

CN 8800837

CNIC-00068

AS-IFP-0005

中国核科技报告

CHINA NUCLEAR SCIENCE & TECHNOLOGY REPORT

以 ^{210}Pb 作示踪剂研究铅在大气-水-稻田系统中的运转



中
国
核
情
报
中
心

中國核情报中心

China Nuclear Information Centre

CNIC-00068
AS-IFP-0005

以²¹⁰Pb作示踪剂研究铅在 大气-水-稻田系统中的运转

李书鼎 张海荣 马学军

(中国科学院林业土壤研究所, 沈阳)

中国核情报中心

北京·1987.8

摘 要

以 $^{210}\text{PbCl}_2$ 为示踪剂,研究了辽河中下游城市近郊微酸性草甸棕壤稻田系统中铅的来源、土壤和水稻体内Pb的分布、土壤Pb对水稻的有效性、Pb形态随时间的变化和土壤pH对Pb吸附的影响等问题;论述了水稻分别从土壤、大气降尘以及灌溉水中所吸收的Pb在糙米中各自所占的比例,并指出了Pb向糙米运转的途径;示踪模拟实验确定了Pb在这个系统中的转移系数;指出水稻根中Pb浓度、土壤Pb浓度和分布是影响Pb向糙米运转的主要因素。

在示踪实验的基础上,提出了一个计算大气-水-土壤-水稻系统Pb土壤环境容量数学模式。估算出了该系统在糙米Pb含量小于1 ppm时,土壤Pb的环境容量值是1600~1700 ppm,即每公顷3.6~3.8吨。这个数值和盆栽实验结果相符合。该模式还可应用于 ^{203}Hg , ^{109}Cd , ^{75}As , ^{65}Zn , ^{51}Cr , ^{60}Ni , ^{60}Co 等示踪核素所对应的重金属土壤环境容量的计算。

关键词 示踪试验 糙米 土壤环境容量 数学模式

STUDY ON LEAD TRANSPORTATION IN AIR-WATER-PADDY SYSTEM WITH ^{210}Pb AS TRACER

Li Shuding Zhang Hairong Ma Xuejun

(Institute of Forestry and Pedology,
Academia Sinica, Shenyang)

ABSTRACT

With $^{210}\text{PbCl}_2$ as tracer, a research into lead sources in brown rice, lead distribution in soil and rice, lead chemical forms in soil and their change with time, availability of soil Pb for rice and effect of soil pH on the Pb adsorption was carried out in air-water-paddy system near cities and towns located upper and middle reaches of Liaohe River, northeastern China. Test soil was light acid meadow brown soil. The Pb proportions in rice grain derived from the soil, airborne dust and irrigation water and the transportation pathway to brown rice were investigated. Transportation coefficients of Pb in the system were determined by tracer experiment. It was indicated that the Pb concentration in rice root, the Pb concentration and its distribution in the soil are main factors effecting Pb transportation to rice. Based on the simulation test, mathematical model for computing soil environmental capacity of Pb in the system is put forward. The soil environmental capacity of Pb computed is 1600~1700ppm, i.e. 3.6~3.8 t/ha. The computed result was in agreement with the observed. The mathematical model was also used to compute soil environmental capacity of those heavy metal corresponding respectively with ^{203}Hg , $^{115+115\text{m}}\text{Cd}$, ^{66}Zn , ^{51}Cr , ^{60}Ni , ^{60}Co etc.

前 言

环境中 Pb 的人为污染主要来自 Pb 的生产加工过程。首先是矿产的选矿和开采过程，包括粉碎、浓集、矿砂、运输以及尾矿和矿冶废水的排放；其次则是 Pb 制剂的精炼过程及其相应的浓缩物运输、贮存、匀浆、精炼、大气排放和飘尘。

近几十年来，通过汽油燃烧由可移动性源释放的 Pb 的比份越来越大，差不多占排入环境 Pb 总量的百分之八十。城市 Pb 污染严重于农村。

本文对辽河中下游草甸棕壤-稻田系统 Pb 污染进行了系统的研究。这一地区以沈阳为中心，城市密布，矿山及各种冶炼厂集中，公路、铁路和空运业发达。所以 Pb 污染也是本地区一个重要问题。

由于 Pb 在环境中难于移动，而且含量受背景影响很大，不易检测。我们采用 ^{210}Pb 示踪办法进行观察。 ^{210}Pb 半衰期为 21.4 年，特别适于做这种变化较慢的地化反应过程的示踪剂，可连续观测，具有独特优点。这项研究所取得的结果，为制定土壤重金属环境容量、防治 Pb 污染农业环境提供了重要理论依据。

