科学通报 2012 年 第 57 卷 第 32 期: 3100 ~ 3108
论 文 www.scichina.com csb.scichina.com
《中国科学》杂志社 SCIENCE CHINA PRESS

从人为放射性核素 ^{137}Cs 看福岛核事故对中国海的影响

吴俊文, 周宽波, 戴民汉*

厦门大学近海海洋环境科学国家重点实验室, 厦门 361005
* 联系人, E-mail: mdai@xmu.edu.cn

2012-03-09 收稿, 2012-07-10 接受, 2012-09-24 网络版发表
国家重点基础研究发展计划(2009CB421200)资助

摘要 2011 年 4~6 月在中国海采集了海水样品, 用低本底γ能谱测定了海水 ^{137}Cs 活度, 旨在评估福岛核事故对中国海、特别是对东海的影响. 在观测期, 中国海 ^{137}Cs 活度为 0.75±0.07~1.43±0.08 Bq m^{-3}, 平均值为 1.12±0.08 Bq m^{-3}. 东海表层 ^{137}Cs 水平分布在内陆架最高, 沿岸和外陆架均较低; 在垂直分布上, ^{137}Cs 在表层最高, 并呈随深度逐渐降低. 这种分布特征主要受控于 ^{137}Cs 大气沉降输入以及随后的决定于不同水团间的混合效应. 针对东海而言, ^{137}Cs 在水柱中的储量为 93 Bq m^{-2}, 大气输入通量为 5.4~42.9 mBq m^{-2} d^{-1}, 平均为 32.2 mBq m^{-2} d^{-1}, 在东海的停留时间为 45~95 d, 平均为 66 d; 总体而言, 福岛核事故对东海 ^{137}Cs 的影响小于切尔诺贝利事故, 其输入的总量对东海的影响不显著.

关键词
福岛核事故
人为放射性核素
^{137}Cs
放射性污染
中国海
大气沉降

2011 年 3 月 11 日, 9.0 级地震和海啸引发了日本福岛第一核电站核泄漏事故, 从而造成大量的人为放射性裂变产物, 如 ^{131}I($t_{1/2}$=8.02 d), ^{134}Cs($t_{1/2}$=2.06 a), ^{137}Cs($t_{1/2}$=30.07 a), ^{239}Pu($t_{1/2}$=2.41×10^4 a) 和 ^{240}Pu($t_{1/2}$=6.56×10^3 a)等通过大气快速输运、海洋表层慢速输运和海洋内部极慢速输运等 3 类自然通道输运扩散[1], 进而影响陆地及海洋生态系统. 福岛核事故发生后, Garnier-Laplace 等人[2]立即通过构建陆地和海洋受影响区域生物放射剂量以期评估放射性物质的生态风险, 而 Christodouleas 等人[3]则评估了由放射性物质直接辐射所导致短期和长期的健康风险. Tsumune 等人[4]估算了从 2011 年 3 月底至 5 月底福岛核事故直接入海 ^{137}Cs 量为 3.5±0.7 PBq (1 PBq=10^{15} Bq), Buesseler 等人[5]根据 2011 年 6 月 4 ~ 18 日的现场数据分析得出这些直接入海 ^{137}Cs 已使得福岛附近海域 ^{137}Cs 活度和储量均有显著升高. 其实, 福岛核事故除了直接排放入海的 ^{137}Cs 外, 泄露直接进入大气的量也不可忽视; 据日本核应急响应指挥部估算, 福岛核事故所泄露的进入大气 ^{137}Cs 量为 15 PBq, 泄露主要集中在 2011 年 3 月 12 日至 4 月 6 日[6]. 事实上, 福岛核事故所产生的放射性裂变产物通过大气传输所造成的影响是全球性的; 例如, 2011 年 3 月 16 日在远离福岛达 7000 km 的美国西北太平洋国家实验室就曾检测到大气中来自福岛的 ^{133}Xe[7], 而 2011 年 3 月 24 日至 4 月 9 日在远离福岛达 7500 km 的希腊塞萨洛尼基(Thessaloniki)的大气和雨水中也检测到来自福岛的 ^{131}I, ^{134}Cs 和 ^{137}Cs[8].

中国海位于北太平洋西部, 福岛核事故排入太平洋的放射性物质受黑潮水的阻隔难以在短时间尺度直接传输进入中国海, 而大气传输是其快速进入中国海的主要途径. Huh 等人[9]应用 WRF/Chem 示踪模型模拟了福岛释放的放射性物质通过大气传输直接进入中国海的路径, 并通过实测 ^{137}Cs 和 ^{134}Cs 数据进行了验证; 如 2011 年 3 月 25 日在东海彭佳屿首次检测到大气中来自福岛的 ^{137}Cs 和 ^{134}Cs, 活度分别为 0.0068 ± 0.0022 和 0.0062 ± 0.0011 mBq m^{-3}, 4 月 6 日达到峰值, 活度分别为 1.4411 ± 0.0209 和 1.1235 ± 0.0175 mBq m^{-3}[9]. 由于 ^{137}Cs 半衰期较长, 为 30.07 a,

英文版见: Wu J W, Zhou K B, Dai M H. Impacts of the Fukushima nuclear accident on the China Seas: Evaluation based on anthropogenic radionuclide ^{137}Cs. Chin Sci Bull, 2012, 57, doi: 10.1007/s11434-012-5426-2

其可能的生物效应可长达数十年[10]; 另外, ^{137}Cs 也是海洋环境中丰度最高的人为放射性核素[11], 它不仅是评估海洋放射性污染的有效指标, 还常用于示踪海洋过程[12~16].

但是, 至今尚未见关于福岛核事故释放的放射性物质对中国海影响的报道. 本文主要目的是检验福岛核事故所释放人为放射性核素 ^{137}Cs 对中国海、特别是东海的影响. 为此, 我们测定了中国海 ^{137}Cs 活度水平及其分布特征, 探讨了影响其分布的主要因素, 计算了东海水柱 ^{137}Cs 储量和大气输入通量, 最后基于 ^{137}Cs 分析了福岛核事故对中国海的影响程度.

