

• 专论与综述 •

放射性核素污染及监测(续完)

齐文启, 陈光, 席俊清, 宗惠娟, 孙宗光, 汪志国, 王强
(中国环境监测总站, 北京 100029)

中图分类号: X837 文献标识码: A 文章编号: 1006-2009(2003)06-0010-04

The Pollution and Monitoring of Radioactive Nuclides

QI Wenqi, CHEN Guang, XI Junqing, ZONG Huijuan, SUN Zongguang, WANG Zhiguo, WANG Qiang
(China National Environmental Monitoring Center, Beijing 100029, China)

6 原子能发电站周边的水环境监测

为了掌握核设施释放的气体、液体等放射性废物对人体和环境的影响, 可以从暴露形态、途径、范围等几方面研究。

从环境监测的角度出发, 研究可分为空间放射性监测和环境试样监测, 后者包括大气、陆地和海洋监测。在探查核设施对环境的影响时, 环境监测工作最重要。例如与水环境关系最为密切的氚($T, ^3H$), 一般不能回收而以 HTO 的形态释放, 废气

和大气颗粒物中的 3H 是监测和评价核设施的重点, 气态 3H 的排放量约为液体排放量的 1/10, 能被人体直接吸入而造成危害^[37]。

日本 1994 年制定的监测指导方针中, 将环境放射性监测的目标定为: ①公众暴露射线量的推测和评价; ②把握累积状况; ③防患于未然; ④强化异常和紧急状况时的监测, 做到常备不懈^[38]。

放射性物质在大气圈、陆地圈和海洋的暴露途径及监测如图 6 所示。

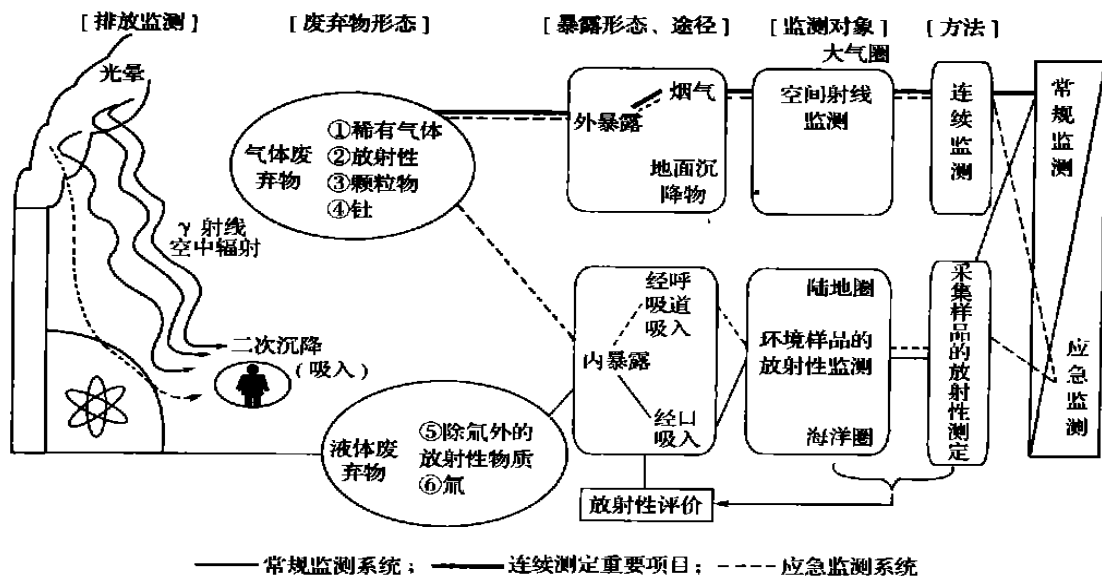


图 6 环境放射性监测

6.1 监测对象和监测方法

放射性监测的试样来源包括大气圈、陆地和海洋, 如大气和大气颗粒物、干沉降和降水、陆地, 以

收稿日期: 2003-04-25

作者简介: 齐文启(1946-), 男, 河北保定人, 研究员, 博士, 主要从事环境监测研究工作。

及放射性核素流失和迁移的河川径流等, 海洋也是承受污染的重要领域。推测放射性核素的来源, 把握海域底质、海洋生物的累积状况, 以及研究放射性核素在不同环境介质中的迁移、转化和平衡等, 都需要以大量的环境监测数据为基础。

