隐蔽所内或由污染区撤离时,可用手帕、口罩、软吸水纸制品、棉布等物捂住嘴鼻,对应急工作人员,可采用防毒面具、气衣等个人防护衣具。

(7) 人员去污 人员去污常与体表污染监测同时进行,一般情况下,普通淋浴设施即可满足去污要求。当涉及人数众多、淋浴设施不敷使用时,可先小心地脱去外衣,然后洗头发、手和脸部,必要时可采用防化兵活动式去污设施。

去污废物应尽量收集后集中贮存,但去污废水一般难以收集,有扩大环境水污染的风险,去污过程中还会有人员交叉污染的可能。

(8) 区域环境去污 在事故后期,应对受影响地区的土壤、地面、道路、建筑物及设备进行必要的去污,可采用的方法有:冲洗或真空吸尘清除地面、道路和建筑物表面的污染;翻耕农田和牧场,将污染的土壤翻到深层,清除表层污染土壤;设备表面去污;喷涂薄膜固定道路、墙壁及设备表面的污染。

现场去污涉及范围广,工作量大,需要大量的人力、物力、专用的去污及运输设备、必要的废物贮存及处置设施,去污作业还受气象条件变化的影响,还应注意去污人员的个人防护。现场去污虽然代价极高,但在严重污染地区还是必要的,否则,禁止对污染区土地、道路、建筑物、设备和财产的使用,付出的代价将更大。

(9) 饮水和食物控制 事故中、后期对污染的水和食物的控制是针对食入照射途径的一种防护措施。食物控制包括食品的加工与转换(通过加工、清洗、去皮可清除蔬菜、水果、谷物表面的部分污染,被¹³¹I污染的牛奶制成奶制品延迟食用),禁止与销毁污染食品,采用未污染的替代食物,停止野外放牧,改用先期贮存饲料饲养家畜。饮水控制包括必要的净化处理,禁用污染水源并供应洁净水等。

向公众供应洁净食物和饮水涉及经济代价、运输、供应系统等诸多因素,大规模的水和食物监测也存在一定的难度。

(10) 医学处理 医学处理主要是现场急救受伤、受照射及受污染的人员,及时转送到指定的医院,现场急救首先是对有生命危险的外伤性损伤和急性放射损伤人员的必要治疗,也包括有限的体表去污和初步处理。

(11) 对超越边界影响的事故的防护措施 核设施发生严重事故时,大量的核素释放可能对邻国甚至更远的国家产生影响,这些国家也可能要采取一些必要的防护措施。一般情况下,受影响国采取的措施主要是针对食入内照射的食物控制措施,必须根据食物污染监测结果,遵循正当性、最优化原则慎重权衡和采取恰当的措施。有关国家之间应及时互通信息并进行必要的协调,避免在公众中造成混乱和不安。

11.2.4 干预水平和导出干预水平

11.2.4.1 干预水平的建立

事故时采取公众防护措施决策的基础是对个人危险的控制,这首先意味着对公众可能接受的照射剂量的控制。为此,有必要确定一个恰当的剂量水平,当预期个人剂量达到或超过这一水平时,就应进行干预(采取必要的防护措施),这一剂量水平即为干预水平。

采取防护措施的决策涉及每种措施相应的代价、风险与可能达到的降低辐射危害的利益之间的权衡,因此,藉以判断是否应采取某种防护措施的剂量水平必然与核设施场址及事故本身的特征有关,不可能建立单值的适用于所有情况的干预水平,只能对每个特定的防护措施规定一个适当的剂量范围,当公众预期剂量低于该剂量范围的下界值时,干预是不必要的,不需采取防护措施;预期剂量达到或超过其上界值时,必须采取措施进行干预;预期剂量处于上下界值之间时,应根据具体情况权衡利弊,作出相应的决策。

ICRP 在推荐干预水平剂量范围时,提出了以下三项基本原则:

- ① 以对公众成员的年有效剂量限值作为干预水平剂量的下界值,当预期剂量低于此下界值时,可认为干预是不正当、不必要的;
- ② 以发生确定性效应的剂量阈值为干预水平剂量的上界值,当预期剂量达到或超过此上界值时,干预是必需的;
- ③ 考虑到各种防护措施相应的代价与风险大小,代价和风险大的撤离的干预水平明显高于代价和风险小的隐蔽的干预水平。

据此,我国采用放宽后的公众年有效剂量限值 5mSv 为低风险防护措施的下界剂量,以发生确定性效应的阈剂量 500mGy 为高风险防护措施的上界剂量(表 11.8,表 11.9)。

11.2.4.2 干预水平的应用

国家对每种防护措施推荐的干预水平是上下界相差达一个数量级的剂量范围,核设施营运单位应根据场址及可能发生事故的特征,在这一剂量范围内确定适用于本设施的干预水平,并与所在地方应急组织的干预水平相一致。

表 11.8 早期防护措施的干预水平⁽⁷⁾ (mSv 或 mGy)

措 施	干 预 水 平	
	全 身	肺 ^① 、甲状腺或其它主要受照的单个器官
隐 蔽	5~50 ^②	50~500
服用碘片	-	50~500 ^③
撤 离	50~500	500~5000

① 肺受大剂量 α 粒子照射时,其数值以吸收剂量(mGy)乘以相对生物效应(RBE)求得,一般情况下,取 RBE=10;

② 或有效剂量;

③ 仅用于甲状腺。

表 11.9 中期防护措施的干预水平^{①,(7)}

措 施	第一年内的当量剂量(mSv)	
	全 身	肺 ^① 、甲状腺或其它主要受照的单个器官
控制食物和水	5~50 ^②	50~500
避 迁	50~500	未 定

① 对孕妇及特殊亚群的防护问题应特别关注; ② 或有效剂量。

事故发生后实际采用的干预水平可能不同于应急计划中的干预水平,它应是考虑事故的实际情况,并在代价-利益权衡后确定的一个具体的剂量值。

事故实况(包括当时的自然环境条件)的多变性将影响各种防护措施相应的困难、代价和风险,必须根据这些条件的变化灵活实施干预措施,要充分考虑事故释放的特征和数量,事故发生时的气象条件,以及对特殊人群的特殊考虑。

