

疑对进一步研究环境天然放射性问题作出了重要贡献。讨论会指出,目前和不久的将来,人类的照射将取决于天然放射性因素,其中由于生产工艺上的原因而改变了的天然辐射本底具有越来越重要的意

义。

(Б. К. Борисов: Гиг и Сан 8:61 63, 1979 (俄文), 周朝玉译、章仲侯校)

## 饮水中的钚: 氯化作用对它的最大允许浓度的影响

在水处理厂和供水系统中氯将 $\text{Pu}(\text{IV})$ 氧化为 $\text{Pu}(\text{VI})$ 。这个观察结果看来目前饮水中钚的最大允许浓度(MPC)值(普通民众为5微微居里/毫升)偏高,要高出几个数量级。计算最大允许浓度所用的胃肠吸收系数是以喂给或灌胃给动物 $\text{Pu}(\text{II})$ 或 $\text{Pu}(\text{VI})$ 或是两者的溶液的实验结果为根据的。在导出这个系数时,由于考虑到文献中尚未报导 $\text{Pu}(\text{VI})$ 的吸收比 $\text{Pu}(\text{IV})$ 高三个数量级或水处理期间能形成 $\text{Pu}(\text{VI})$ 的结论。

实验是在芝加哥市水处理厂和分布系统现有条件下进行的,整个处理厂和分布系统氯的浓度保持在大约百万分之一(ppm)。从开始氯化到消耗尽的平均消逝时间为24小时。(其它水处理厂处理期间平均氯浓度常常是较高的)。

我们在实验中用两种水:芝加哥饮水和模拟的芝加哥饮水。我们制备模拟的饮水是通过加足够的碳酸氢钾到蒸馏水中,使碳酸氢盐离子浓度以及pH与芝加哥的饮水相同。钚储备溶液是用99%以上为 $\text{Pu}(\text{IV})$ 状态的钚被稀释的碳酸氢钾溶液。氯为稀释的次氯酸钠溶液。加部分钚和氯储备溶液到水中,立即以及24小时后分析这些溶液的 $\text{Pu}(\text{IV})$ 和 $\text{Pu}(\text{VI})$ 。 $^{239}\text{Pu}$ 的浓度为2.0和0.002微微居里/毫升,氯浓度为1.0和9.8ppm,溶液pH为8.6。

我们用经典的氟化钼方法测定各种氧化状态的钚量。在这个方法中, $\text{Pu}(\text{IV})$ 和氟化钼共沉淀,而 $\text{Pu}(\text{VI})$ 则不能共沉淀。从沉淀中和上清液中测定钚量就能计算出各种氧化状态钚的百分率。我们确定的结果是通过分析一些水样品得到的,在此方法中将 $\text{Pu}(\text{IV})$ 用离子交换从 $\text{Pu}(\text{VI})$ 中分离出来,在强硝酸中 $\text{Pu}(\text{IV})$ 极大地被吸附到Dowex-1阴离子树脂上,而 $\text{Pu}(\text{VI})$ 则不被吸附。

从用氟化钼法对 $^{239}\text{Pu}$ 浓度为0.002微微居里/

毫升的那些样品所得到的结果(表1)可以看出饮水的氯化作用导致 $\text{Pu}(\text{IV})$ 氧化为 $\text{Pu}(\text{VI})$ 。从 $^{239}\text{Pu}$ 浓度为2.0微微居里/毫升的水样品得到的分析结果与表1给出的没有明显的差异,也就是说,在此浓度范围内氧化作用比率与钚的浓度无关。

表1 在两类饮水中 $\text{Pu}(\text{IV})$ 被氯氧化为 $\text{Pu}(\text{VI})$

氯 浓 度 (ppm)	时 间(天)	百 分 率	
		$\text{Pu}(\text{IV})$	$\text{Pu}(\text{VI})$
芝加哥 饮 水			
1.0	0.01	98	1
1.0	1.0	28	69
9.8	1.0	4	92
模拟的芝加哥饮水			
1.0	0.01	97	1
1.0	0.1	25	72

\*这些值的每个误差为±3

在水处理厂中利用氯消灭有害的细菌,并在分布系统中防止细菌的生长,是一般的惯例,因此,必须考虑氯对钚的氧化状态的影响。Hamaker证明在醋酸盐缓冲液中(pH4.5~8.4)在80℃15分钟内 $\text{Pu}(\text{IV})$ 完全被氯氧化为 $\text{Pu}(\text{VI})$ 。然而,他的材料不能外推到水处理和分布系统中去。在他的实验中钚和氯的浓度高出一个数量级,而且温度是80℃,而不是10~-20℃。这些因素由于反应时间的延长(由数分钟到数天)而被抵销了。(在缺乏实验证明时,氧化作用要从标准的氧化电位来预测。在酸性溶液中 $\text{Cl}(0)-\text{Cl}(-1)$ 和 $\text{Pu}(\text{VI})-\text{Pu}(\text{IV})$ 的电偶分别是-13.6和-1.04V,而在硷性溶液中,它们分别是-0.89和-1.51V)。