将海洋底泥、海水、食用鱼类、贝类、藻类, 以及非食用性指示生物作为监测调查对象。由于指示生物的食物、形状、浓缩特性等类似, 从便于采集、试样形态等多方面考虑, 选择生育周期长、分布广泛的马尾藻、紫贻贝等。海水的流动性强, 监测频次又不可能太高, 需利用长期监测的结果提供环境水质的变化情况, 并通过鱼、贝、藻类的浓缩评价一般放射性强度。

监测频次、采样点位以及测定项目的基本要求如下:

(1) 监测调查地点: 为了达到良好的监测调查效果, 充分考虑生产海产品的养殖场、渔场的特点, 以取水口和排水口为中心实施调查监测;

(2) 测定方法: 对液体废弃物中所有放射 γ 射线的核素监测, 用 Ge 半导体探测器测量 γ 谱线, 并将污染源性状、半衰期、核设施等的指标性成分 ^{131}I 和 ^{137}Cs 作为主要测定对象;

(3) 对于不释放 γ 射线的成分, 如释放 β 射线的 ^{90}Sr 、释放 α 射线的 Pu 和释放软 γ 射线的核素 ^3H 也应测定;

(4) 形态: 对于以气体排放的 ^3H , 将大气中的湿

气部分通过冷凝后测定。

调查监测频次如下: ①大气、大气颗粒物 11 个点位各测 12 次; ②陆地水 6 个点位各测 4 次; ③土壤 6 个点位各测 2 次; ④沉降物 6 个点位各测 12 次; ⑤海水 16 个点位各测 2 次; ⑥海底泥 26 个点位各测 2 次; ⑦食用鱼、贝、藻类 6 种、6 个点位各测 2 次; ⑧指标海产生物 10 个点位各测 4 次。

6.2 放射性废物排放量及核素沉降

日本核电站近年的监测结果表明, 稀有放射性气体减少至 1970 年—1991 年的 10^{-7} , 放射性液体减少至 10^{-6} , 腐蚀性废物产生量较大, ^{54}Mn 、 ^{58}Co 排放量稍高, 比 ^3H 高约 10 倍。

在 1963 年停止核试验之前, 大气圈中大约进行了 423 次核爆炸试验。放射性核爆炸试验产生的大量放射性核素沉降到地面并积累, 经过平流层、对流层沉降后造成土壤、地表水、海洋等的污染。核试验后, 半衰期短的 ^{131}I 、 ^{132}I 、 ^{99}Mo 等和半衰期 1 a 以下的 ^{95}Zr 、 ^{103}Ru 、 ^{144}Ce 等在环境中大量存在, 目前环境中主要是半衰期 28 a 以上的 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 等核素。

^{137}Cs 沉降量随时间的变化如图 7 所示。1963 年, ^{137}Cs 的沉降量达到了 $1\,000\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$; 20 世纪 70 年代至 80 年代, 由于核试验和切尔诺贝利核泄漏事故, 沉降量也较高; 20 世纪 90 年代之后低于 $1\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ 。根据区域不同, ^{137}Cs 在地表的积蓄量超过了 $10\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$, 日本海附近可能更高。