事故早期不可能进行防护措施的代价-利益权衡和干预水平的优化决策,通常,只要预期公众剂量超过发生确定性效应的阈值,就必须采用包括撤离在内的一切防护措施,无需作干预水平的最优化分析。

在事故后期,核素释放已经停止或已得以控制,局势逐步得以控制,需要加以防护的照射途径多与核素的地面沉积有关,这时采用的措施主要应考虑减小随机性效应的总发生率,因此,对集体剂量的控制成为主要的考虑因素。随着各方面条件逐步好转,要考虑选择比早、中期更为严格的剂量控制标准。事故后期一般已不会发生超过确定性效应阈值剂量的照射,干预水平的建立更应着眼于干预的正当性和最优化,并充分注意干预本身对公众的健康影响和公众的可接受性。

11.2.4.3 导出干预水平的建立

如前所述,干预水平是以剂量表示的,而导出干预水平则以环境物质中核素的活度水平或环境辐射水平的监测结果或预估值表示,它是干预水平的实际表达。在事故中后期已获得足够的环境监测数据的情况下,根据导出干预水平可迅速作出实施何种防护行动的决策。但在事故早期,由于来不及开展全面的环境监测,对防护措施的决策主要根据事故前核设施的运行参数和基于事故释放源项估算而作出的事故后果预测,因此,导出干预水平在事故早期的应用有一定的局限性。

针对各种可能的照射途径和相应的防护措施,导出干预水平可分别用 γ 外照射剂量率、空气中放射性核素的时间积分浓度、地面上核素的沉积密度及水和食物中核素的浓度表示(表 11.10)。

表 11.10 相应于各种照射途径及防护措施的导出干预水平

导出干预水平	照射途径	防护措施
γ 外照射剂量率($Sv \cdot s^{-1}$)	烟羽和地面沉积物外照射	隐蔽、撤离,避迁
空气中核素的时间积分浓度($Bq \cdot s \cdot m^{-3}$)	烟羽吸入内照射及 β 外照射,皮肤 沉积 β 外照射	隐蔽、撤离,服用碘片
地面上核素的沉积密度($Bq \cdot m^{-2}$)	沉积物的 β 、 γ 外照射,吸入再悬浮 物的内照射	撤离,避迁
食品、牧草或饮水中的核素浓度($Bq \cdot kg^{-1}$ 或 $Bq \cdot L^{-1}$)	食品和饮水的食入内照射	食物和饮水的控制

如以 IL 代表干预水平(单位为剂量),以 DIL 代表导出干预水平(单位为环境物质中核素活度水平或环境辐射水平),即有

$$DIL = \frac{IL}{DF} \quad (11 \cdot 1)$$

式中 DF 为广义的剂量转换因子,表示环境物质中单位活度水平或单位环境辐射水平所致的人体器官或全身剂量。

对于单一核素、单一照射途径的导出干预水平估算,DF值的确定不同程度上涉及核素由环境物质向人转移的各种过程,必须对其作模式化处理,其复杂程度因照射途径而异。对外照射途径,其处理比较简单,对内照射途径则相当复杂,计算的不确定度也较大。对于不同年龄组公众成员对内照射的灵敏度差异,目前选定婴儿、10岁儿童及成人三个年龄组,按不同的DF值进行计算。

例如,对于烟羽外照射,核素⁸⁵Kr对皮肤照射的剂量转换因子DF值为 $3.4 \times 10^{-15} \text{ Sv} (\text{Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3})^{-1}$,根据表11.8给出的事故早期可采取的防护措施及相应的干预水平,选定对隐蔽的IL值为50mSv,撤离为500mSv(均指皮肤剂量),利用式(11.1)可求得相应的导出干预水平分别为 1.5×10^{13} 及 $1.5 \times 10^{14} \text{ Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$,即当烟羽中⁸⁵Kr的预期时间积分浓度达到 $1.5 \times 10^{13} \text{ Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$ 时,应对公众采取隐蔽措施,达到 $1.5 \times 10^{14} \text{ Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$ 时,即应考虑及早撤离。表11.11为事故早期相应于烟羽皮肤外照射采取隐蔽和撤离措施的导出干预水平。

表 11.11 相应于隐蔽和撤离的导出干预水平,来自烟羽的皮肤外照射⁽⁶⁾

DIL和测定量	照射途径	防护措施	事故阶段
空气中核素的时间积分浓度($\text{Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$)	烟羽皮肤外照射	撤离,隐蔽	早期

导出干预水平(普遍适用)		
核素	空气中的时间积分浓度($\text{Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$)	
	撤离	隐蔽
⁸⁵ Kr	1.5×10^{14}	1.5×10^{13}
^{85m} Kr	1.5×10^{14}	1.5×10^{13}
⁸⁷ Kr	7×10^{12}	7×10^{11}
⁸⁸ Kr	4×10^{13}	4×10^{12}
¹³³ Xe	6×10^{14}	6×10^{13}
¹³⁵ Xe	9×10^{13}	9×10^{12}

核事故发生时往往同时释放多种放射性核素,每种核素又可能对公众存在多种需要加以防护的照射途径,这种情况下,先对每一种核素*i*的每一照射途径*P*分别求得导出干预水平 $\text{DIL}_{i,p}$,分别与相应的测量值或估算值 $L_{i,p}$ 对比,按下式判断采取某种防护措施的必要性,如

$$\sum_P \sum_i \left| \frac{L_{i,p}}{\text{DIL}_{i,p}} \right| \leq 1 \quad (11 \cdot 2)$$

则不必采取防护措施,反之则应考虑付诸行动。

实际工作中,没有必要对每一种核素及所有途径相加,应先对每种核素和途径的相对重要性作出判断,选择其中重要的核素和途径进行计算。这一工作应在制定应急计划时完成,并根据事故发生后的实际情况作必要的修正。

11.2.4.4 导出干预水平的应用

国家核安全局和国家环保局联合发布的安全法规《核事故辐射应急时对公众防护的导出干预水平》(HAF 0704/HEPA 9033)详细介绍了单个核素、单一途径导出干预水平的计算