一、稻米中 Pb 来源

弄清米中 Pb 的来源，对防治 Pb 污染水稻相当重要。为此设计下列几组实验⁽¹⁾：
(1) 把 $^{210}\text{Pb}-\text{PbCl}_2$ 均匀混合拌入土壤进行土壤标记。用该标记土壤种植水稻，使用洁净自来水灌溉。水稻收割之后分析糙米 Pb 含量。显然米中这部分 Pb 来自土壤。(2) 用与 (1) 相同的未标记土壤种植水稻。将 $^{210}\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ 加入蒸馏水模拟污水灌溉。收割之后分析糙米含 Pb 量，这部分 Pb 显然来自灌溉水。(3) 取来按 (1) 标记土壤，烘干、磨细过 1000 目筛，称重并测量其比活度 (549582.6 dpm/g) 后，供模拟降尘使用。水稻种植在和 (2) 相同的土壤里，使用洁净自来水灌溉。从分蘖初期开始，将上述过筛土用毛笔轻轻涂抹到水稻叶片上，把水稻盆钵置于玻璃房内，防止雨水冲刷，每隔 7~10 天涂抹一次，直到收割为止。分析籽实中的 Pb 含量，米中这部分 Pb 显然来自叶面。从而达到模拟大气降 (飘) 尘 Pb 对水稻作用的目的。

实验所得数据见表 1。从表中数据看，不管 Pb 是水中的、大气中的、还是土壤中的，都

表 1 不同来源 Pb 对糙米 Pb 影响

^{210}Pb 来源	^{210}Pb 总用量 Bq	糙米 ^{210}Pb 含量 (dpm/g)
灌溉水	9.72×10^4 (262.7 μCi°)	185.6
土壤	7.40×10^4 (200 μCi°)	37.0
降 (飘) 尘 (涂叶)	0.98×10^4 (25.9 μCi°)	554.7

• 文中 Ci 应按下式换算：1 Ci = 3.7×10^{10} Bq

王惠弟同志曾参加部分工作。

可以进入籽实。不过进入的多少和难易程度不同罢了。因此在防治重金属Pb对水稻污染时，不仅要考虑土壤Pb，而且大气中和水中的Pb的污染也应该给予考虑。

为进一步研究土壤Pb和大气Pb对米Pb贡献大小，我们用相同的 ^{210}Pb 标记土做水稻盆栽，每个处理二个重复。一个处理是从水稻分蘖期起，向水稻叶片上涂抹 ^{210}Pb 标记的土粉，土粒直径 $<100\mu\text{m}$ ，另一处理水稻不涂抹做对照。两者都用自来水灌溉，水稻收割之后，测量糙米中的活性，数据见表2。

表2 大气尘Pb和土壤Pb对糙米含Pb量影响

标记土含Pb (ppm)	水稻处理	糙米含Pb (dpm/g)	大气Pb贡献(c) [$c = \frac{b-g}{b} \times 100\%$]	土Pb贡献 (1-c)
1943(262.7 μCi)	a. 对照	72.0	84.6	15.4
	b. 涂叶	466.3		
2000(198 μCi)	a. 对照	150.7	72.8	27.2
	b. 涂叶	554.7		

表中数据表明，在相同土质条件下，大气降尘Pb从叶面比土壤Pb从根部更易被水稻吸收并进入籽实。糙米中总Pb量有15~27%来自土壤Pb，而70~85%却是来自大气降尘Pb。

当然，这种情况不是绝对的。大气Pb常受着其它因素的作用，如大气飘尘中Pb的浓度、降尘量以及大气降尘Pb被水稻叶面接受的面积大小等等都有关系。我们实验模拟的降尘Pb含量为1943ppm，而且假设是100%的降尘被水稻叶面接受，估计值是偏高的。实际情况可能要小得多。但是证明大气Pb可以通过叶面吸收进入籽实，并且吸收进入籽实要比土壤Pb来得容易，这是毫无问题的。

二、重金属Pb在土壤和水稻体内的分布和累积

土壤中Pb如何分布、已进入水稻体的Pb在水稻各器官中如何分布，弄清这些问题，对切断Pb毒害人、畜食物链很有意义。

实验使用微酸性浅色草甸棕壤稻田土。把 $^{210}\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ 加HCl使其转换成 $^{210}\text{PbCl}_2$ 沉淀悬浮物，均匀拌入土壤中，然后进行水稻盆栽。待水稻成熟收割后，取根、茎、叶、叶鞘、颖壳和糙米测量放射性活度。盆中的土则从表面起按不同深度采样测量。

1. ^{210}Pb 在水稻体内的吸收和转移

从表3数据看出，Pb在水稻体内的分配都是较老的叶片含量较高，其它器官的趋势亦是越向下含量越高。其分配规律是：

根>叶>茎>叶鞘>颖。

把表3数据作进一步处理得到表4。从表4数据看出，水稻很难吸收土壤中的Pb，吸收率仅为0.24%。即使这一点被吸收了Pb，有94%分配在根中，很难向上运转，转移到籽实的量仅占0.08%。至于从土壤进入糙米的Pb量更小，只有 1.62×10^{-6} 。应指出的是糙米