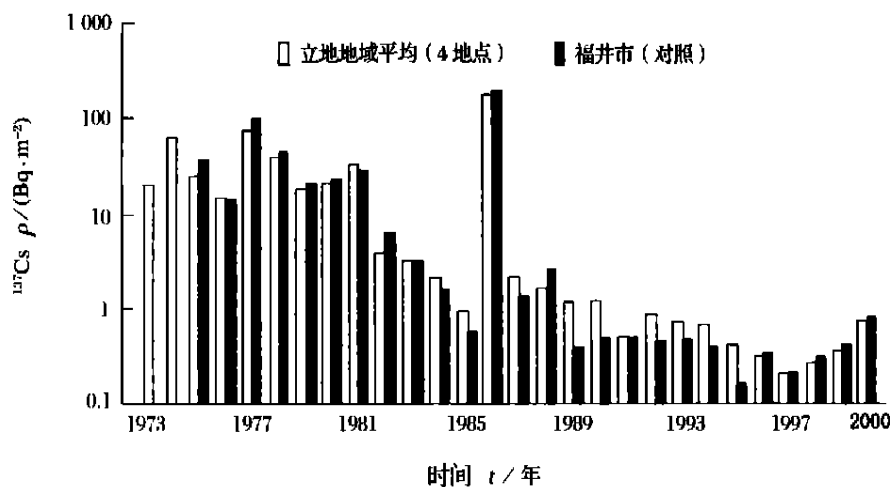


图 7 福井县内 ^{137}Cs 沉降量的变化趋势

海产品中的 ^{137}Cs 受切尔诺贝利核泄漏事故的影响十分明显, 在此期间放射性核素沉降对陆地的

影响比对海洋更为严重, 海水中 ^{137}Cs 的质量浓度在物理半衰期的一半即 15 a 后开始下降。

在核设施监督监测中, 必须识别核素沉降以外的其他因素的影响。方法是先与对照点位相比较, 然后与该地区 3 a 的平均值相比较, 通过共有的核素种类和存在比例判断核设施是否泄漏。例如, 在判断核素沉降时, $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 一般为 0.033 ± 0.011 ($n = 1200$), $^{60}\text{Co}/\text{Pu}$ 为 0.042 ± 0.008 ($n = 19$)。

天然放射性核素 ^{40}K 在海水中约为 $10 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$, 在海产品中约为 $30 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \sim 400 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$, 在土壤中为几百至几千 $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$, U、Th 在土壤中为几十至 $100 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。这些自然放射源在评价时应加以区别。

6.3 核设施事故的监测结果

过去 30 a 日本福井县环境试样中主要核素

^{137}Cs 、 ^{60}Co 、 ^{131}I 、 ^3H 不同来源的鉴别结果表明, 核设施导致环境中核素增加的情况仅能以 ^{60}Co 、 ^{54}Mn 、 ^{58}Co 、 ^{59}Fe 、 ^{131}I 、 ^3H 、 ^{137}Cs 的顺序鉴别; 试样顺序为紫贻贝 \rightarrow 海底泥 \rightarrow 马尾藻 \rightarrow 食用藻类 \rightarrow 食用贝类 \rightarrow 叶菜 \rightarrow 沉降物 \rightarrow 植物 \rightarrow 海水 \rightarrow 大气颗粒物 \rightarrow 陆地土壤 \rightarrow 食用鱼类, 其中海洋试样最重要, 一般环境中的最高值为发生敦贺污染事故时, 海底泥中 ^{60}Co 达到的 $4500 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ (湿样), 是日本国内的最高值。

表 6 为 1970 年—1994 年福井县各种试样中 ^{60}Co 的调查结果, 1994 年后 ^{60}Co 检出样品数明显减少。

表 6 试样中 ^{60}Co 的调查结果

试样	敦贺地区		其他地区		总计		
	^{60}Co 检出数	全部样品数	^{60}Co 检出数	全部样品数	全部样品数		
陆地监测	浮游粉尘	2	783	0	1 470	2 253	
	陆地水	0	222	0	530	752	
	陆地土壤	15	264	3 ^a	394	658	
	农产品	0	42	0	111	153	
	艾蒿	25	232	0	668	900	
	松叶	20	155	0	297	452	
	沉降物	75	647	3	1 878	2 525	
	小计	137	2 345	6	5 348	7 693	
	海洋监测	海水	11	392	0	491	883
		海底泥	1 174	1 727	106	1 417	3 144
食用鱼类		1	295	0	490	785	
贝等无脊椎类		32	136	2	283	419	
藻类		18	121	0	261	382	
马尾藻		540	1 413	24	1 228	2 641	
紫贻贝等		41	119	0	5	124	
小计		1 817	4 203	132	4 175	8 378	
其他	97	304	5 ^b	209	513		
总计	2 051	6 852	143	9 732	16 584		

* 受核试验影响

1981 年 3 月 8 日, 日本敦贺的放射性废物处理设备泄漏, 造成了污染事故。4 月 8 日浦底湾马尾藻中 ^{60}Co 的质量浓度大约超过平时均值的 40 倍, 达 $18 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。事故发生后 1 a 内的跟踪监测发现, ^{60}Co 在马尾藻中的最高值比通常值高 1 万余倍, 达 $4200 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$, 在海底泥中达 $4500 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ (湿样), 超过通常值 200 余倍。含高浓度 ^{60}Co 的马尾藻只出现在泄漏口前几十米的狭窄海域, 且经过 5 个月后, 马尾藻和海底泥中的 ^{60}Co 仅为最高值的 1/20, 可见半年之后其污染状况得到缓解。海底泥中高浓度的 ^{60}Co 在 20 d 后开始急剧降低, 并在随后的 140 d 内缓慢下降, 目前泄漏口海底泥中的 ^{60}Co 仅为 $1 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ (干基), 约为最高值的 1/4 000。其他监测调查包括: ①在泄漏口附近生息的各种生