1 材料和方法

^{137}Cs 海水样品采样时间为 2011 年 4 月 29 日至 6 月 13 日, 采样区域包括黄海、东海和南海(图 1); 其中, 黄海采集 1 个表层海水样品, 东海采集 6 个表层海水样品和 1 个垂直剖面海水样品, 南海采集 2 个表层海水样品. 表层海水样品用泵水系统采集, 垂直剖面海水样品用 Niskon 采水器采集, 每一海水样品采集量约 50 L; 样品采集后用浓硝酸酸化至 pH<2 后运回实验室. 然后加入氯化铯溶液(含 0.600 g Cs^+)连续搅拌约 30 min 使其溶解, 再加入 12.000 g 磷钼酸铵(AMP)连续搅拌约 2 h 使其充分吸附铯, 静置 18~24 h 后虹吸上清液, 将沉淀过滤至定量滤纸上, 通过重量法计算 ^{137}Cs 化学回收率, 实验结果表明 ^{137}Cs 样品分析具有很高的化学回收率, 平均为 94.8%(表 1). ^{137}Cs 海水样品详细处理和测试分析程序见 Aoyama 等人[19]. 样品在国家海洋局第三海洋研究所测定, 测

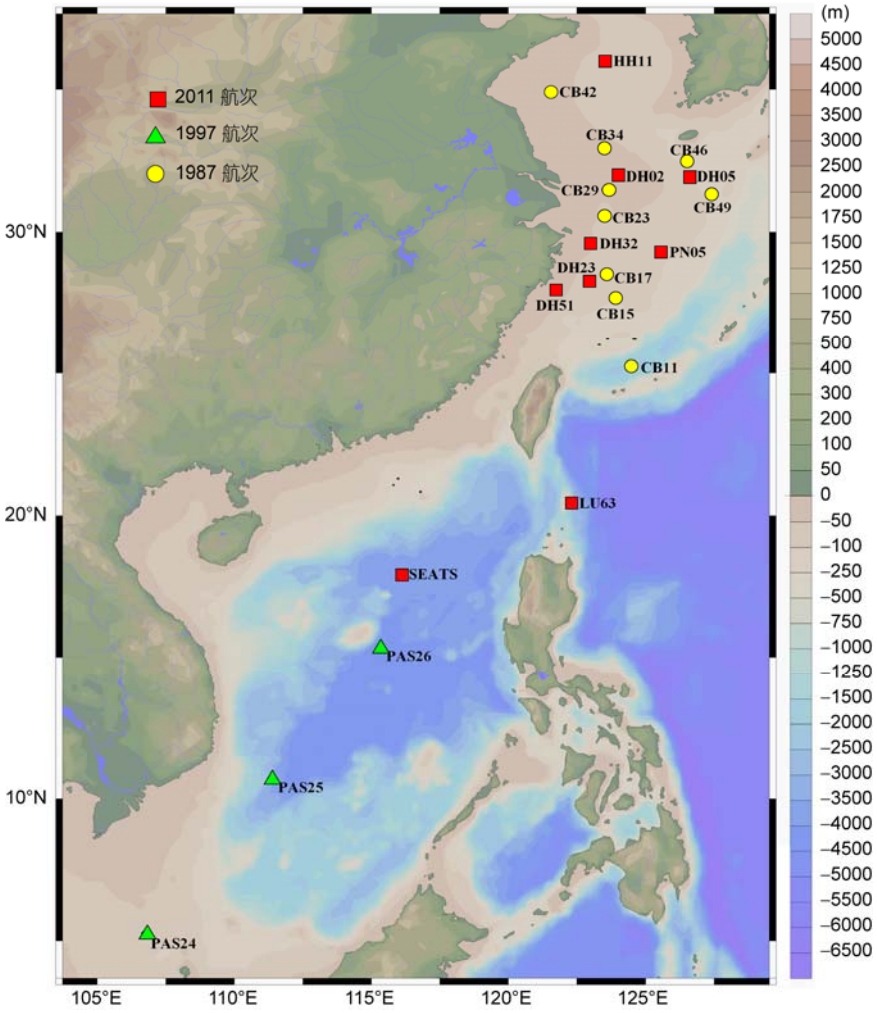

图 1 中国海地图和采样站位图

2011 航次采样站位来自本研究, 1987 和 1997 航次站位分别来自 Nagaya 等人[17]和 Yamada 等人[18]

表 1 中国海海水样品信息及其 ^{137}Cs 活度 a)

区域	站位	纬度 (N)	经度 (E)	采样日期	水深 (m)	采样深度 (m)	温度 (℃)	盐度	化学回收率 (%)	^{137}Cs b) (Bq m^{-3})
黄海	HH11	36.048°	123.498°	2011-06-08	77	0.5	15.836	31.890	95.9	1.10±0.07
	DH02	31.999°	123.999°	2011-06-07	43	0.5	16.610	31.404	94.8	1.32±0.10
	DH05	32.006°	126.481°	2011-06-07	102	0.5	19.592	33.382	94.8	1.01±0.06
	DH32	29.643°	123.038°	2011-06-02	62	0.5	21.931	33.652	95.0	1.31±0.13
东海	PN05	29.336°	125.521°	2011-06-06	102	0.5	20.450	32.051	96.0	0.75±0.07
	DH51	27.880°	121.676°	2011-05-31	36	0.5	20.340	31.333	95.1	0.80±0.08
	DH23	28.331°	123.006°	2011-06-01	77	0.5	22.536	34.129	93.3	1.43±0.08
	DH23	28.331°	123.006°	2011-06-01	77	50	18.738	34.169	96.0	1.20±0.10
	DH23	28.331°	123.006°	2011-06-01	77	75	18.214	34.482	95.3	0.84±0.07
南海	LU63	20.500°	122.290°	2011-05-05	3417	0.5	28.153	34.233	91.2	1.14±0.06
	SEATS	18.000°	116.000°	2011-05-08	3846	0.5	27.570	33.705	95.4	1.41±0.09
最小							15.836	31.333	91.2	0.75±0.07
最大							28.153	34.482	96.0	1.43±0.08
平均							20.906	33.130	94.8	1.12±0.08