方法和相应的 DIL 值,利用其给出的公式,代入反映场址局地环境条件和受照个人生活习性的具体参数值,可由预先确定的剂量干预水平估算出反映场址特征的导出干预水平。

11.2.5 应急照射的控制

实际参与应急响应行动的应急工作人员有营运单位的职业性放射工作人员,也有地方应急组织的非职业照射工作人员,这些人员一旦参与应急响应行动,受到的照射均按应急照射加以控制。

一般情况下,应急人员在应急和抢救过程中接受的应急剂量按职业照射的剂量限值加以控制,对于需要立即为控制事故和紧急抢救的应急行动,可暂时放宽,除抢救生命必需之外,应急照射的有效剂量不得超过 0.5Sv(皮肤不超过 5Sv),紧急状态一过,即应按正常情况下职业照射限值控制。

11.3 应急组织、计划和准备

11.3.1 应急组织与指挥

11.3.1.1 核事故应急组织体系

我国对核事故应急实行中央、地方政府和核设施营运单位三级管理体系,中央设立国家核事故应急委员会,核设施所在省、市、自治区政府设立地方核事故应急委员会,营运单位设立应急指挥部。

国家应急委员会由国务院与军队各有关部门负责人组成,其主要职责是制订核事故应急政策,统一领导全国的应急准备和响应,组织制订和实施国家应急计划,审批地方应急组织制订的场外应急计划,适时批准进入和终止场外应急状态,必要时直接指挥应急响应行动,审查批准核事故公报及国际通报,决定请求国际援助。

地方应急委员会负责本地区的应急工作,其主要职责是执行国家的应急法规和政策,组织制订场外应急计划,做好应急准备,统一指挥场外应急行动,组织支援营运单位的应急行动,及时向相邻地区通报事故情况。

核设施营运单位应急指挥部由应急指挥、副指挥及运行、检修、辐射防护、后勤、保卫和公众信息等应急组织负责人组成,下设相应的专业组,其主要职责是执行国家的应急法规和政策,制订本单位的应急计划,做好应急准备,确定应急状态,统一指挥场内应急响应行动,及时向上级及有关部门报告、通报事故情况,提出进入场外应急状态和采取相应措施的建议,协助配合地方应急行动。

11.3.1.2 应急响应的组织指挥

核事故一旦发生,各级应急组织应针对事故实况,正确决策,及时采取各种有效措施,妥善处置事故,力求将损失减少到最低限度。为此,应急响应的组织指挥应做到迅速掌握情况,及时准确地确定应急状态,快速启动,适度反应,尽力控制事故,防止事态恶化,充分运用应急响应技术,严密组织防护,做好公众工作,灵活、坚定、果断地处置情况,妥善处理涉外事宜,掌握关键,及时指导、协调和支援。

11.3.2 应急计划

应急计划又称应急响应计划,规定了核设施营运单位和地方向国家和公众承担的应急准备和响应任务,确定起动应急行动的基础,提出应急执行程序的目标和为此而建立的管理组织及其职责。

针对一个具体的核设施,营运单位、地方政府、核设施主管部门、核安全监督部门及军队都应制订相应的应急计划,必要时,与核设施所在地毗邻的地区也应制订应急计划。

应急计划应保证各应急组织之间的协调一致,营运单位和地方政府分别负责场内及场外应急准备和响应,但也应明确相互支援的具体职责。

应急计划应针对不同应急状态确定相应的响应行动。

营运单位和地方政府的应急计划经上级审查后,均应在设施投入运行前报国家核安全局审批,并报国家应急委员会备案。在场内外应急计划经审查认可后,设施方可装料运行。

11.3.2.1 应急计划的内容和执行程序

营运单位和地方政府的应急计划应包括的内容是:对计划中有关术语的说明;制订计划的目的、适用范围和负责单位;核设施的建设规模、运行和发展规划、隶属关系、地理位置、主要设施和功能;应急计划区的范围、环境特征和人口分布;应急状态分级及其判断依据;应急组织、岗位、人员、职责及相互之间的指挥与工作关系;通知的程序、内容、方法及对信息的核实手段;主要的应急设施、设备及其启用程序;不同应急状态下对实际和潜在的场内外后果的监测评价系统、设备和方法;主要的公众防护措施;公众教育的安排及向公众提供信息的渠道和方法;应急培训和演习;应急的终止和恢复活动等。

应急计划中还应包括具体的实施细则(即执行程序),以使应急组织和人员在应急中便于操作并协调一致,也可作为应急培训的操作规程。表 11.12 为 IAEA 提出的核电厂营运单位应急计划执行程序清单。

表 11.12 核电厂营运单位应急计划执行程序清单

(1) 发现紧急情况的人员的责任	(9) 关于辐射照射的估算、应急分类与防护行动等的指南
(2) 值班主任的职责	(10) 人员的撤离与清点核实
(3) 核电厂应急指挥的职责	(11) 对伤员与被污染人员的照料
(4) 提供化学和保健物理方面的支援	(12) 自然灾害应急时采取的行动
(5) 提供维修支援	(13) 火灾应急时采取的行动
(6) 提供技术支援	(14) 返回的程序
(7) 应急期间通道的管制	(15) 应急演练
(8) 通知程序	

11.3.2.2 应急计划中应考虑的事故和源项

核电厂在规定的运行限值和条件范围内的运行(包括停堆状态、功率运行、停堆过程、启动、维修、试验和换料)为正常运行状态。

运行寿期内预计可能出现一次或数次偏离正常运行状态的各种过程为预计运行事件。由于设计中已采取了适当的措施,这类事件不致引起安全重要物项的严重损坏,也不导致事故工况。

反应堆出现较大的燃料破损、冷却剂丧失等偏离运行状态的事故为事故工况,这种状态

下,放射性物质的释放可由恰当设计的设施限制在可接受的限值以内(严重事故不在其列)。按设计准则要求已采取了针对性措施的事故工况(如一回路中最大的堆冷却剂管道突然双端截断)又称为设计基准事故。

严重超过事故工况的状态(包括堆芯严重损坏)为严重事故。

表 11.13 及表 11.14 为我国核应急计划中采用的美国《反应堆安全研究》(WASH-1400)中用概率风险评价所求得的压水堆事故释放类别的定性描述和释放源项。