表3 ^{210}Pb 在水稻体内的分布

器 官	穗			叶				鞘				茎				根
	颖 水	壳 壳	轴 枝	剑 叶	第 二 叶	第 三 叶	第 四 叶	剑 叶 鞘	第 二 叶 鞘	第 三 叶 鞘	第 四 叶 鞘	第 一 茎	第 二 茎	第 三 茎	第 四 茎	
含 ^{210}Pb 量, 10^2cpm/g	0.21	0.25	0.53	9.03	10.39	10.55	27.55	6.01	8.47	10.06	11.23	3.32	17.50	14.70	9.04	587.72
平均含 ^{210}Pb 量, 10^2cpm/g	0.33			14.38				8.95				11.14				587.73
分配, %	0.5			2.3				0.9				1.8				93.9

表4 土壤中 ^{210}Pb 向水稻体内转移百分率

糙米Pb/土壤Pb	糙米Pb/株体Pb	株体Pb/土壤Pb	水稻地上部分Pb/地下部分Pb
1.62×10^{-4}	0.08	0.24	4.77

中对 ^{210}Pb 的吸收百分数不是一成不变的，它随着土壤中Pb含量的增加而变化，其值见表5。随着土壤中Pb量增加，Pb在水稻各器官中分配也相应增加。在土壤含Pb250~500PPm时，根中集聚了大量的Pb（占0.02%），而土壤含Pb在1000PPm时，根集聚的Pb较少（占0.005%），但是后一种情况向上运输转移的百分数却比较大。这可理解为，在较低浓度下，根对Pb有较大的结合能力，Pb一旦被根吸收便被固定下来，很难向上运转。但当浓度增大时，因为有着大量的自由Pb离子，所以能被蒸腾上行，流运至地上部分[2]。

表5 糙米Pb量随土壤Pb浓度的变化

土壤Pb 含量.ppm	糙米Pb 量.ppm	糙米Pb/土壤Pb (10 ⁴)	叶Pb/土壤Pb (10 ⁴)	鞘Pb/土壤Pb (10 ⁴)	茎Pb/土壤Pb (10 ⁴)	根Pb/土壤Pb (10 ⁴)
100	0.026	1.62	20.12	23.08	36.18	1727.12
203	0.016	0.50	10.84	15.04	14.87	4394.70
500	0.152	1.96	45.62	33.81	48.52	2257.17
1000	0.519	3.29	72.26	47.04	63.76	996.96
2000	2.582	21.75	—	—	—	—

2. 土壤中 ^{210}Pb 随土壤深度垂直分布

土壤分层测量结果如图1，Pb随灌溉水进入土壤之后，经过一季水稻种植之后，在土壤中的分布是曲线I，其含量是随深度而迅速减低。在土层5cm之下就减到一个最低值，而且不再随深度变化。但是经过耕耘或均匀拌入土壤的Pb种过一季水稻之后，在耕作层土壤中的分布比较均匀，不随深度变化，如图1中曲线II。这和土壤中Cd的分布基本相同[3]。

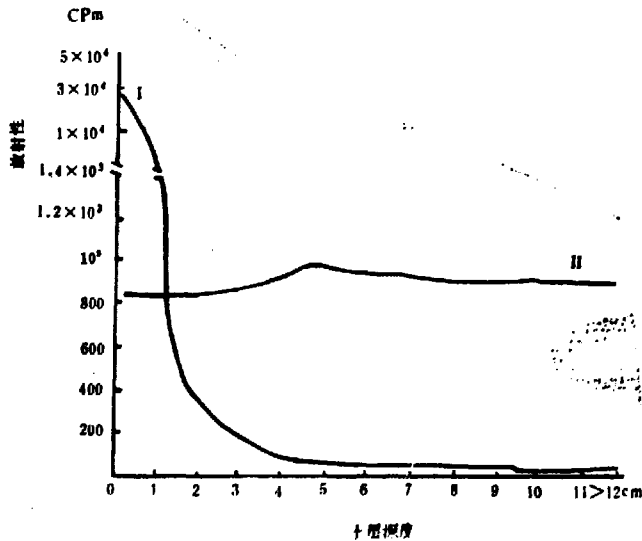


图1 ^{210}Pb 随土壤深度分布

3. 影响Pb向糙米中运转的一些因素

(1) 土壤中Pb的浓度

土壤中Pb浓度越高,糙米中Pb含量就越大。从表5左数第一和第二栏中的数据,清楚地看出了这一点,土壤中重金属Pb的含量多少不能忽视。

(2) 土壤与水稻根之间浓度梯度

从表6数据看出,土壤与稻根之间Pb浓度差对米Pb也有影响。浓度差愈大,米Pb含量越高。浓度梯度大,说明土壤中游离的Pb离子多,这种Pb离子比较容易进入根并被上行流携带而进入籽实,因而米Pb含量也就较高。相反,若浓度差很小时,因Pb在土壤中移动性小,所以Pb向稻根移动比较困难,从而Pb被水稻根吸收并运转到地上部分的数量就相应较少,米中Pb含量较低。但是当浓度梯度为负时,也有少量Pb进入了籽实,说明Pb离子也能逆着浓度梯度而扩散到根中,并以某种途径从根细胞进入木质部导管从而被运送到籽实。这一现象似乎是主动吸收作用的结果。总之,土壤Pb被水稻吸收过程是复杂的。表6的结果,反映Pb被水稻根吸收可能是几种机理共同作用的过程。不过比较起来,Pb被动地被水稻吸收机制要占优势,关于这一问题有待进一步研究。