a) ^{137}Cs 活度校正到采样日期; b) ^{137}Cs 活度误差是在 1σ 计数下所得

量仪器为 GC4020 高纯锗γ能谱仪, 仪器对刻度源的平均探测效率为 5.0%, 95%的置信度时探测限为 0.25 Bq m^{-3}. 通过计数时间、峰净计数、效率刻度系数、化学回收率和样品体积等参数可计算海水样品活度. 样品分析的相对误差为 5.6%~10.1%, 平均为 7.5%.

2 结果和讨论

2.1 中国海 ^{137}Cs 活度

海水 ^{137}Cs 测试结果及其他相关信息详见表 1. 在观测期, 中国海 ^{137}Cs 活度范围为 0.75±0.07~1.43±0.08 Bq m^{-3}, 平均为 1.12±0.08 Bq m^{-3}; 其中, 黄海表层海水 ^{137}Cs 活度为 1.10±0.07 Bq m^{-3}, 东海表层海水 ^{137}Cs 活度范围为 0.75±0.07~1.43±0.08 Bq m^{-3}, 平均为 1.10±0.09 Bq m^{-3}, 南海表层海水 ^{137}Cs 活度范围为 1.14±0.06~1.41±0.09 Bq m^{-3}, 平均为 1.28±0.08 Bq m^{-3}. 上述活度范围明显低于中国《海水水质标准》(GB3097-1997)中所规定的一类至四类海水的 ^{137}Cs 活度(700 Bq m^{-3})和日本关于海水 ^{137}Cs 活度规定限值(90000 Bq m^{-3}), 同时也低于海洋中丰度最高的天然核素 ^{40}K 活度(~12000 Bq m^{-3}) [5]. 本研究测得的中国海 ^{137}Cs 活度水平与其他边缘海相比也并不高; 例如, 1991~2000 年间, 日本海表层海水 ^{137}Cs 活度为 1.0~4.4 Bq m^{-3}, 平均为 2.7 Bq m^{-3}[20], 1995 年, 鄂霍次克海表层海水 ^{137}Cs 活度为 1.7~2.1 mBq kg^{-1}, 平均为 1.9 mBq kg^{-1}[21]. 日本海和鄂霍次克海表层海水 ^{137}Cs 活度均高于中国海, 其主要原因是前苏联和俄罗斯曾向日本海和鄂霍次克海倾倒了 456 TBq (1 TBq= 10^{12} Bq)液体放射性废物和 252 TBq 固体放射性废物[22].

为了检验中国海表层海水 ^{137}Cs 活度分布是否存在区域差别, 我们对中国海表层海水 ^{137}Cs 活度水平进行了 F 检验和 T 检验. 首先对黄海、东海和南海 ^{137}Cs 活度进行 F 检验得出概率值为 0.99, 根据判定规则所得概率值大于 0.05, 说明两组数据方差齐; 然后再进行 T 检验得出概率值为 0.43, 根据判定规则所得概率值大于 0.05, 说明两组数据没有差别, 由此可知, 中国海 ^{137}Cs 分布并不存在明显区域差异, 这可能与其来源由大气传输有关.

2.2 中国海 ^{137}Cs 分布特征

(ⅰ) 水平分布. 中国海表层海水 ^{137}Cs 水平分布和东海表层水 ^{137}Cs 随经度分布见图 2. 由于黄海和南海数据较少, 本研究重点介绍东海 ^{137}Cs 分布特征及其控制因素. 从图 2(b)可知, 东海表层海水 ^{137}Cs 分布从沿岸到内陆架升高, 而从内陆架到外陆架降低, 这可能与大气传输、水团运动或混合有关. Hsu 等人[23]研究表明大气中的放射性物质在东北季风作

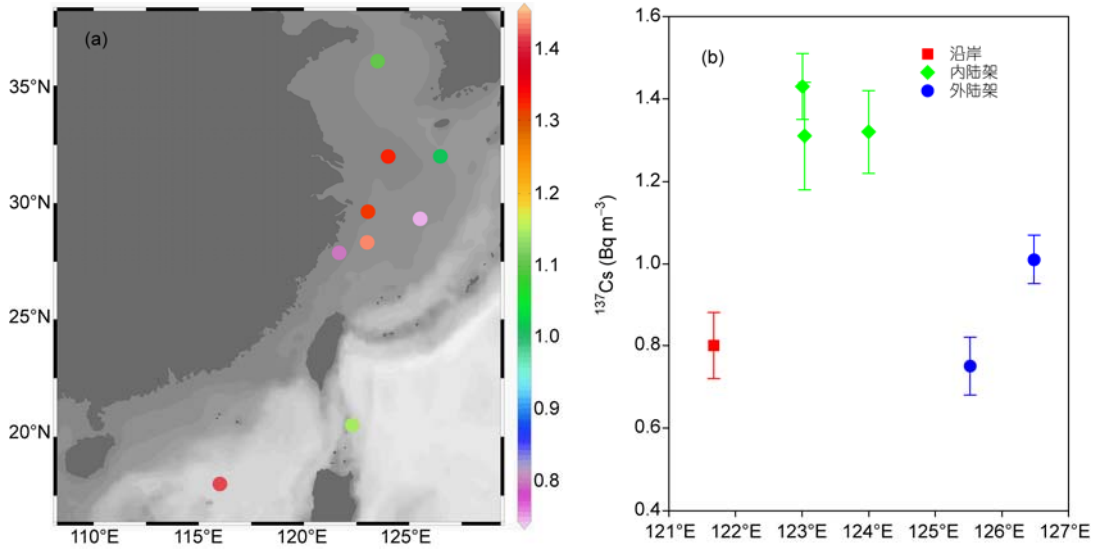

图 2　中国海表层海水 ^{137}Cs 水平分布(a)和东海表层海水 ^{137}Cs 活度随经度变化(b)