1965年,国际辐射防护委员会(ICRP)第2

次委员会建立了一个关于铈和相关元素代谢的工作组。这个工作组制订了一个通用的胃肠吸收系数—— $3 \times 10^{-5}$ ，看来对可溶性铈化合物是合适的。在制定这个结论中，工作组没有考虑水处理期间会形成 $\text{Pu(V)}$ 的可能性，即使考虑了，他们推断Weeks等得到的 $\text{Pu(V)}$ 的吸收数据是不可靠的，或者推断 $\text{Pu(V)}$ 是在胃肠道中会迅速地被还原为 $\text{Pu(III)}$ 或 $\text{Pu(IV)}$ 或两者都有。

Weeks等研究了由大鼠经胃内给药后氧化状态时铈的吸收和滞留的影响。当投给的溶液中所有的铈都呈 $\text{Pu(III)}$ 态时，4天后骨骼中和肝中的滞留量是0.006%（投给剂量的百分率），而呈 $\text{Pu(IV)}$ 态时为0.001%，呈 $\text{Pu(V)}$ 态时是1.75%。80天后滞留量分别为0.010，0.001和1.75%。每个值为6只大鼠的平均值。他们得到的 $\text{Pu(III)}$ 和 $\text{Pu(IV)}$ 的结果和很多其他研究者得到的结果接近一致。由于那些实验中投给的铈是 $\text{Pu(IV)}$ 和 $\text{Pu(V)}$ 的混合物， $\text{Pu(V)}$ 百分率和被吸收的铈百分率之间的关系是非常大的。

工作组报告的作者们是知道Weeks等人的工作的，因为他们在胃肠吸收章节部分提到了他们。然而，他们陈述的实质指出，对于Weeks等人的材料的可靠性持有怀疑：“虽然证据不足，似乎是 $\text{Pu(V)}$ 比 $\text{Pu(IV)}$ 被吸收的更迅速”。如同所发表的材料，Weeks等进行的研究好像是十分肯定的。

$\text{Np(V)}$ 经大鼠胃肠吸收和 $\text{U(V)}$ 经人的胃肠吸收证实了Weeks等发现的 $\text{Pu(V)}$ 的吸收。 $[\text{Np(V)}]$ 和 $[\text{U(V)}]$ 二者是与 $\text{Pu(V)}$ 很相近的化学类似物。当各自从溶液中被特定的试剂沉淀

时，形成的化合物是同晶型的，它们与相同的配合基形成络合物并且其程度是可匹敌的，当它们都呈 $\text{VI}$ 价状态时彼此分离是极其困难的]Ballou等发现 $\text{Np(V)}$ 经大鼠胃吸收为2%。根据人及其食物中铀的测量Hursh和Spoor确定 $\text{U(V)}$ 的胃肠吸收在10~30%之间。人体内 $\text{Pu(V)}$ 的吸收不应有明显的差别，那就是，与 $\text{U(V)}$ 的吸收相比接近于大10倍。

胃肠道内的情况实际上是进行还原作用，在喝入水后可使 $\text{Pu(V)}$ 立即还原为 $\text{Pu(IV)}$ 。在这种情况下，计算最大允许浓度宁可用 $\text{Pu(IV)}$ 的胃肠吸收系数而不用 $\text{Pu(V)}$ 的胃肠吸收系数。对于Weeks等人的论文，我们在和其作者之一进行评论时获悉，他们的实验中，(i)投给铈前后大鼠断食；(ii)含有铈( $\text{VI}$ )的溶液以重铬酸盐计约为0.01M。因此，在投药时动物的胃肠道或许可能缺少那些还原 $\text{Pu(V)}$ 的要素，或许即使存在这些要素，它们可与重铬酸盐反应，从而阻碍了铈的还原。当时我们尚不知道在消化进行期间有 $\text{Pu(V)}$ 还原为 $\text{Pu(IV)}$ 的报导。

我们的研究表明，饮水的铈呈 $\text{Pu(V)}$ 状态，但是否咽下后 $\text{Pu(V)}$ 会立即被还原为 $\text{Pu(IV)}$ 尚待证明。在证实这一点时必须考虑到水和食物的消化未必是暂时地相关这个事实；当食物消化时， $\text{Pu(V)}$ 可能迅速地被还原，而当消化道是空的时候则不然。

[Larsen RP等;Science 201(4360):1008~1009, 1978(英文)张仲权译,赵光陆、朱昌寿审校]

## $^{90}\text{Sr}$ 和 $^{210}\text{Pb}$ 的大气阻留时间

### 引言

在一次大气层核试验后，通过观测所收集的雨水样品中 $^{89}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}$ 的比值能够推算出 $^{90}\text{Sr}$ 在对流层的阻留时间。阻留时间也可以从观测雨水样或空气滤样中氦子体 $^{210}\text{Pb}$ 、 $^{210}\text{Bi}$ 和 $^{210}\text{Po}$ 的比值计算出来。然而，Poet等人 and Moore等曾经报告，

在对流层中的大部份 $^{210}\text{Po}$ 来源于大陆表面，而不是来源于对流层内 $^{222}\text{Rn}$ 的衰变。因而，他们认为根据雨水和空气滤样中 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 比值算出的一些阻留时间值是十分不可靠的。为此，有必要一次大气层核试验后收集的一系列雨水样品通过同时测定 $^{89}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}$ 和 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 的比值而算得的一些阻留时间进行比较研究。