表 11.13 压水堆事故释放类别的描述

释放类型	事 故 描 述
PWR1	熔化燃料与在压力壳内底部残存的水接触,发生蒸汽爆炸,产生堆芯熔毁。安全壳喷淋和热量去除系统假定失效,蒸汽爆炸毁堆压力壳的上部和导致安全壳这一屏障的破坏,大量放射性物质可能在 10 min 内以喷团的方式从安全壳中释入大气环境
PWR2	堆芯冷却系统失效,堆芯熔化同时安全壳喷淋和热量去除系统失效。由于过压使安全壳屏障破坏。可能在大约 30min 内以喷团的方式向环境释放大量放射性物质
PWR3	安全壳热量去除系统失效,导致安全壳过压破坏。在堆芯熔化开始之前,放射性去除系统能局部工作
PWR4	失水事故后,堆芯冷却系统和安全壳喷淋注入系统失效。安全壳系统不能很好隔离。安全壳再循环喷淋和热量去除系统能去除安全壳内空气的热量
PWR5	与 PWR4 类似。堆芯冷却系统失效,但安全壳喷淋注入系统能运行,进一步减少安全壳的温度和压力。安全壳未能很好隔离,造成很大的泄漏率
PWR6	堆芯冷却系统失效造成堆芯熔化。安全壳喷淋不运行,但安全壳屏障完好直到熔化堆芯熔穿安全壳混凝土底部,放射性物质进入地下,一部分经地面释放大气中
PWR7	与 PWR6 类似,但安全壳喷淋投入运行减少安全壳内的压力和温度
PWR8	类似设计基准事故(大管道破裂),但安全壳未能在需要时很好隔离。其它工作安全设施假定运行正常,堆芯没有熔化
PWR9	类似设计基准事故(大管道破裂),仅仅在燃料芯块之间的间隙中的放射性物质释入安全壳,堆芯不熔化,假定按最低限度需要的工程安全设施满意地投入运行,去除堆芯和安全壳中的热量

应急计划所考虑的事故后果必须覆盖相当大的范围,除安全分析报告中所考虑的设计基准事故外,还必须考虑比这些假想事故工况更为严重的超设计基准事故。

应急计划考虑的需采取场外响应的大多数事故,主要涉及放射性核素向大气的潜在释放。向水环境的事故释放发生概率较小,而且一般要经过相当时间的延迟才会对公众造成照射。因此,核电厂和研究堆应急计划一般只考虑向大气释放的潜在事故,同时要考虑释放后核素沉积所引起的水体污染的影响。

11.3.2.3 应急计划区

应急计划区是指为保证事故发生后能迅速采取有效行动保护公众,在核设施周围需要实施应急计划的区域。实际发生事故时,对公众采取的防护行动可能仅限于应急计划区中的一小部分,但在发生极严重的事故时,也可能需要对应急计划区以外的部分地区采取防护措施。针对事故情况下的烟羽照射及食入照射途径,核电厂周围应分别建立烟羽应急计划区和食入应急计划区(图 11.1),显然,实际应急响应区域与烟羽迁移方向有很大的关系。

确定应急计划区范围大小的原则是,对应急计划所应考虑的事故进行分析,估计场外的预期剂量(即不采取任何防护措施条件下,公众成员可能受到的最大剂量),并与干预水平相比较,使应急计划区外的预期剂量不超过相应的干预水平。确定烟羽应急计划区大小应考虑的原则是:

表 11.14 压水堆事故释放源项数据汇总表^①

释放类型	发生概率 (1/堆·年)	事故发生到 开始释放的 时间 (h)	释放持 续时间 (h)	预计堆芯 熔化到释放 的时间 (h)	释放 高度 (m)	释热率 (英热单位/h)	释放量占堆芯总量的份额							
							Xe-Kr	有机 I	I	Cs-Rb	Te-Sb	Ba-Sr	Ru ^④	La ^④
PWR1	9×10^{-7} ^②	2.5	0.5	1.0	25	20 和 520 ^②	0.9	6×10^{-3}	0.7	0.4	0.4	0.05	0.4	3×10^{-3}
PWR2	8×10^{-6}	2.5	0.5	1.0	0	170	0.9	7×10^{-3}	0.7	0.3	0.3	0.06	0.02	4×10^{-3}
PWR3	4×10^{-6}	5.0	1.5	2.0	0	6	0.8	6×10^{-3}	0.2	0.3	0.3	0.02	0.03	3×10^{-3}
PWR4	5×10^{-7}	2.0	3.0	2.0	0	1	0.6	2×10^{-3}	0.09	0.03	0.03	5×10^{-3}	3×10^{-3}	4×10^{-4}
PWR5	7×10^{-7}	2.0	4.0	1.0	0	0.3	0.3	2×10^{-3}	0.03	9×10^{-3}	5×10^{-3}	1×10^{-3}	6×10^{-4}	7×10^{-5}
PWR6	6×10^{-6}	12.0	10.0	1.0	0	无	0.3	2×10^{-3}	8×10^{-4}	1×10^{-3}	1×10^{-3}	9×10^{-5}	7×10^{-5}	1×10^{-5}
PWR7	4×10^{-5}	10.0	10.0	1.0	0	无	6×10^{-3}	2×10^{-5}	2×10^{-5}	1×10^{-5}	2×10^{-5}	1×10^{-6}	1×10^{-6}	2×10^{-7}
PWR8	4×10^{-5}	0.5	0.5	无	0	无	2×10^{-3}	5×10^{-6}	1×10^{-4}	5×10^{-4}	1×10^{-6}	1×10^{-8}	0	0
PWR9	4×10^{-4}	0.5	0.5	无	0	无	3×10^{-6}	7×10^{-9}	1×10^{-7}	6×10^{-7}	1×10^{-9}	1×10^{-11}	0	0

① 本表取自美国《反应堆安全研究》(WASH-1400);

② 释放类型 PWR1 分成两种不同的能量释放类型 PWR1A 和 PWR1B; PWR1A 概率为每堆年 4×10^{-7} , 释热率为 5.86×10^{-3} kW (20×10^6 英热单位/时); PWR1B 概率为每堆年 5×10^{-7} , 释热率为 1.52×10^3 kW (520×10^6 英热单位/h);

1 英热单位/h = 2.93×10^4 kW;

③ 包括 Mo, Rh, Tc, Co, Ru;

④ 包括 Nd, Y, Ce, Pr, La, Nb, Am, Cm, Pu, Np, Zr.