用下将从福岛西南方向直接进入东海；如果只考虑大气沉降作用，则东海表层海水 ^{137}Cs 分布应该是从外陆架至沿岸逐渐减小，但现场监测结果表明东海内陆架表层海水 ^{137}Cs 活度最高，所以 ^{137}Cs 分布不仅只受大气沉降影响，水团运动如长江冲淡水、沿岸流或台湾暖流等可能也是影响其分布的主要因素．刘志亮等人对 2011 年 5~6 月份东海水文观测分析得出长江冲淡水和台湾暖流已经影响 PN05 站位，而 DH51 站位受到沿岸流的影响(未发表数据)；结合春季东海表层海流模型[24]和盐度与 ^{137}Cs 之间的关系，分析得出 DH51 站位 ^{137}Cs 活度较低是受沿岸流的影响，而 PN05 站位 ^{137}Cs 活度较低是受长江冲淡水和台湾暖流共同作用，DH05 站位 ^{37}Cs 活度稍低是大气沉降和台湾暖流的共同作用．所以，东海表层海水 ^{137}Cs 分布受大气沉降，长江冲淡水、沿岸流和台湾暖流等共同作用．

（ⅱ）垂直分布． 东海 ^{137}Cs 活度和温盐垂直分布见图 3．东海 DH23 站位从表层至底层 ^{137}Cs 活度范围为 0.84±0.07~1.43±0.08 Bq m^{-3}，温度和盐度范围分别为 18.195~22.768℃和 34.043~34.484．温盐随水深变化呈镜像相关，在 18 m 以浅，温度随水深基本保持不变，为上混合层，在 40 m 以浅，温盐随水深变化趋势相同，而在 60 m 以深，温度随水深基本保持不变．^{137}Cs 活度在表层最大，随深度逐渐降低．福岛核事故发生后，大气沉降是东海 ^{137}Cs 的主要来源，所以表层海水 ^{137}Cs 活度最大，从表层至底层由于混

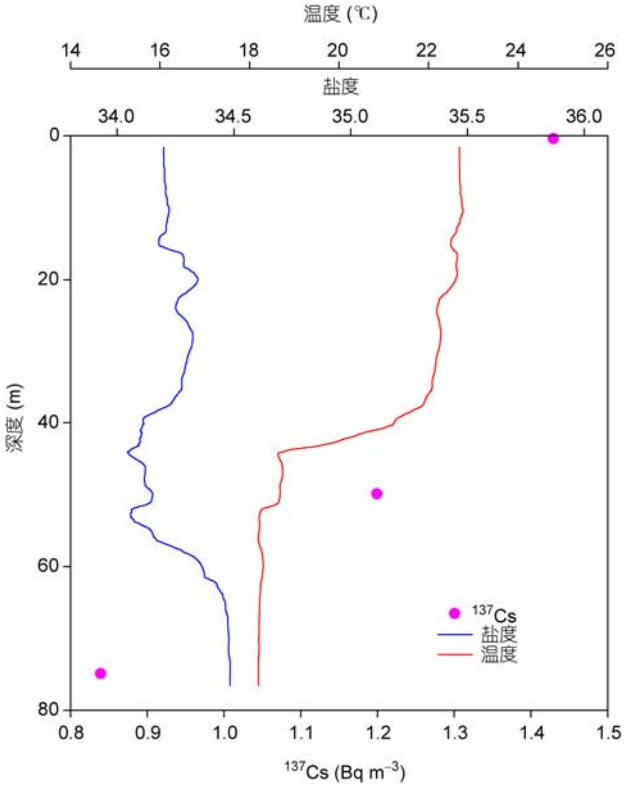

图 3　东海 DH23 站位 ^{137}Cs 活度和温盐垂直分布

合稀释 ^{137}Cs 活度随深度逐渐降低；因此，DH23 站位 ^{137}Cs 垂直分布代表了东海 ^{137}Cs 垂直分布类型，值得一提的是，DH23 站位 ^{137}Cs 垂直分布类型与以前在西北太平洋研究结果一致[25~27]．

2.3 福岛核事故对中国海 ^{137}Cs 影响程度分析

(ⅰ) ^{137}Cs 储量和停留时间. 水柱 ^{137}Cs 储量是评估其在海洋累积的有效指标, 通过积分每一深度海水 ^{137}Cs 活度可计算水柱 ^{137}Cs 储量[28]. 我们根据东海 DH23 站位所测不同深度 ^{137}Cs 活度计算了水柱 ^{137}Cs 储量, 同时与切尔诺贝利事故发生后东海水柱 ^{137}Cs 储量进行了比较(表 2). 由表 2 可知, 福岛核事故发生后, 东海水柱 ^{137}Cs 储量为 93 Bq m^{-2}, 而切尔诺贝利核事故发生后, 东海水柱 ^{137}Cs 储量为 131~3288 Bq m^{-2}, 明显高于福岛核事故后东海 ^{137}Cs 储量. 值得注意的是, 虽然 CB17 和 DH23 站位相距很近(~50 km)且积分深度相差不大, 但 CB17 站位水柱 ^{137}Cs 储量却是 DH23 的 2 倍多, 假设切尔诺贝利和福岛核事故前东海 ^{137}Cs 主要来自大气核爆试验, 其本底相同, 则通过比较可知, 切尔诺贝利核事故对东海 ^{137}Cs 储量的影响大于福岛核事故.

