

粤北某铀矿区 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 、 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 铀污染示踪 初步探索

王津¹⁾, 刘娟¹⁾, 陈永亨¹⁾, 沈川洲²⁾, 齐剑英³⁾, 王春霖⁴⁾, 吴世军⁵⁾,
陈繁荣⁵⁾, 宋刚¹⁾, 陈迪云¹⁾

1) 广州大学珠三角水质安全与保护创新中心暨省部教育部重点实验室和环境科学与工程学院, 广州;

2) 台湾大学地质科学系暨研究所, 台北; 3) 国家环境保护部华南环境科学研究所, 广州;

4) 广东省环境科学研究院, 广州; 5) 中国科学院广州地球化学研究所, 广州

随着我国新形势核电战略的实施, 势必推动铀矿和伴生放射性矿产资源的阔步开发进程。在整个开发过程中, 铀的勘探、采矿、水冶、加工和浓缩等过程都可能产生放射性污染 (Wang et al., 2012)。据初步估算, 每生产 1 t 铀可产生近 3000 t 含放射性核素的固体废弃物, 最高可达 5000 多 t (李书鼎, 2005)。经雨水淋滤、山洪冲刷, 其中放射性核素四处扩散, 严重污染环境。近年来, 以铀同位素和钍同位素示踪技术为代表的研究手段已日益受到关注, 但由于研究条件与客观因素的限制, 国内并未广泛开展。本文将以粤北某铀矿区的若干环境样品入手, 探讨基于 MC-ICP-MS (多接收道等离子体质谱仪) $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 、 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 示踪铀污染的可行性, 这将有助于理解和治理铀矿区的深层环境污染问题。

1 材料与方 法

1.1 材 料

本文所研究的若干样品 (1 个铀矿原矿、1 个铀尾矿、3 个水系沉积物 C1、C2、C3) 于 2012 年采集于广东某铀矿区。其中, 3 个水系沉积物均分布在铀尾矿坝下游, 其中的 C1 来自未受含铀废水污染的水系沉积物。将沉积物样品剔除砾石、植物碎屑等异物, 于阴凉通风处自然风干后, 连同铀矿石和尾矿样品, 用玛瑙研钵研磨, 过 200 目筛, 移

入样品袋放置于干燥器备用。

1.2 方 法

1.2.1 样品消解

根据样品铀含量的不同, 分别称取 0.05~0.1g 的沉积物、铀矿石和铀尾矿样品, 利用一定量的浓硝酸-氢氟酸混酸体系对样品进行全消解。消解液分成两部分, 分别用于铀、钍元素总含量的测定及铀钍元素的柱化学分离。

1.2.2 元素含量的测定

利用电感耦合等离子体质谱仪 (ICP-MS, Perkin-Elmer Élan 6000, Perkin-Elmer, 美国) 分别测定上述各消解液中铀、钍等元素的浓度, 经过换算得到样品中各目标元素的含量。

1.2.3 同位素组成的测定

将上述各消解液通过一定的柱化学分离流程分别得到铀同位素和钍同位素待测液。利用 Neptune 型 MC-ICP-MS (Thermo Finnigan) 分别测定各样品中 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 、 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 组成。

2 结果与讨论

研究结果显示, 粤北某铀矿区沥青铀矿的 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 活度比为 1.0059 ± 0.0018 , 铀尾矿则为 1.1579 ± 0.0018 。这在一定程度上说明, 在铀矿用强酸堆浸后, $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 将显著提高, 这可能是强酸堆浸铀矿, 在强氧化条件下使得大部分 U^{4+} 氧化成 U^{6+} , 从矿物中释放出来。而铀尾矿下游不同距离采

注: 本文为国家自然科学基金会项目 (编号 41303007;41203002; 41273100;41573008;41373117); 广东省自然科学基金 (2014A030313527; 2015A030313512); 中国科学院矿物学和成矿学重点实验室开放基金 (KLMM20150108); 广州市教育局项目 (1201431072); 广州市教育局协同创新重大项目 (13XT02); 国家环境保护部公益性行业科研专项项目 (201509051) 资助的成果。