表6 土壤与稻根间浓度梯度对米Pb的影响

根中Pb浓度A (ppm)	土壤Pb浓度B (ppm)	Pb浓度梯度 (B-A)	糙米Pb含量 (ppm)
305.1	200	-105.1	0.016
103.8	100	-3.8	0.026
384.9	500	115.1	0.152
340.8	1000	659.2	0.519

三、土壤中铅形态及其对水稻的有效性

1. 土壤pH对Pb吸附的影响

把种过水稻的盆栽标记土壤风干磨碎,在110℃烘干,通过100目筛后,每份称取2克按照水:土 = 5:1加入蒸馏水。用HCl-NaOH调节该悬液酸度,在电磁搅拌下平衡半小时后,用2D-2型自动电位滴定计测量pH值。将测定pH的土壤溶液用2000r/min离心分离后,把上清液放置33天后测定²¹⁰Pb的活度。所得数据作成Pb浓度-pH曲线(见图2)。

图2中Pb的浓度与土壤pH关系曲线明显分三段:

a. pH = 5.0~0.7; 当pH逐渐降低时,土壤溶液中Pb浓度急剧增加,这是在酸作用下,土壤对Pb的吸附力减弱,大量的沉淀物如磷酸盐等溶解或者形成Pb络合物所致。在pH = 5时,土壤吸附的Pb开始解离,当pH减小到0.7时,溶液中Pb浓度为pH = 5时的16500倍。这时,水溶性Pb为土壤中总加入的Pb量的66.3%。

b. pH = 5.0~12.5; 在这个范围内,土壤对Pb吸附最牢,溶液中几乎测不出Pb来。pH对土壤Pb吸附无显著影响。

c. pH > 12.5; 由pH = 11~14放大图看出,当pH增大时,溶液中Pb浓度增加。将曲线

外推到 pH=14 时, Pb 浓度是 pH=12.5 时的 1600 倍。这是因为在浓碱条件下, Pb 沉淀转化为可溶性铅酸盐所致。pH 与 Pb 浓度关系可表示为下式。

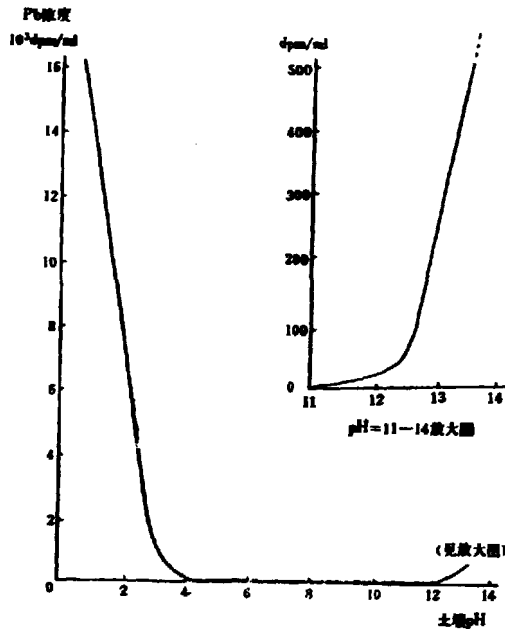


图2 pH对Pb吸附影响

2. 土壤中Pb的化学形态

植物从土壤中吸收Pb的量是由土壤Pb总量决定还是由土壤中有效态Pb量决定,就是说区分土壤中Pb总量和有效量是很重要的。我们采用 ^{210}Pb 为示踪剂,经过四年的实验测量分析,企图弄清Pb在土壤中的形态及其对水稻的有效性,从而为制定土壤Pb容量提供理论依据。

土壤放射性标记和 ^{210}Pb 的测量见文献[5],土壤形态分组方法见文献[6]。将Pb形态分为以下几组:A.水溶态——用蒸馏水浸提部分;B.弱吸附态——用 NH_4Ac 浸提部分;C.专性吸附态——用稳定 $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ 浸提部分;D.用 0.1mol/L 的 HNO_3 浸提部分;E.用碱浸提部分,这部分是Pb的有机化合物;F.剩余残渣部分,这部分Pb已进入土壤晶格,失去了生物活性,不能再参加生物循环。进入土壤Pb的总量 = A + B + C + D + E + F。

实验时,每次取土样1g,按上述进行分组测定,由每组提取量与总量之比便得到所对应各组的百分数。

^{210}Pb 以氯化物形式加入土壤,经过一个生长季之后,各种形态的百分率分别是:A (0.01), B+C (68.63), D (14.81), E (0.14), F (16.52)。这些数据表明,Pb