海洋中溶解态物质通过涡动扩散和平流从高浓度水体向低浓度水体传输. ^{137}Cs 在海洋中具有可溶性(表层海水 ^{137}Cs 量吸附海洋颗粒物量小于 1%)和保守性[29]. 假设东海 ^{137}Cs 仅来自大气沉降, 即没有其他输入源, 也不存在显著水平输运, 则由表至底的传输遵循一维垂直扩散模型, 根据 ^{137}Cs 活度梯度和垂直涡动扩散系数可估算东海 ^{137}Cs 从表至底的输运通量. 首先, 将东海 DH23 垂直剖面数据进行拟合, 可得 ^{137}Cs 活度梯度为–0.0074 Bq m^{-3} m^{-1}; 然后, 调研历史资料确定东海垂直涡动扩散系数, 如刘广山等人[30]于 2006 年 7 月应用镭同位素计算所得东海垂直涡动扩散系数为 18.8~23.8 cm^2 s^{-1}, 平均为 21.1 cm^2 s^{-1}; 门武等人[31]应用镭同位素计算所得东海垂直涡动扩散系数为 15.3~32.4 cm^2 s^{-1}, 平均为 22.9 cm^2 s^{-1}; 考虑到估算具有一定的不确定性, 本研究对东海垂直涡动扩散系数取较大的范围, 为 15.3~32.4 cm^2 s^{-1}, 平均为 22.0 cm^2 s^{-1}; 从而得到东海由表至底 ^{137}Cs 输入通量为 0.98~2.07 Bq m^{-2} d^{-1}, 平均为 1.41 Bq m^{-2} d^{-1}. 为了评估东海 ^{137}Cs 从表层至底层的混合时间, 我们根据东海水柱 ^{137}Cs 储量和输入通量计算了东海 ^{137}Cs 的停留时间, 结果表明东海 ^{137}Cs 停留时间为 45~95 d, 平均为 66 d; 因此, 福岛核事故释放的 ^{137}Cs 经大气传输输入东海后, 从表层传输至底层的混合交换时间约为 66 d, 该研究结果与 Nozaki 等人[32]在东海所计算水体中 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的停留时间大约为 60 d 基本一致.

表 2 计算所得东海水柱 ^{137}Cs 储量

站位	水深(m)	^{137}Cs 储量(Bq m^{-2})	来源
DH23	77	93	本研究
CB17	71	227	
CB15	96	275	
CB23	57	170	
CB29	40	131	Nagaya 等人[17]
CB34	37	131	
CB42	42	189	
CB11	2280	3288	

(ⅱ) ^{137}Cs 大气输入通量. 由于缺少中国海 ^{137}Cs 长时间序列监测数据, 没有福岛核事故发生前中国海 ^{137}Cs 实测背景值. 但为了获取该背景值, 我们先提出科学假设而后进行论证获取了福岛核事故前东海 ^{137}Cs 背景值. 科学假设为在没有 ^{137}Cs 源输入的情况下, 溶解 ^{137}Cs 完全保守, 则对于停留时间较短的陆架边缘海 ^{137}Cs 垂直分布随深度保持不变. 为了验证该假设, 我们对不同陆架边缘海 200 m 以浅 ^{137}Cs 随深度的垂直分布进行了分析; 如在日本海 200 m 以浅 ^{137}Cs 活度为 3.3~3.6 mBq kg^{-1}, 在垂向上随深度基本保持不变[33]; 在日本海南部岛根(Shimane)、福井(Fukui)、石川(Ishikawa)和新潟(Niigata)海域陆架区 200 m 以浅 ^{137}Cs 活度具有相似的范围, 为 2.2±0.2 Bq m^{-3}, 随深度基本保持不变[34]; 而在其他亚洲海域(中北太平洋、日本海、东海、黄海、西北太平洋西部)^{137}Cs 活度从表层至次表层随深度也基本保持不变[35]. 因此, 对于东海平均水深只有 72 m 和 ^{137}Cs 停留时间约 66 d, 在福岛核事故发生之前, 表底层海水 ^{137}Cs 活度应该相同; 另外, DH23 站位在东海具有一定的代表性, 因为福岛核事故排入太平洋的放射性物质受黑潮水的阻隔短时间内难以传输进入中国海, 大气传输是其快速进入东海的主要途径[9], 而大气传输使得东海 ^{137}Cs 的空间分布差异性较小, 且在上述水平分布分析中 DH23 站位 ^{137}Cs 活度并未受到水团运动的影响, 所以选择 DH23 站位代表东海是合理和可行的. 因此, 我们将东海 DH23 站位 75 m 处 ^{137}Cs 活度作为福岛核事故发生前东海表层海水背景值, 其值为 0.84 Bq m^{-3}, 该值与姚海云等人[36]根据 1995~2009 年的长期监测得出东海近岸海水 ^{137}Cs 平均活度为 0.9 Bq m^{-3} 基本一致; 另外, 根据东海陆架水量为 4.5×10^4 km^3[37]可估算福岛核事故发生之前东海 ^{137}Cs

总量为 3.78×10^{13} Bq.

^{137}Cs 通过大气输入海洋的通量可分解为干沉降通量和湿沉降通量, 即

$$F_t = F_d + F_w, \quad (1)$$

其中, F_t 为大气中入海 ^{137}Cs 总通量(Bq m^{-2} d^{-1}); F_d 为干沉降通量; F_w 为湿沉降通量. 目前对于 F_d 和 F_w 的估算有较成熟的模型, 即

$$F_d = C_a \cdot V_d, \quad (2)$$

$$F_w = P \cdot S \cdot C_a / \rho_0, \quad (3)$$

式中, C_a 为大气颗粒物中 ^{137}Cs 活度(mBq m^{-3}), V_d 为该元素的干沉降速率(cm s^{-1}), P 为降水量(mm d^{-1}), S 为湿沉降冲刷因子(g m^{-3}), ρ_0 为空气密度(g m^{-3}), 为 1200 g m^{-3}. 这些参数的确定是估算 ^{137}Cs 大气沉降通量的关键.