- ① 设计基准事故时,该区域外的预期剂量不超过干预水平;
- ② 大多数堆芯熔化事故序列在该区域外产生的预期剂量不超过干预水平;

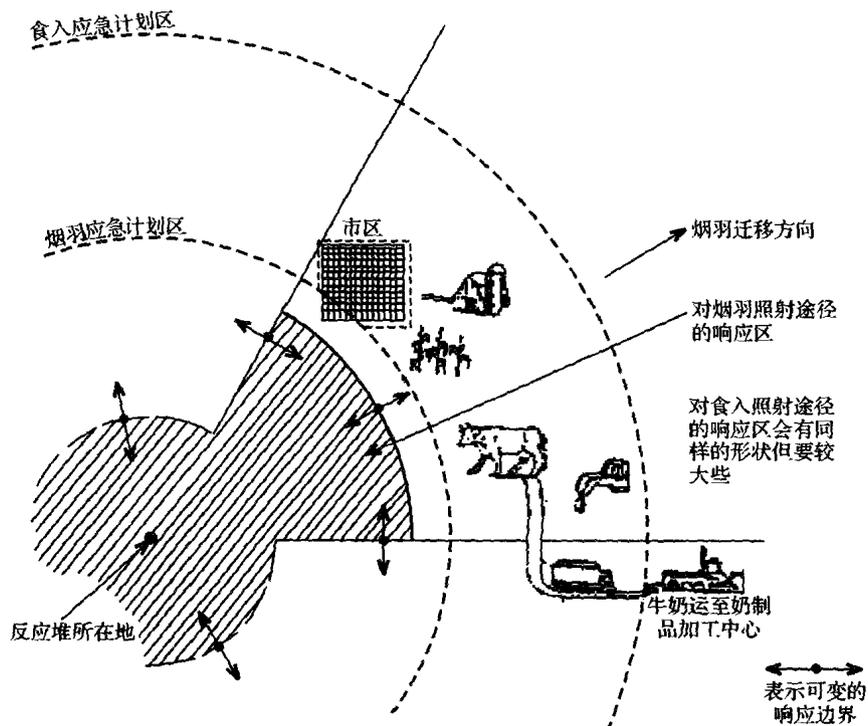


图 11.1 应急计划区示意图

③ 最严重的堆芯熔化事故序列在该区域外一般不会产生对生命立即有威胁的剂量。确定食入应急计划区大小应考虑的原则是:

- ① 放射性释放及其在大气中输运期间风向的可能变化,不会在该区域外造成超过食入干预水平的污染;
- ② 在大气中长时间悬浮的碘有可能在该区域内转变为不易进入食物链的化学形式;
- ③ 烟羽中任何一种核素在该区域内已基本沉降于地面;
- ④ 该区域外出现超过食入干预水平污染的概率与烟羽应急计划区外出现超过烟羽照射干预水平污染的概率基本相同。

表 11.15 为我国已建核电厂所建立的应急计划区范围。

表 11.15 我国核电厂应急计划区范围^{①,(3)}

应急计划区		主要防护措施	大亚湾	秦山
烟羽应急计划区	内区	隐蔽、撤离、服用碘片	0~5	0~3
	外区	隐蔽、服用碘片	5~10	3~7
食入应急计划区		食物和水控制	0~50	0~30

① 以反应堆中心为半径的 km 数。

11.3.3 应急准备

应急准备涉及核设施可行性研究、厂址选择、设计和运行等各阶段。

在可行性研究阶段,应按应急管理条例的要求,提出必要的应急措施,选择场内外应急设施的建设方案,对推荐方案作投资估算,应急准备资金应列入投资概算和运行成本。

厂址选择阶段应考虑当地实施应急计划的可行性,以及地震、洪水等自然灾害及人为外部事件对实施应急计划可能造成的影响。核电厂周围应建立外围地带或限制发展区,针对采取应急措施的可行性考虑对该区域内人口分布及密度、土地和水的利用加以必要的限制。

设计阶段应同时安排厂内的应急设施和设备,包括应急控制中心、辅助控制点、撤离路线和通讯手段等。

运行阶段应制订应急计划,确保一旦出现应急状态,能有效快速地实施场内应急响应,并能与场外应急机构配合。应急计划在核设施整个运行寿期内都有效。

在烟羽应急计划区,针对烟羽外照射、吸入内照射及地面沉积的早期外照射,主要的防护措施是隐蔽、服用碘片和撤离,地方应急机构对此应作好资料、物资、设备、设施、计划安排等方面的准备。

在食入应急计划区(包括烟羽应急计划区),主要的防护措施是对食物和饮水的控制,准备内容包括确定防止公众食用污染食品的方法及污染监测方法,防护措施的实施程序和必要的资料准备。

为维持应急响应能力,必须定期进行培训、演习,修订应急计划,维护应急设备,监督检查应急准备的状况。

11.4 应急环境辐射监测

11.4.1 应急监测的目的

应急监测的目的是尽可能及时、详细地提供有关事故对环境和公众可能带来的辐射影响的测量数据,为剂量评价及防护行动决策提供技术依据。

在事故早期,很难进行充分可靠的场外监测,防护行动决策的主要依据是营运单位提供的释放源项和气象数据,采用扩散、沉积及剂量计算模式估算公众的预期照射剂量。这一阶段在释放点附近范围内进行的某些测量,目的是对模式计算结果进行验证和校核,以提高早期防护决策的可信度。

在中后期,通过对整个受事故影响的区域内的环境辐射监测,了解烟羽及沉积所造成的剂量场及地面污染水平、核素成分及随距离的变化。

11.4.2 早期应急监测

事故早期场外应急监测的主要任务是尽可能多地获取有关烟羽特性(输运方向、高度、放射性水平和核素成分的时空变化),地面辐射水平(特别是居民区),来自烟羽及地面沉积的 $\beta-\gamma$ 和 γ 外照射剂量率,空气中放射性气体、易挥发污染物和微尘浓度及其核素成分等方面的数据。