进入土壤之后,在较短期限内,Pb主要以交换态(A+B+C)形式存在。Pb和土壤的亲和力较强,因此不溶态(F)Pb占16.5%,反映出Pb在土壤中溶解度和移动性都是较小的。

土壤中Pb形态不是一成不变的。四年连续测定结果见表7。这些数据表明,它们随时间的推移其值在缓慢地变化。其规律是:A→B→C→D→E→F按箭头方向转移。每年大约

表7 土壤Pb形态与时间关系(%)

年份	水溶部分	NH ₄ Ac 可提部分	Pb(NO ₃) ₂ 可提部分*	0.1NHNO ₃ 可提部分	0.5%NaOH 可提部分	不溶部分
1983	0.01	6.05	62.48	14.81	0.14	16.52
1984	0.02	3.30	60.29	16.54	0.12	19.72
1985	0.08	2.19	50.78	13.86	0.18	32.91
1986	0.02	0.76	30.58	22.95	0.96	44.74

* 示踪分析中,用Pb(NO₃)₂去提取土壤中的²¹⁰Pb。

有百分之十几的有效态Pb转变为不溶态Pb而被土壤固定。因此随着时间的增长,土壤有效态Pb将减少,植物难以利用的部分将增加。

3. 土壤Pb含量对其形态影响

从表8的数据,看出土壤Pb含量与其形态无明显相关性。不管土壤中Pb含量多少,其Pb形态分组百分数大致相似。只有弱吸附态(B)随土壤中Pb含量的增高,其百分比有随之增高的趋势。

表8 土壤Pb含量与Pb形态关系(%)

土壤含Pb(ppm)	A	B	C	D	E
100	0.03	1.89	86.46	11.31	0.30
200	0.01	1.79	88.43	9.45	0.31
500	0.02	2.71	88.80	8.23	0.28
1000	0.01	3.38	84.86	10.97	0.32

4. 土壤²¹⁰Pb形态对水稻有效性的影响

将²¹⁰Pb(NO₃)₂与Pb(NO₃)₂充分混合标记后,用氯化铵转化成²¹⁰Pb(Pb)Cl₂沉淀,然后拌入土壤,充分混合使土壤含Pb量分别达到1000ppm和2000ppm。

从1983年开始,使用该土壤栽培水稻,收获后,测量糙米中Pb含量。在同一盆钵中,在土壤含Pb总量不变情况下,连续三年种植水稻,所得数据见表9。

从上表数据看,尽管土壤中Pb含量相同,但是在其上种植水稻,所得糙米Pb含量却逐年变小。总的规律是,污染物Pb进入土壤第一年最易被水稻所吸收并累积于籽实,以后随时间增长,土壤中Pb就越不易被水稻吸收。从而说明糙米Pb与土壤总Pb量无关。

糙米Pb和土壤Pb形态关系见表10。米Pb含量与土壤Pb可交换吸附态成正相关。由于土壤中Pb的可交换态逐年降低,所以米Pb也就逐年随之减少。可以说,米中Pb主要来自土壤中可交换态吸附态Pb。

表9 粮食含Pb量与时间关系

土壤Pb量 (ppm)	粮食Pb含量A (dpm/g) B (ppm)					
	1983年		1984年		1985年	
	A	B	A	B	A	B
1000	48.2	0.648	8.0	0.112	7.7	0.108
1000	27.8	0.380	9.0	0.128	3.3	0.046
2000	113.9	4.057	12.0	0.376	—	—
2000	241.5	6.497	16.0	0.313	—	—

表10 Pb形态与求Pb的关系

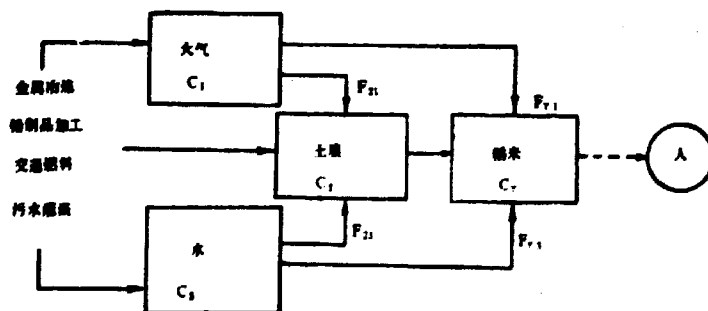
年份	可交换态Pb% (A+B+C)	不溶态Pb (F) %	粮食Pb含量ppb
1983	68.54	18.52	518
1984	63.61	19.73	119
1985	53.05	32.91	77

四、大气-水-稻田系统Pb转移模型

在水-土壤-植物生态环境中，大量农药和化肥的利用，污水灌溉及农村工矿业的发展，必然给土壤带来污染，使污染物如Pb, Cd等在土壤中累积。为了在保证生态环境良性循环的前提下，充分开发和利用自然资源，对土壤制定一个可被人们接受的容量值是十分必要而且又具有长远意义。