大气中 ^{137}Cs 干沉降通量的估算, 关键是确定大气颗粒物中 ^{137}Cs 活度 C_a 和干沉降速率 V_d. 本研究中 C_a 主要是依据 Huh 等人[9]于 2011 年 3 月 25 日至 4 月 23 日在东海彭佳屿所测大气颗粒物中 ^{137}Cs 数据, 取该时间段 ^{137}Cs 活度平均值, 即 C_a 为 0.1241 mBq m^{-3}. 另外, 通过类比的方法获得大气中 ^{137}Cs 干沉降速率; 因为大气中 ^{137}Cs 主要附着在粒径约 1 μm 颗粒物上, 其聚集分布类型与 SO_4^{2-}和 NH_4^+相似[38]; 且石金辉等人[39]也进一步证实了东海大气中 SO_4^{2-}和 NH_4^+主要聚集在 0.65~1.10 μm 细粒子上, 所以东海大气中 ^{137}Cs 与 SO_4^{2-}和 NH_4^+的沉降模式相似. 高会旺等人[40]系统地研究了大气中硫污染物的干沉降模式, 得出 SO_4^{2-}的干沉降速率为 0.1~0.4 cm s^{-1}, 而在沿海地区大气中 NH_4^+干沉降速率常取 0.05~0.2 cm s^{-1}[41~43]; 考虑到估算具有一定的不确定性, 本研究取 SO_4^{2-}干沉降速率的上限和 NH_4^+的下限作为 ^{137}Cs 干沉降速率, 为 0.05~0.4 cm s^{-1}, 而平均值取 SO_4^{2-}和 NH_4^+干沉降速率上限的均值, 即干沉降速率 V_d 取值为 0.3 cm s^{-1}, 由此可估算大气中 ^{137}Cs 的干沉降通量 F_d 为 5.4~42.9 mBq m^{-2} d^{-1}, 平均为 32.2 mBq m^{-2} d^{-1}.

对于大气湿沉降通量的估算, 主要是根据参阅历史资料确定降雨量 P 和冲刷因子 S 等参数. 根据资料调研可知降雨量具有明显的季节和年际变化规律, 如刘毅等人[44]报道了中国东部海域春季月平均降水量为 100 mm, 万小芳等人[45]报道了 2001 年东海春季月平均降雨量为 146 mm, 朱玉梅等人[46]测得 2008 年 1 月~2009 年 12 月东海春季月平均降雨量为 118 mm, Chou 等人[47]报道了彭佳屿月平均降雨量在 162 mm 以上, 由此可知东海春季月平均降雨量在 100~170 mm 之间, 本研究做最大估算, 降雨量 P 取上限值, 则 P 每月为 170 mm. 冲刷因子 S 与被冲刷粒子的尺度、物理和化学性质等因素有关, Duce 等人[41]综合考虑上述因素给出了大气中 NH_4^+的冲刷因子 S 值在 160~340 g m^{-3} 之间, 但大多数研究中 S 常取 200 g m^{-3}, 因此, 本研究 S 取值为 200 g m^{-3}; 为此, 根据上述所确定的各参数可估算 ^{137}Cs 大气湿沉降通量 F_w 为 0.1172×10^{-3} mBq m^{-2} d^{-1}. 比较所估算的大气 ^{137}Cs 干湿沉降通量可知, 东海 ^{137}Cs 的输入主要以干沉降为主, 最后可得大气 ^{137}Cs 总输入通量 F_t 为 5.4~42.9 mBq m^{-2} d^{-1}, 平均为 32.2 mBq m^{-2} d^{-1}. 由此进而可估算从福岛核事故发生后至采样时, 东海 ^{137}Cs 大气输入量为 1.89×10^{12} Bq. 综合分析上述估算可知, 受福岛核事故影响, 经大气传输输入东海新增 ^{137}Cs 量仅为总量的 4.7%; 因此, 从人为放射性核素 ^{137}Cs 来看, 福岛核事故对东海的影响较小.

由于 ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 性质极为相似, 于是我们用与 ^{137}Cs 相同的假设和方法估算了 ^{134}Cs 的大气输入量, 研究结果表明, 东海 ^{134}Cs 大气输入通量和输入量分别为 25.5 mBq m^{-2} d^{-1} 和 1.49×10^{12} Bq. 由此可知, 受福岛核事故影响, 也具有一定量的 ^{134}Cs 输入东海, 同时 Buesseler 等人[48]也报道了福岛核事故释放的 ^{134}Cs/^{137}Cs 比例大约为 1, 但我们在中国海只检测到 ^{137}Cs 而并未检测到 ^{134}Cs, 其主要原因可能是海水 ^{134}Cs 活度低于仪器探测限, 为了证实这一观点, 我们假设福岛核事故前, 东海 ^{134}Cs 活度为 0 Bq m^{-3}, 而 ^{137}Cs 本底活度为 0.84 Bq m^{-3}; 福岛核事故发生后, 东海 ^{134}Cs 活度仍然趋近于 0, 而 ^{137}Cs 活度稍有升高. 根据 Currie 等人[49~51]对探测下限的定义和计算公式, 代入各样品的计数时间、样品体积、探测效率、富集效率、衰变校正因子和谱峰特征等参数, 计算所得东海海水样品 ^{134}Cs 探测下限范围为 0.03~0.09 Bq m^{-3}, 平均值为 0.05 Bq m^{-3}. 根据 ^{134}Cs 大气输入量和东海陆架水量, 考虑其在东海的停留时间以及大气输入与采样时间间隔, 计算所得东海 ^{134}Cs 活度上限为 0.03 Bq m^{-3}, 低于样品探测下限的平均值. 所以, 我们认为受福岛核事故影响通过大气传输输入东海的 ^{134}Cs 活度低于探测下限而未能检出, 同时也再次说明福岛核事故通过大气传输对中国海的影响较小.