应尽可能在事故发生后最初 1~2h 内获得一组环境中 β - γ 和 γ 剂量率的数据,按烟羽运输的大致方向,沿应急监测执行程序选定的路线在各监测点上测量,如烟羽中含有颗粒或气溶胶成分,还应适当地进行空气采样,部分空气样品最好能在测量车上就地测量,每个样品的采样量应保证能测到相应于导出干预水平下限的气载核素浓度。

11.4.3 中后期应急监测

事故中期的场外监测应从地域范围及详细程度两方面扩展早期已经开展的地面和水体污染巡测,并测定食用牛奶、水和食物的污染水平。后期则作必要的补充测量,为恢复行动的决策和对潜在长期照射的预测提供依据。中期重点监测的核素是放射性碘和铯,后期还应包括钚等超铀元素。

11.4.3.1 中期监测

由于烟羽已基本沉积到地面,中期对地表污染的监测已成为进一步防护决策最重要的依据,当污染范围很大时,可进行航测,并通过地面巡测进一步确定污染范围。为确定沉积物再悬浮的危害程度,还应适当采集空气样品进行监测。

食入途径监测包括牛奶、饮水及其它食品的污染监测,特别应注意核素成分的鉴别测量。烟羽经过地区生产的牛奶应暂先封存,根据监测结果是否超过控制水平再行处置,因此,应尽可能采用快速、灵敏的方法就地监测,以便必要时可就地封存,同时,应选取部分奶样进行完全的放化分析。

应对河流、核设施液体流出物的直接受纳水体及水库一类不流动的小型露天水体进行监测,应尽早在水源地、水厂进水管入口处及处理后水进入配水管网之前设置采样点。在静止水体中,除采集水面瞬时样品外,还应采集不同深度处的水样,以确定污染水平的深度变化。

应急计划区内及其它可能已受污染区域内所有非罐装及非保存食品也应封存或暂禁消费,根据地表巡测及对蔬菜、水果等最易受污染的作物的监测结果作处置决策。食品与作物监测的紧迫性程序为:未包装贮存的食物——已收割的作物——未收割的食用部位在地面以上的作物——未收割的食用部位在地下的作物——动物饲料。

11.4.3.2 后期监测

后期监测的主要任务是确定整个事故释放所造成的残余污染水平和范围,其涉及地域很广,需要大量人力、设备和相当长的时间。为后期恢复行动决策之需,应对外照射剂量、表面污染、空气污染及环境物质中放射性活度进行必要的补充测量。

应测量不同时段的剂量率及累积剂量,并测量污染核素成分的变化,为控制去污作业人员的受照剂量,还应测量建筑物内外的剂量率。

应特别注意道路、建筑物、动物、土壤和作物表面固定与松散的污染水平监测,为避免现场外照射本底的干扰,必要时可用擦拭法进行表面污染监测。

后期吸入危害主要来自地面沉积物的再悬浮,因此,必须进行空气污染监测,确定微粒的粒径分布和核素组成,并应与地表污染监测结合进行。

后期应对牛奶、肉类及其它动物类食品、植物、水和水生物进行监测。

11.4.4 个人应急监测

对公众及应急工作人员应进行必要的个人外照射剂量监测,对应急人员应配备个人剂量计,对公众一般依据环境剂量率测定值及其在各处的停留时间估算外照射剂量,必要时可向少数公众分发个人剂量计,以获取不同人群受照剂量的指示值。

对各类人员体表及体内污染的监测对防止污染扩散和降低内照射累积剂量具有重要的意义,体表监测一般在污染区出入通道口和其它某些区域的分界处进行,一旦发现污染,应及时去污。体内监测可分为排泄物测量和活体测量两类,排泄物样品主要是尿,有时也可采集粪便、呼出气及汗水样品。反应堆事故情况下,监测核素主要是 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 和 ^{239}Pu ,尿中总 α 及总 β 活度常用作判断污染是否存在的初筛依据。活体测量主要是全身和甲状腺测量,有时还应进行肺中钚的测量。

11.5 事故后果的预测评价和干预决策

11.5.1 预测评价的目的和要求

在核设施安全分析、环境影响评价、选址评价、概率风险评价和应急计划制订、演习、响应中都要进行事故后果的预测评价,其评价方法基本相同,但由于评价目的与要求的不同,也会有相当大的差异。

事故后果的实时评价包括对事故的环境监测、后果的模拟计算及对监测或计算结果的分析与评价,目的在于了解已发生的事故的类别和规模,计算、预测或估算其后果,为应急响应决策提供依据。

评价中首先应考虑事故的规模、释放时间及持续时间,事故的规模主要取决于核素的释放量,最初只能作推测估计,随着评价的进行,依据场外监测结果,对释放量及场外后果的估计将逐渐精确。

场外后果主要包括个人剂量、集体剂量、辐射所致急性死亡、急性损伤、晚发癌症死亡人数及财产损失等,为便于干预决策,应尽量采用与干预水平或导出干预水平相应的参量。因此,事故早期应采用个人吸收剂量,后期则宜采用集体剂量。

11.5.2 影响事故后果的基本因素

事故释放源项是影响后果最重要的因素,其主要参数是核素释放总量,各类核素(特别是长寿命核素与短寿命核素)的相对比例,气体、挥发性核素、气溶胶和颗粒物的相对比例及释放持续时间,还应考虑这些参量随时间的变化。

事故发生的季节、日期和时刻对后果也有很大的影响,在农作物行将收获的季节,事故造成农作物污染的危害最为严重。不同日期、时刻核设施周围人口密度和人口数也会有所变化。

放射性物质在大气、水等环境物质中的弥散条件,核设施位置,应急计划区内的人口密度、分布和年龄构成,居民住宅情况、人防设施设备和建筑物的屏蔽性能,应急响应计划、设施、准备状况及人员的技能状态等因素对事故后果的严重程度都有不同程度的影响。