我们在研究沈阳张士灌区稻田系统Cd污染及其防治技术期间，曾提出了一个计算土壤-水稻系统Cd转移的数学模型^{[7][8]}。在1986年出版的“土壤-植物系统污染生态研究”一书中又进一步指出这个模型对其他污染物亦是适用的。并且使用该模型计算了Pb在棕壤稻田系统中的环境容量。不过其中没有考虑到大气Pb对生态系统的影响。这是不够严格的。为此我们又设计了专门的²¹⁰Pb示踪试验，研究了Pb在土壤-水稻系统中包括大气Pb在内的转移问题。

我们所研究的系统指的是城区近郊型大气-水-土壤-水稻系统。这个系统中Pb来源主要是金属冶炼过程，铅制品加工过程，以及交通运输燃料燃烧过程等等，其路径是通过大气、污水、垃圾等渠道而进入土壤。通过植物可食部分或动物、家禽肉奶等进入人体造成危害。简略示意方框图如下：



上图表示的Pb生态循环中，每个箭头表示转路径，每条路径之间都存在着一个库室（方框）。每个库室内都存在一定数量的Pb。某个库室的Pb容量可用其所含Pb的平均浓度与其总质量相乘积来表示。该系统中Pb主要通过灌溉水进入土壤。大气Pb虽然量小，但它是一个重要的库室。 C_i ——表示i库室中Pb平均浓度， F_{ij} ——表示Pb从j室向i室转移的转移系数。运用 ^{210}Pb 示踪试验，可以求出该系统中Pb的有关传输参数 C_i 和 F_{ij} 等，因此Pb在这个系统中运转的规律便可定量表示。

对于我们所研究的稻田系统而言，大气Pb的转移，主要是该地区已被Pb污染了的土壤和公路尘埃微粒再悬浮从而达到水稻叶面，被水稻吸收，进入籽实造成对人的危害。水稻吸收大气Pb的多少，主要与固体颗粒大小及风速有关系。做模拟实验时，把 ^{210}Pb 标记土壤（含Pb已达2000PPm），通过140目筛，使土壤粒度大约在100 μm 以下，基本上与大气中降尘的粒度相近似。

随灌溉水来的Pb，有机的和无机的形式都有。Pb和阴离子形成的化合物在水中的溶解度较小。以溶液状态存在于水里的量与水的pH、土壤Eh及可溶性盐含量有关系。在流动的水中，不溶性Pb也可因矿物颗粒吸附或作为悬浮的有生命或无生命物质的一部分而转移。我们在做示踪实验时，向蒸馏水（pH6.1）中加入 $^{210}\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ 以模拟灌溉水，这只能代表水中可溶性部分Pb。

本系统Pb主要来自灌溉水，它进入土壤，由于组成和pH变化，Pb立即沉淀从而被土壤微粒所吸附。在土壤中Pb的移动就很困难，其移动性主要取决于：（1）在颗粒矿物表面上的特殊吸附或离子交换吸附；（2）和土壤有机物质形成相当稳定的络合物或螯合物；（3）生成微溶性Pb盐沉淀。一般地讲，Pb进入土壤后和土壤阴离子（ SO_4^{2-} 、 PO_4^{3-} 、 CO_3^{2-} 等）或粘壤形成不溶性络合物，从而妨碍了Pb的移动。

实验设计如下：（1）清水灌溉用 $^{210}\text{PbCl}_2$ 标记的土壤（含载体Pb500ppm）进行水稻盆栽（210 μCi /盆），二个重复，整个生育期全淹管理；（2）用 $^{210}\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ 水灌溉水稻盆栽，盆栽土壤为不含放射性的对照土，到收获水稻时，共灌入 ^{210}Pb 约183 μCi /盆。二个重复，整个生育期淹水管理；（3）对水稻叶面进行涂抹以模拟降尘试验，方法见本文（一）部分；（4）对盆栽土进行形态分析，详见本文（三）部分。

1. Pb转移系数确定

（1）土壤Pb对糙米Pb的贡献

用 $F_{r..s}$ 表示土Pb对米Pb的贡献，其值用下式表示： $F_{r..s} = \frac{C_r}{C_s}$ 其中 C_r 表示糙米Pb平均浓度， C_s 表示土壤Pb平均浓度。实验结果表示在表11中。从这些数据看， $F_{r..s}$ 值随土壤中Pb量的增加而增大。我们认为在考虑环境容量时，应取米Pb含量小于食品标准（Pb < 1 PPm）时 $F_{r..s}$ 的平均值，本文取 $F_{r..s} = 3.61 \times 10^{-4}$ 。

表11 土壤Pb对糙米Pb的贡献

土壤含Pb (ppm)	土壤重量 (g)	糙米Pb量 (ppm)	$F_{r..s} (10^{-4})$	$F_{r..s}$ 平均值 (10^{-4})
100	5.9×10^3	0.026	2.60	3.61
500	5.9×10^3	0.152	3.04	
1000	5.9×10^3	0.519	5.19	

(2) 灌溉水Pb向米中转移系数 ($F_{r,s}$)