(ⅲ) 与切尔诺贝利核事故比较. 为了评估福岛核事故对中国海的影响, 将福岛核事故与切尔诺贝

利事故对中国海影响进行了比较. 切尔诺贝利事故发生后, 黄海表层海水 ^{137}Cs 活度为 4.56±0.29 Bq m^{-3}, 东海表层海水 ^{137}Cs 活度范围为 2.54±0.28~3.30±0.25 Bq m^{-3}, 平均为 2.97±0.23 Bq m^{-3}[17], 南海表层海水 ^{137}Cs 活度范围为 2.59±0.09~2.83±0.08 Bq m^{-3}, 平均为 2.70±0.11 Bq m^{-3} [18]. 将切尔诺贝利事故和福岛核事故对中国海表层海水 ^{137}Cs 活度的影响进行比较分析可知, 切尔诺贝利事故发生后, 中国海表层海水 ^{137}Cs 活度高出福岛核事故 1~2 倍. 虽然这两次核事故产生的放射性物质进入中国海途径均是通过大气传输, 且切尔诺贝利与中国海的距离远大于福岛, 但是福岛核事故对中国海的影响小于切尔诺贝利事故, 这可能是因为福岛核事故释放到大气中的 ^{137}Cs 总量小于切尔诺贝利事故. 所以, 福岛核事故对中国海表层海水 ^{137}Cs 活度的影响小于切尔诺贝利事故.

(ⅳ) 与日本福岛及其北部三陆和津轻海峡的比较. 我们选择了中国海与日本海进行比较. 所选日本海的两个区域分别为福岛第一核电站附近海域, 福岛北部的三陆和津轻海峡沿岸. 福岛第一核电站附近海域的放射性污染主要是直接排海所致, 其表层海水 ^{137}Cs 活度在 4 月 6 日最高达 6.8×10^{7} Bq m^{-3}, 而在远离福岛第一核电站沿岸 30 km 处表层海水 ^{137}Cs 活度也高达 1.0×10^{3}~3.0×10^{4} Bq m^{-3}[4]. 由此可知放射性物质直接入海将使 ^{137}Cs 活度明显增高. 根据海洋区域模型的模拟结果[4], 大气传输是 ^{137}Cs 进入三陆和津轻海峡沿岸(福岛以北 250~450 km)的主要途径. 福岛核事故发生后, Inoue 等人[52]于 2011 年 5 月 11 日至 6 月 25 日测得三陆和津轻海峡沿岸表层海水 ^{137}Cs 活度范围为 1.9±0.1~3.9±0.2 Bq m^{-3}, 平均值为 2.7±0.2 Bq m^{-3}; 而福岛核事故发生之前, 2009~2010 年津轻海峡沿岸表层海水 ^{137}Cs 活度为 1.4±0.1~1.8±0.1 Bq m^{-3}, 平均值为 1.6±0.1 Bq m^{-3}, 由此可知, 福岛核事故后, 受大气沉降影响三陆和津轻海峡 ^{137}Cs 活度升高了约 1 倍. 将福岛核事故对中国海与日本海 ^{137}Cs 的影响比较可知, 福岛第一核电站附近海域由于放射性物质直接入海, 其表层海水 ^{137}Cs 活度比中国海高出 3~7 个数量级, 而三陆和津轻海峡虽然与中国海均是受大气沉降影响, 但三陆和津轻海峡 ^{137}Cs 活度仍高出中国海约 1 倍, 这可能是随着距离的增加 ^{137}Cs 活度逐渐降低(中国海距福岛大于 950 km). 所以, 虽然同样都是受大气沉降作用, 但是福岛核事故对中国海的影响低于三陆和津轻海峡沿岸.

3 结论

福岛核事故发生后, 我们第一次给出受大气沉降影响, 中国海人为放射性核素 ^{137}Cs 活度范围为 0.75±0.07~1.43±0.08 Bq m^{-3}, 平均值为 1.12±0.08 Bq m^{-3}; 东海水柱 ^{137}Cs 储量为 93 Bq m^{-2}, 停留时间为 45~95 d, 平均为 66 d; 东海 ^{137}Cs 大气输入通量为 5.4~42.9 mBq m^{-2} d^{-1}, 平均为 32.2 mBq m^{-2} d^{-1}, 大气输入量为 1.89×10^{12} Bq, 占东海 ^{137}Cs 总量的 4.7%, 需要说明的是, 本研究基于的观测数据依然有限, 这些估算具有一定的不确定性. 东海表层海水 ^{137}Cs 的水平分布为从沿岸到内陆架增加, 而从内陆架到外陆架降低, 其分布主要受大气沉降、沿岸流、长江冲淡水和台湾暖流等共同作用; 垂直分布表现为随深度增加而逐渐降低的趋势. 总体而言, 福岛核事故对东海 ^{137}Cs 的影响小于切尔诺贝利事故, 通过大气沉降输入的 ^{137}Cs 总量对东海的影响不显著, 对中国海的影响也小于福岛及三陆和津轻海峡沿岸.

致谢 感谢厦门大学刘进文、王张勇、黄舒元和英国南安普顿大学江宗培对样品采集所提供的帮助; 感谢日本气象研究所 Aoyama 博士对测试方法所提供的帮助; 感谢国家海洋局第三海洋研究所何建华副研究员、门武博士对样品测试提供的帮助; 感谢刘茜对论文撰写过程提供的意见和建议; 感谢中国科学院海洋研究所刘志亮博士提供 CTD 温盐数据; 感谢东方红Ⅱ全体船员对本航次提供的帮助.