物试样间的浓度比; ②快速测定值的可靠性; ③核素在海水/海底泥间的分配系数; ④可溶性马尾藻的清除试验结果; ⑤砂质海底质的清除效果等对调查核泄漏事故起到的作用。

由于切尔诺贝利核泄漏事故的影响, 在日本的陆地试样和海藻试样监测中, ^{131}I 、 ^{137}Cs 出现异常高值, 这 2 种核素和更易挥发的 ^{134}Cs 、 ^{103}Ru 迅速扩散到其他地区。各种环境试样的监测分析表明, ^{131}I 主要来自陆地污染源。在核泄漏事故期间, 表层海水中 ^{137}Cs 的质量浓度明显上升, 陆地土壤、海底泥、鱼类、贝类中的 ^{137}Cs 也受到了核泄漏的影响, 2 个月后影响明显减小, 贝类中的 ^{110}Ag 经 2 a 后才开始降低, 陆地土壤中的 ^{134}Cs 连续 5 a 检出。此外还得到了可用于评价核设施的其他信息, 如: ①空气

中气态 ^{131}I 和颗粒态 ^{131}I 的比值;② $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 的浓度比(1:2);③食品添加剂中 ^{131}I 的含量比;④清洗和处理时的损失系数;⑤地表累积和外来污染量。

放射性监测和核素监测的结果要进行放射性强度评价和来源追溯。空间放射线和环境试样的放射水平属于不同的范畴,一般评价时使用指标生物所含检出限以上的平均浓度值,比实际含量高,从安全角度考虑是潜在内暴露的上限值。从评价结果看,自然放射量平均为 $2.4\text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$,公众放射性限度为 $1\text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ 。关于自然放射量,地区差异很大,日本福井县为 $0.1\text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}\sim 0.6\text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ 。一般认为 $100\text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ 以下对人类不产生严重影响。

关于因核设施泄漏而释放的核素(^3H 除外),被摄取后的内暴露量如下:①20世纪70年代为 $1\times 10^{-4}\text{ mSv}\sim 5\times 10^{-4}\text{ mSv}$,1983年—1993年为 $10^{-6}\text{ mSv}\sim 10^{-5}\text{ mSv}$,1994年后未检出;②检出量最大的核素为 ^{60}Co ,藻类中含量最高;③沉降的核素 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 Pu 的放射剂量较低;④日本敦贺以及前苏联切尔诺贝利核泄露事故的影响达到 0.006 mSv ,敦贺核电站1975年—1976年释放的稀有气体计算值约为 $0.002\text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$,达到最高值,1978年的实际测量值仅为 $0.00014\text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ 。

[参考文献]