应急期间,营运单位与地方应急机构应密切配合,尽早获取与上述诸因素有关的各项参数数值。对于源项的估计,可根据设施的系统参数和流出物监测结果确定,也可用安全壳内空气污染水平监测结果和安全壳在实际事故压力下的泄漏率估算,如这两种方法均无法使用,也可采用 WASH-1400(表 11.14)中 PWR7 源项值或本设施概率安全评价所得到的源项初步估计事故后果的严重程度。

11.5.3 事故剂量预测和干预决策

实际发生事故时剂量预测的重点是对大气释放途径所致剂量的实时预测,其基本步骤是在对释放源项的预测和获取实时气象参数的基础上,先采用有关的输运、弥散模式、公式和参数,预测烟羽的输运方向、在空气中的弥散和地面沉积,而后按相应的剂量模式和剂量转换因子,估算烟羽外照射、吸入内照射、地面沉积外照射、食入内照射的预期剂量,并预测其时间-空间变化。

在事故早期的干预决策中,应将为期 1d 至 2 周内的“短期”预测剂量与早期干预水平作对比评价,在中期,应将事故后第一年内的外照射剂量与中期干预水平作对照。图 11.2 所示为惰性气体持续释放 6h 内以及释放停止后,在不采取任何防护措施和采用隐蔽、撤离措施后应急计划区内公众成员预期的烟羽全身外照射累积剂量随时间的变化及其与撤离干预水平的关系。图中实线 OA 为从开始释放到开始采取行动 1h 内已接受的累积剂量,虚线 ABC 为不采取任何防护措施时的预期剂量(从图中可见,释放开始后约 2.5h 达到干预水平的下界值 100mSv),虚线 ADE 表示从释放开始后 1h 到释放停止期间隐蔽于室内(屏蔽因子为 0.5)的预期剂量,曲线 DGH 表示在室内隐蔽 2h 后开始撤离条件下的预期剂量。从图中可见,不采取行动及隐蔽条件下的预期累积剂量均处于撤离干预水平上下界之间,因此,是否采取撤离措施尚需根据实际情况决定。

早期干预决策贵在及时,除各种照射途径所致公众受照的预期剂量大小之外,还应考虑可能采取的干预防护措施涉及的经济代价、对公众的心理、政治及社会影响。此外,决策者的主观意向对决策过程也有很大的影响。

11.6 事故后期的环境恢复

11.6.1 应急状态的终止

当确认反应堆和其它有关设施已处于稳定状态,放射性核素释放已经停止或已处于排放限值范围内,场区辐射水平已不再升高或已开始下降,不存在危及核设施和场内人员安全的大火或其它可能导致应急的条件,各种事故隐患已经排除时,营运单位应急指挥即可决定并宣布终止场内应急状态,并立即向上级主管部门、国家核安全监督部门和地方应急组织报告。

当上述各项条件得以满足,并确保将继续采取一切必要的措施保护公众免受污染,使事故可能引起的长期照射降至最低限度,场外应急指挥即可会同营运单位向国家核事故应急委员会报告,提出终止场外应急状态的建议,获得批准后宣布终止应急状态的決定。

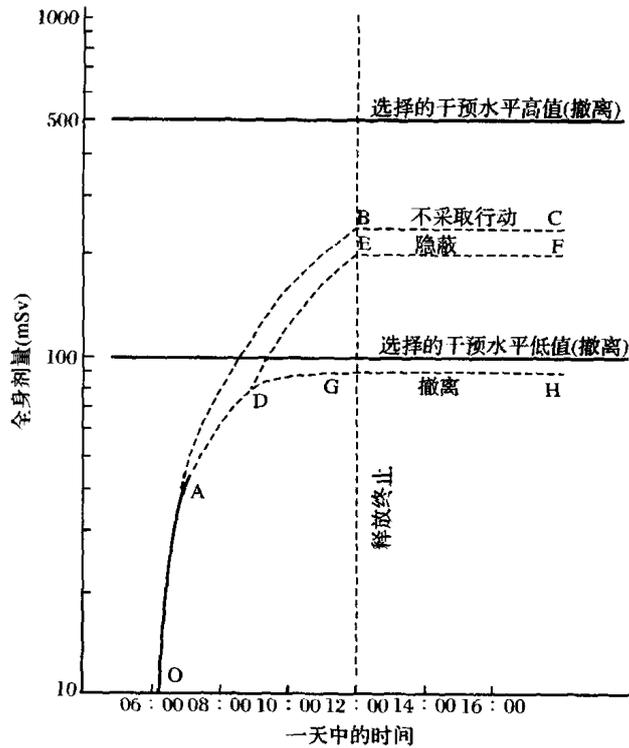


图 11.2 应急计划区内居民全身浸没照射预期累积剂量随时间的变化及与干预决策的关系示意图

11.6.2 事故后期的环境恢复

应急终止后,地方应急组织应及时开展恢复活动,对直接受核事故影响的人员加以保护,恢复环境和公众的生活条件。

事故后期核素释放已经停止,烟羽照射已不存在,短寿命核素已大量衰变,公众照射主要来自沉积于地面、建筑物和各种物体表面的 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{89}Sr 、 ^{90}Sr 、 ^{144}Ce 等长寿命核素导致的 β - γ 和 γ 外照射和食入污染食物和水引起的内照射,因此,恢复活动主要涉及以下内容:

- ① 继续进行不间断的环境监测,查明场外污染区域辐射水平的变化,对可能造成内照射的各类食品和环境物质样品进行分析;
- ② 对污染区进出通道的管制;
- ③ 食物和水源的控制,受污染的食物和水作适当处理后方可食用,或从别处调运未受污染的食物和水供应公众;
- ④ 区域环境去污。

11.6.3 区域环境去污

事故后期区域环境去污目的是降低外照射及食入内照射剂量,为此,应根据核设施及所

发生事故的特性,环境条件和公众居住、膳食情况,确定恰当的环境去污水平。消除物质、人员外表面和环境中的放射性污染物;将非固定性污染固定以避免其扩散;用水泥、土壤等覆盖,或用深耕法将污染的表层土翻到地下深处。场外去污的主要对象是道路、土地、农田、建筑物、运输设备、林地、植被和人员,主要污染物为 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 等长寿命核素。