实验所用灌溉水含Pb100ppm, 米Pb含量为0.886ppm, 得 $F_{r,s} = 0.886/100 = 8.86 \times 10^{-3}$ 。可见对当季水稻而言, 水Pb向米中的转移数量比土Pb的转移要大一些。

(3) 稻田水分管理状况对糙米Pb含量影响

为了定量表示这种影响, 用一个系数 K_s 来表示:

$$K_s = \frac{[C_r]_{\text{旱}} - [C_r]_{\text{水}}}{[C_r]_{\text{水}}}$$

实验结果见表12。落干晒田对米Pb影响虽没象Cd那样明显⁽²⁾, 但是影响还是存在的。不同时期落干的影响大小也不同, 普遍比全淹管理的水稻Pb含量要高0.5~1倍。尤其开花期的影响最大, 这一点和Cd的情况相似。

表12 稻田水分状况管理对米Pb的含量

土壤含Pb量	稻田水分状况	糙米Pb含量 (cpm/g米)	K_s
4000 μ Ci	全淹	85.2	0
	1/7~15/7落干	126.1	0.5
2000ppm	3/8~18/8落干	214.4	1.5
	18/7~9/8落干	133.9	0.6

(4) 土壤中Pb形态对米Pb含量影响

具体数据见本文第三部分2中, 有效态 $K_f = A + B + C = 68.54\%$ 。土壤Pb有效态小于此值时米中Pb量将急剧降低。

(5) 大气Pb向米中转移系数 ($F_{r,i}$)

实验结果见表13。取 $F_{r,i}$ 的平均值 9.29×10^{-4} 。

表13 大气Pb向米中转移系数值

大气降尘Pb C_i (ppm)	糙米Pb C_r (ppm)	$F_{r,i} = \frac{C_r}{C_i}$	$F_{r,i}$ 平均值
2.94×10^3	2.495	8.49×10^{-4}	9.29×10^{-4}
	2.968	10.10×10^{-4}	

2. 土壤Pb容量计算

(1) 数学模式

在水-土壤-水稻生态系统中, 使米Pb不超过1ppm时, 土壤所能承担的最大Pb数量, 定义为土壤Pb环境容量。影响Pb向糙米中运转的因素甚多, 转移的路径也多种多样, 但是它们在该系统中都遵循质量平衡规律,

$$\sum_{i=1}^n C_i F_{r,i} = C_r - B_r$$

式中: $i = 1, 2, 3, \dots, n; j = 1, 2, 3, \dots, (i-1)$;

C_i —— i 库室中Pb浓度 (ppm),

$F_{j,i}$ —— Pb由 j 室向 i 室转移系数, $F_{j,i} = \frac{C_j}{C_i}$;

C_γ —— γ 库室 (糙米) 中Pb浓度 (ppm), 在计算容量值时, 它常取国家有关部门的法定值, 以保证人畜不受Pb毒害。

B_γ —— 所研究系统中 γ 库室 Pb 的背景值浓度 (ppm), 由大量野外调查获得。

(2) 参数选定和计算:

为了保护生态环境良性循环, 决定土壤容量值时宁小勿大。本着这个原则, 根据前述结果, 将模式计算所需参数选定如下:

$F_{\gamma,1} = 9.29 \times 10^{-4}$, $F_{\gamma,2} = 3.61 \times 10^{-4}$, $F_{\gamma,3} = 8.86 \times 10^{-5}$, $C_1 = 100.2 \text{ ppm}$ (沈阳张士一带地区), $C_2 = 0.1 \text{ ppm}$ (国家农灌标准), $C_\gamma = 1 \text{ ppm}$ (国家稻米 Pb 含量暂订标准), $K_s = 0.5$, $K_f = 68.54\%$, $B_\gamma = 0.31 \text{ ppm}$ (为稻米 Pb 背景平均浓度)。

示踪实验着重研究了水、土、大气 Pb 对米 Pb 的影响。把 (1) 式展开整理得:

$$C_2 = \frac{(C_\gamma - B_\gamma) - C_1 F_{\gamma,1} - C_3 F_{\gamma,3}}{F_{\gamma,2}} \quad (2)$$

把上述参数代入 (2) 式得 $C_2 = 1651.2 \text{ ppm}$ 。

从前述讨论知道, 米 Pb 含量还与稻田水分管理状况有关, 同时它还受土壤中 Pb 形态的影响。这两种因素都直接或间接影响着土壤中 Pb 对水稻的有效性。也就是说影响到土壤 Pb 向稻米的转移系数 $F_{\gamma,2}$ 。落干晒田可使 $F_{\gamma,2}$ 增大, 而土壤 Pb 形态的影响又使 Pb 对水稻有效数量比其总量大大降低, 从而表现出的结果是使转移系数 $F_{\gamma,2}$ 变小。考虑到这两个因素的综合作用, 转移系数应作如下修正, 即把 $F_{\gamma,2}$ 乘上 K_f 与 $(K_s + 1)$ 二个因素, 把修正后的系数代入 (2) 得:

$$C_2 = \frac{(C_\gamma - B_\gamma) - C_1 F_{\gamma,1} - C_3 F_{\gamma,3}}{F_{\gamma,2} \cdot K_f \cdot (K_s + 1)} = 1806.7 \text{ ppm}$$