- [1] United Nations. UNSCEAR 1993 Report to the General Assembly with Scientific Annexes[R]. New York: UNITED NATIONS, 1993. 93 - 94.
- [2] 原子力安全委员会. 原子力安全白皮书昭和58年版[M]. 东京: 大藏省印刷局, 1983. 3 - 36.
- [3] HIGUCHI H, ABE T. Radioactivity in surface air and precipitation in Japan after the Chernobyl accident[J]. Environ Radioactivity, 1988, (6): 131 - 144.
- [4] 三浦勉. 日本における放射性核素のモニタリング[J]. 水環境學會誌, 2002, 25(4): 198.
- [5] VOITSEKHOVITCH O, BERKOVSKI V. Present concept on current water protection and remediation activities for the area contaminated by the 1986 Chernobyl accident[J]. Health Physics, 1996, 71: 19 - 28.
- [6] SMITH J T, HITON J. A critical review of measures to reduce radioactive doses from drinking water and consumption of freshwater foodstuffs[J]. Environ Radioactivity, 2001, 56: 11 - 32.
- [7] 原子力安全委员会. 原子力施設等の防災対策について(平成12年5月最新改訂)[M]. 东京: 原子力安全委员会, 1980.
- [8] HIROSE K, SUGIMURA Y. Plutonium and cesium isotopes in river waters in Japan[J]. Radioanal Nucl Chemistry, 1989, 141: 191 - 202.
- [9] MATSUNAGA T, UEAO T. Characteristics of Chernobyl-derived radionuclides in particulate form in surface waters in the exclusion zone around Chernobyl Nuclear Power Plant[J]. Contam Hydrol, 1998, 35: 101 - 113.
- [10] KIM J I. Chemical behavior of transuranic elements in natural aquatic systems [A]. FREEMAN A J, KELLER C. Handbook on the Physics and Chemistry of the Actinides, Vol 4 [C]. Amsterdam: Elsevier, 1986. 413 - 455.
- [11] NAGAO S, MATSUNAGA T, AMANO H. Dissolved forms of ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in the Sahon River waters from the Chernobyl area [A]. INABA J, HISAMATSU S, OHTSUKA Y. Distribution and Speciation of Radionuclides in the Environment [C]. Rokkasho Aomori; Institute of Environmental Sciences, 2000. 162 - 168.
- [12] 筒木潔. フミン物質(腐植物質)の生成機構とその性質[J]. 水環境學會誌, 1995, 18: 252 - 256.
- [13] AMANO H, ONUMA Y. The transfer capability of long-lived radionuclides from surface soil to river water in dissolved forms[J]. Org Geochem, 1999, 30: 437 - 442.
- [14] HIROSE K, TAKATANI S, AOGAMA M. Wet deposition of radionuclides derived from the Chernobyl accident[J]. Atmos Chem, 1993, 17: 61 - 71.
- [15] SANISHI P H, BOLLHALDER S, FARRENKOTHEM K. The self-cleaning capacity of surface waters after radioactive fallout. Evidence from European water after Chernobyl [J]. Environ Sci Technol, 1990, 24: 519 - 527.
- [16] 植田洋匡. 大気汚染長距離輸送時の挙動[J]. エアロゾルの研究, 1988, 3: 178 - 186.
- [17] 辻藤邦男, 植田真司. 水環境の放射能汚染とモニタリング[J]. 水環境學會誌, 2002, 25(4): 188.
- [18] BRENN H D, VOGT K J. The calculation of wet deposition from radioactive plumes[J]. Nuclear Safety, 1981, 22: 362 - 371.
- [19] 井川学, 長嶋律. 酸性霧の化学と洗浄効果組成[J]. 日本化学会誌, 1991, 698 - 704.
- [20] 植田真司, 辻藤邦男. 青森縣汽水湖尾敷沼の堆積物中における ^{238}U , ^{137}Cs 及び安定元素の分布[J]. 陸水學雜誌, 1998, 59: 159 - 173.
- [21] ANDERSON R F, LEHURAY A P, MURRAY J W. Uranium deposition in Saanich Inlet sediments, Vancouver Island [J]. Geochim Cosmochim Acta, 1989, 53: 2205 - 2213.
- [22] 辻藤邦男, 桥谷博. 汽水湖中海における栄養塩類及び植物プランクトンの鉛直分布を支配する塩分躍層の役割[J]. 陸水學雜誌, 1994, 55: 47 - 60.
- [23] ANDERSON R F. Redox behavior of uranium in an anoxic marine basin [J]. Uranium, 1987, 3: 145 - 164.
- [24] 日本原子力産業會議. 原子力ポケットブック2001版[M]. 东京: 日本原子力産業會議, 2001. 99 - 101.
- [25] National Institute of Radiological Science. RADIOACTIVITY SURVEY DATA in Japan, NIRS - RSD - 126 [M]. Chiba: National Institute of Radiological Science, 2000. 32.

(下转第22页)

运时, 噪声监测值均达标, 接近 2 类区域标准值。

3 结果分析

(1) 在延平湖运行的船舶大都属于中小型, 以小型运沙船及小型渔船为主, 船舶密度不大, 流量为 10 艘/h~30 艘/h。噪声源主要来自船舶的电动机, 其中运送砂石的拖轮及捕鱼作业的小渔船产生的噪声最大, 因为是挂浆机船, 发动机无任何隔声降噪措施。

(2) 根据监测结果, 单船的通过时间在 1 min 左右, 影响范围约 200 m。而闽江南平段河面较窄, 均在 200 m 以内, 因此两岸 50 m 范围内均在影响之中, 特别是对沿江而居的居民影响较大。