11.6.3.1 去污计划和管理

环境去污投入人员及机械设备多,持续时间长,组织指挥复杂,应结合场外应急计划同时制订相应的去污计划。

去污计划的基本内容有去污目的,放射性污染物的特征,去污组织管理,环境去污水平,去污方法,去污执行与后援单位的合作协议,数据管理和执行程序,后勤保障,废物的运输和处置,去污人员的防护措施等。我国对核电厂场外去污的工作主要由军队承担。

11.6.3.2 去污技术和方法

应针对不同的去污对象、要求以及场外具体条件,选用适当的去污技术和设备,力求用最低代价、最大效益的方式,在最大限度地减小事故的总体影响及对去污人员的净损害两者之间达到最佳平衡。

(1) 建筑物、设备和硬质路面的去污 城市中的机动清洁车和真空吸尘车加装空气喷头,对场外硬质路面和场地总去污率可达90%。液体去污前先用这种方法处理,可防止污染物在表面上固定和向孔隙中渗透。

消防水龙和高压水喷射可分别用于道路、建筑物内外墙、机械设备的冲洗去污,但应妥善收集与处理冲洗污水,否则会导致污染的转移和扩散。

车辆、设备、厂内有涂层和钢衬的小室,用添加去污剂的水蒸气喷射,可部分或全部除去表面涂层,达到去污目的。

含有硫酸钠、碳酸钠、柠檬酸、EDTA及铵盐等去污剂或络合剂的去污液,对建筑物、设备和硬质地面的去污效率可达99%,但也应妥善收集、处理去污废水。

严重污染的水泥表面,可用机械破碎,产生的大量极低放废物应妥善处置,并应防止灰尘飞扬,该作业劳动强度大,不宜大范围使用。

将由成膜剂、混合溶剂、增塑剂、剥离剂配制而成的液体或胶液涂于污染表面,干燥后形成的薄膜可方便地剥离,适当添加去污剂,可达到理想的去污效果。该方法不产生去污废水,剥离下来的薄膜层作为固体废物处置。常用的有水基乙烯树脂及聚乙基分散体两类可剥离覆盖层。

去污作业使用的车辆、消防带、泵等机械设备可先涂以防沾染油漆或可剥离覆盖剂预作临时防护,污染洗消应在去污中心进行,水法去污前应先用清吸、吹尘、擦拭方法或专用清洗剂清洗。

(2) 土地的去污 在粗颗粒的土壤或砂砾层中,放射性核素大多与细小的粘土颗粒相结合,从土壤中除去粘土颗粒,可有效降低污染水平,但必将降低其肥力。加入水、化学洗涤剂或采用化学分离技术的惯性和重力分离方法,也能有效去除土壤的污染。

用深耕方法将污染的表层土翻至一定的深度,可降低地面外照射剂量,耕后农田应种植浅根作物,以防止污染核素经食物链对人造成内照射。

农作物阻留了大量的放射性沉降物,清除这些作物也可有效地去除污染,必要时也可用机械铲除表层污染土壤,铲下的作物和土壤必须妥善处置。

(3) 林地的去污 烟羽沉积导致的林地污染主要集中在树冠部分,加上林区条件的限制,上述各种去污方法均难以使用。对林地的去污通常可采用封闭、向树冠喷洒聚合物将污染核素暂时固定在树叶上、砍伐树木或任其经由生态过程自然去污等方法。

11·6·4 放射性废物的运输和处置

大面积区域环境去污产生大量的污染土壤、水泥块、沥青、植物和废弃设备,这类废物均应妥善处置,有的可就地掩埋,有的则要运送到适当的地方集中处置。

现场掩埋可用推土机、挖掘机或括土机直接将污土送到现场开挖的沟坑中,中、短距离运输可用垃圾车,长距离运输则要采用火车运送,为控制驾驶人员的照射,车辆应适当屏蔽,要防止沿途废物的洒落,选择避开市区、人口集中地和交通主干道、离处置场距离最短的运输路线。

处置场应确保污染核素(主要是¹³⁷Cs和⁹⁰Sr)在几百年内与环境有效隔绝,贮存处置的方法有:

- ① 利用自然盆地或在河流下游尽头的河谷建造堤坝筑成人工盆地;
- ② 就地挖掘沟坑掩埋,大型沟坑掩埋可提高土地利用率;
- ③ 利用废弃的采石场、露天矿区、地下矿井或大型护堤。

处置场应预先铺垫粘土或其它不透水隔层,减少核素的渗漏和迁移,废物堆放后表面应覆盖粘土、其它干净的土壤或碎石,并采取必要的防水措施,周围应挖排水道,以便及时排除雨水,防止处置场周围淹水。

参 考 文 献

- 1 国家核安全局等. 安全导则——核事故辐射应急时对公众防护的干预原则和水平:HAF0703, NEPA9002. 北京: 1991
- 2 国家核安全局等. 安全导则——核事故辐射应急时对公众防护的导出干预水平:HAF0704, NEPA9003. 北京: 1990
- 3 国家核事故应急委员会办公室等. 核事故应急响应教程. 北京: 原子能出版社, 1993

Images have been losslessly embedded. Information about the original file can be found in PDF attachments. Some stats (more in the PDF attachments):

```
{
  "filename": "XzEwMzA4MTI1LnppcA==",
  "filename_decoded": "_10308125.zip",
  "filesize": 33580633,
  "md5": "e1e3d9d168bb5cbb15e474fac5ed4b7a",
  "header_md5": "4e9d6adc4997e12c33cf8a855cc95c5d",
  "sha1": "1232ee31356e0f1db740f73d8a0cd1b87d3b99e5",
  "sha256": "b408f60f8831d38e6fe01bc56f3bb8d7e87b11c62906ea56536dc7a16c0adbd6",
  "crc32": 3812102632,
  "zip_password": "wcpfxk&^TDwcpfxk",
  "uncompressed_size": 34044173,
  "pdg_dir_name": "",
  "pdg_main_pages_found": 319,
  "pdg_main_pages_max": 319,
  "total_pages": 330,
  "total_pixels": 2352054272,
  "pdf_generation_missing_pages": false
}
```