就是说, 在保证稻米 Pb 含量不超过 1 ppm 的条件下, 该系统中土壤所能承受的容量值为 1806.7 ppm。设该系统土壤总 Pb 容量为 M , 则 $M = C_2 \cdot W$, 其中 W 为耕层土重 (t/ha), 其值取 $2.25 \times 10^5 \text{ t/ha}$, 则 $M = C_2 \cdot W = 3.615 \times 10^5 \text{ kg/ha}$ 。这是容量的另一表示法, 它表示该系统中, 土壤能容纳 Pb 的总数量为每公顷 3.615 吨。超过此值, 大米 Pb 将超过标准。那是人们所不能接受的。

3. 计算值与实验值对照

盆栽试验数据见表 14。实验结果与计算确定的容量值基本符合。土壤 Pb 含量低于 1600 ppm 时, 水稻生长正常, 而且米 Pb 也低于 1 ppm; 当土壤 Pb 超过 1700 ppm 达到 2000 ppm 时, 水稻生长出现障碍, 产量也明显减少, 同时米 Pb 也超过 1 ppm 而达到 2.582 ppm。林业土壤研究所张学询等做过不同等级的土壤 Pb 浓度对大豆的影响, 他们指出土壤 Pb < 500 ppm 时,

大豆生长正常, 豆中Pb含量也远低于1 ppm, 在土壤Pb浓度在700~1500ppm时, 大豆生长正常, 只是局部出现减产现象, 大豆Pb含量仍低于1 ppm, 在土壤Pb达到2000ppm时, 大豆植株矮化, 叶片显著变黄、枯死绝产。一般认为水稻的危害轻于大豆, 所以我们用水稻做实验得出的土壤Pb容量值1600ppm, 对大豆也是基本适用, 但稍微偏大, 与实际情况也基本相符。上述两种作物的情况都说明, 该模式确实具有一定的实际使用意义。

表14 Pb土壤容量与盆栽米Pb含量

土壤Pb (ppm)	土壤Pb容量计算值 (ppm)	水稻受害症状	糙米Pb含量 (ppm)
100	1600~1700	生长正常	0.026
200	1600~1700	生长正常	0.016
500	1600~1700	生长正常	0.152
1000	1600~1700	生长正常	0.519
2000	1600~1700	叶子发黄、显著减产	2.582

4. 转移模式的应用

本文提出的模式, 考虑了土壤-植物系统中的大气、水、土, 植物吸收, 稻田水分管理, 重金属土壤形态等多种因素的影响, 因此比较全面, 不受土壤和米中金属背景的影响, 误差小, 操作方便。本法也适用于其他重金属容量的计算。作者利用此法还研究了土壤稻田系统Cd的行为和容量问题^[3]。其他一些可用于测定土壤容量的重金属同位素列于表15。这些同位素生产方便, 国内也有供应, 因此, 有使用的可能性和现实性。

表15 可用放射性示踪法测定土壤容量的重金属

金属名称	放射性同位素	半衰期
Pb	²¹⁰ Pb	21.4 Y
Cr	⁵¹ Cr	28 d
Cd	^{115m} → ^{115g} Cd	43 d
Hg	²⁰³ Hg	46.8
As	⁷⁵ As	76~90 d
Zn	⁶⁵ Zn	250 d
Ni	⁶³ Ni	100 Y
Co	⁶⁰ Co	5.3 Y

参 考 文 献

- [1] 李书鼎, 核素示踪技术在污染生态研究中的应用, 《土壤-植物系统污染生态研究》, 中国科学技术出版社, 北京, 464~480 (1986)。
- [2] Hevey G. Adventures in Radioisotope Research. Vol.1, 100 (1962)。
- [3] 李书鼎等, 应用^{115m}→^{115g}Cd对张士灌区Cd行为某些特性研究, 《核技术》, 5, 20~22 (1985)。
- [4] 川田信一郎著, 申廷秀译, 水稻的根系, 农业出版社, 北京, 110~111 (1984)。

- [5] 李书鼎等, 棕壤稻田系统重金属的某些特性, 《土壤-植物系统污染生态研究》, 中国科学技术出版社, 503~509 (1986) .
- [6] Viets F.G., *J. of Agri Food Chem.*, 10 (3), 174~178 (1962)
- [7] 李书鼎, 污染物在土壤-植物单位中转移模型, 《土壤-植物系统污染生态、研究》, 中国科学技术出版社, 北京, 511~515 (1986) .
- [8] 李书鼎等, Cd-115+115m示踪法对污灌稻田土壤总容量的研究, 《土壤环境容量研究》, 气象出版社, 北京, 43~46 (1986) .

CHINA NUCLEAR SCIENCE & TECHNOLOGY REPORT



**P.O. Box 2103
Beijing, China**

China Nuclear Information Centre