(3) 南平市依山傍水用地紧张, 有很大一部分楼房均依江而建, 随着城市的不断发展, 依江而居的居民将越来越多, 船舶噪声污染的影响面也将越来越大。

(4) 现行的环境噪声防治法没有对在城市段航行的船舶噪声管理做出明确规定。现有的船舶噪声行业标准尚不能满足城市环境质量的要求, 更无法满足人们日常生活和休息的要求。

(5) 由于交通管制, 沙石料的装运时间选择在早晚, 夏秋季许多船只为了避开炎热的昼间而在凌晨、傍晚及夜间航行, 更加重了夜间船舶噪声污染。

(6) 船舶超负荷及加速时的噪声均大于正常负

荷匀速航行的噪声; 高速航行产生的噪声大于低速航行的噪声; 航线越靠近居民区, 噪声影响越大; 水流速快时船舶发出的噪声大于水流速慢时船舶航行时发出的噪声。

(7) 目前航运船舶中, 小型船舶, 特别是挂浆机船成为主要的运输个体。船主环境意识较差, 法律法规意识淡薄, 为了加大动力, 节约能源, 自行拆除消声器, 使得柴油机噪声增加, 超过国家及行业噪声限定标准, 有些船舶违反规定, 擅自增加挂浆机数量。

4 防治措施

(1) 对所有挂浆机船舶新增运力一律不再审批, 对市区段水域实施禁止挂浆机船舶夜间航行的控制措施, 并对航线进行研究规划, 尽量避开居民稠密区; 今后还将实施关口节点昼夜把口管理和加强巡航检查, 禁止防污染设施不完善或未达标的船舶运行。加强对船舶声号、高音喇叭和船舶排气噪声控制和管理。

(2) 加强对船主的管理和教育, 逐步提高其环境保护意识和法律法规意识。地方政府交通管理部门, 应加强对本地地区的船舶和过境船舶的管理。

(3) 加快船舶改型研究, 研制低噪声的船用主机, 推进船舶的更新换代。在现有的柴油机上强制安装消音器或采纳国外的先进办法进行隔声降噪。

(上接第 13 页)

[26] 科学技术厅. ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線

スペクトロメリー[M]. 千葉: 日本分析センター, 1992. 362.

[27] 科学技术厅. ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法[M]. 千葉: 日本分析センター, 1982. 20.

[28] 科学技术厅. 放射性ストロンチウム分析法[M]. 千葉: 日本分析センター, 1983. 101.

[29] 科学技术厅. 放射性セシウム分析法[M]. 千葉: 日本分析センター, 1976. 56.

[30] 科学技术厅. 都道府県における放射能調査[A]. 第 42 回環境放射能調査研究成果論文抄録集[C]. 東京: 科学技术厅, 2000. 119-298.

[31] 野中信博, 渡辺右修, 吉清水克己. 降下物, 陸水, 海水, 土壌及び各種食品試料の放射能調査[A]. 第 42 回環境放射能調査研究成果論文抄録集[C]. 東京: 科学技术厅, 2000. 25-28.

[32] 茅野充男, 結田康一. 放射性核種の化学形が被曝線量評価に及ぼす影響[A]. 2 土壌, 第 12 回放医研環境セミナー報告文集[C]. 千葉: 放射線医学総合研究所, 1986. 31-36.

[33] 廣瀬勝己, 伊藤集通. 海洋における放射性核種測定とデータベースの構築[J]. 水環境學會誌, 2002, 25(4): 202.

[34] 小村和久. 極低レベル放射能測定[J]. ふんせま, 2000, 12: 730-735.

[35] KIM C K. Application of an on-line flow injection high resolution inductively plasma mass spectrometry to the determination of Pu isotopes in soil and seawater[A]. INABA J, HISAMATSU S, OHTSUKA Y. Distribution and Speciation of Radionuclides in the Environment[C]. National Institute of Radiological Sciences, 2000. 202-209.

[36] PENTREATH R J. Sources of artificial radionuclides in the marine environment[A]. GUARY J C, GUEGUENIAT P, PENTREATH R J. Radionuclides: a tool for oceanography[C]. Elsevier Applied Science, 1988. 12-34.

[37] 吉岡満夫. 原子力発電所周辺の水環境モニタリング[J]. 水環境學會誌, 2002, 25(4): 206.

[38] 松水武, 長尾誠也. チュルノブイリ事故水環境放射能汚染[J]. 水環境學會誌, 2002, 25(4): 193.

(续完)

本栏目责任编辑 姚朝英