收稿日期: 2015-09-28; 改回日期: 2015-09-28; 责任编辑: 刘恋。

作者简介: 王津, 男, 1981 年生, 博士, 助理研究员, 环境科学专业。Email: wangjin200726@hotmail.com。

集的 3 个沉积物的 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 为 1.0001–1.1082, 可能是由于 U^{6+} 进入水体迁移后, 在碰撞、沉积、微生物作用下以及水体氧化还原条件的改变, 逐渐还原为 U^{4+} 而沉积到沉积物上, 使沉积物的 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 发生一定程度的波动。上述样品间的 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 内在特征与 Satybaldiyev 等(2015)报道的铀矿浸滤特征具有某种意义上的一致性: 浸出液 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 从第一阶段的 1.21–1.25, 降低到第二阶段的 0.92–1.00, 最后阶段又上升到 1.05–1.16, 反映了铀矿优先释放表面的 U^{6+} , 之后缓慢氧化矿物中 U^{4+} 并逐渐释放的完整特征。

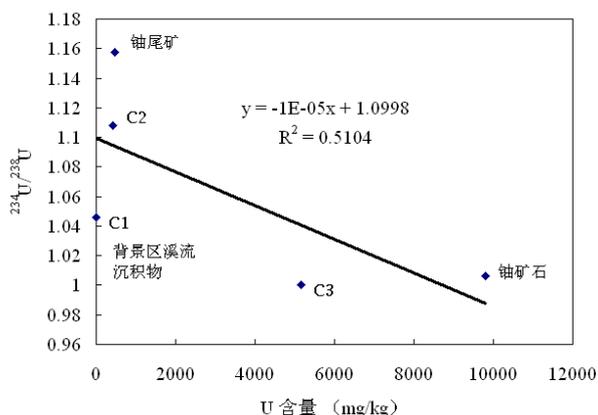


图 1 样品 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 与铀含量的相关性

然而, 从 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 与铀含量作图来看(图 1), 两者的相关性较差 ($R^2=0.5104$), 反映出所研究的几个样品铀含量与 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 并无较好的同源性。这也证实了 Fleischer (2008) 的观点: 很多情况下 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 不能替代 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$, 因前者在示踪高铀环境样品方面存在不稳定性与不确定性。

值得一提的是, 矿区样品的铀含量与 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 比值存在显著的正相关 ($R^2=0.886$), 并

且铀矿原矿与背景区溪流沉积物恰好组成两个端元, 见图 2。这说明, $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 比值能如实反映样品的铀含量水平, 换言之, 能较好地示踪铀矿区环境铀污染源。

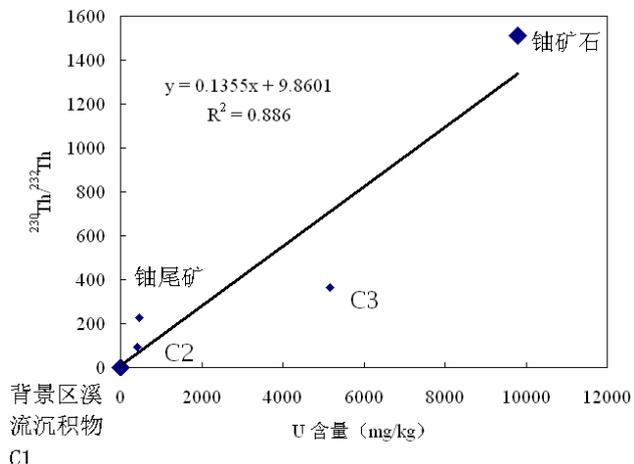


图 2 样品 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 与铀含量的相关性

参 考 文 献 / References

李书鼎. 放射生态学原理及应用[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2005.

Fleischer R L. 2008. Difficulties in using $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ratios to detect enriched or depleted uranium [J]. Health physics, 94(3): 292–293.

Satybaldiyev B, Lehto J, Suksi J, et al. 2015. Understanding sulphuric acid leaching of uranium from ore by means of $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activity ratio as an indicator[J]. Hydrometallurgy, 155:125–131.

Wang J, Liu J, Li HC, et al. 2012. Surface water contamination by uranium mining/milling activities in northern Guangdong province, China [J]. Clean Soil Air Water, 40: 1357–1363.