参考文献

1 乔方利, 王关锁, 赵伟, 等. 2011 年 3 月日本福岛核泄漏物质输运扩散路径的情景模拟和预测. 科学通报, 2011, 56: 887–894

2 Garnier-Laplace J, Beaugelin-Seiller K, Hinton T G. Fukushima wildlife dose reconstruction signals ecological consequences. Environ Sci Technol, 2011, 45: 5077–5078

3 Christodouleas J P, Forrest R D, Ainsley C G, et al. Short-term and long-term health risks of nuclear-power-plant accidents. N Engl J Med, 2011, 364: 2334–2341

4 Tsumune D, Tsubono T, Aoyama M, et al. Distribution of oceanic ^{137}Cs from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant simulated numerically by a regional ocean model. J Environ Radioactiv, 2012, 111: 100–108

5 Buesseler K O, Jayne S R, Fisher N S, et al. Fukushima-derived radionuclides in the ocean and biota off Japan. Proc Natl Acad Sci USA, 2012, 109: 5984–5988

6 Chino M, Nakayama H, Nagai H, et al. Preliminary estimation of release amount of ^{131}I and ^{137}Cs accidentally discharged from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant into the atmosphere. J Nucl Sci Technol, 2011, 48: 1129–1134

7 Bowyer T W, Biegalski S R, Cooper M, et al. Elevated radioxenon detected remotely following the Fukushima nuclear accident. J Environ Radioactiv, 2011, 102: 681–687

8 Manolopoulou M, Vagena E, Syoulos S, et al. Radioiodine and radiocesium in Thessaloniki, Greece due to the Fukushima nuclear accident. J Environ Radioactiv, 2011, 102: 796–797

9 Huh C A, Hsu S C, Lin C Y. Fukushima-derived fission nuclides monitored around Taiwan: Free tropospheric versus boundary layer transport. Earth Planet Sci Lett, 2012, 319-320: 9–14

10 Povinec P P, Aarkrog A, Buesseler K O, et al. ^{90}Sr, ^{137}Cs and ^{239,240}Pu concentration surface water time series in the Pacific and Indian Oceans-WOMARS results. J Environ Radioactiv, 2005, 81: 63–87

11 Aarkrog A, Baxter M S, Bettencourt A O, et al. A comparison of doses from ^{137}Cs and ^{210}Po in marine food: A major international study. J Environ Radioactiv, 1997, 34: 69–90

12 Livingston H D, Bowen V T, Kupferman S L. Radionuclides from Windscale discharge II. Their dispersion in Scottish and Norwegian coastal circulation. J Mar Res, 1982, 40: 1227–1258

13 Buesseler K O, Livingston H D, Sholkovitz E R. ^{239,240}Pu and excess ^{210}Pb inventories along the shelf and slope of the northeast U.S.A. Earth Planet Sci Lett, 1985, 76: 10–22

14 Silverberg N, Nguen H V, Delibrias G, et al. Radionuclide profiles, sedimentation rates and bioturbation in modern sediments of the Lauretian Trough, Gulf of St. Lawrence. Oceanol Acta, 1986, 9: 285–290

15 Donoghue J E, Bricker O P, Olsen C R. Particle-borne radionuclides as tracers for sediment in the Susquehanna river and Chesapeake bay. Estuarine Coast Shelf Sci, 1989, 29: 341–360

16 Olsen C R, Thein I L, Larsen P D, et al. Plutonium, lead-210 and carbon isotopes in the Savanna estuary: Riverborne versus marine sources. Environ Sci Technol, 1989, 23: 1475–1481

17 Nagaya Y, Nakamura K. ^{239,240}Pu and ^{137}Cs in the East China and the Yellow Seas. J Oceanogr, 1992, 48: 23–25

18 Yamada M, Zheng J, Wang Z L. ^{137}Cs, $^{239+240}$Pu and ^{240}Pu/^{239}Pu atom ratios in the surface waters of the western North Pacific Ocean, eastern Indian Ocean and their adjacent seas. Sci Total Environ, 2006, 366: 242–252

19 Aoyama M, Hirose K, Miyao T, et al. Low level ^{137}Cs measurements in deep seawater samples. Appl Radiat Isot, 2000, 53: 159–162

20 Ito T, Povinec P P, Togawa O, et al. Temporal and spatial variations of anthropogenic radionuclides in Japan Sea waters. Deep-Sea Res II, 2003, 50: 2701–2711

21 Ikeuchi Y, Amano H, Aoyama M, et al. Anthropogenic radionuclides in seawater of the Far Eastern Seas. Sci Total Envrion, 1999, 237-238: 203–212

22 UNSCEAR. Sources and Effects of Ionizing Radiation. New York: United Nations, 1993

23 Hsu S C, Huh C A, Chan C Y, et al. Hemispheric dispersion of radioactive plume laced with fission nuclides from the Fukushima nuclear event. Geophys Res Lett, 2012, 39: 1–6

24 Chen C T A. Chemical and physical fronts in the Bohai, Yellow and East China seas. J Marine Syst, 2009, 78: 394–410

25 Nagaya Y, Nakamura K. Artificial radionuclides in the western Northwest Pacific(I): ^{90}Sr and ^{137}Cs in the deep waters. J Oceanogr Soc Jpn, 1981, 37: 135–144

26 Nagaya Y, Nakamura K. ^{239,240}Pu, ^{137}Cs and ^{90}Sr in the central North Pacific. J Oceanogr Soc Jpn, 1984, 40: 416–424

27 Nagaya Y, Nakamura K. Artificial radionuclides in the western Northwest Pacific(II): ^{137}Cs and ^{239,240}Pu inventories in water and sediment column observed from 1980 to 1986. J Oceanogr Soc Jpn, 1987, 43: 345–355

28 Ito T, Aramaki T, Kitamura T, et al. Anthropogenic radionuclides in the Japan Sea: Their distributions and transport processes. J Environ Radioactiv, 2003, 68: 249–267

29 Hirose K, Sugimura Y, Aoyama M. Plutonium and ^{137}Cs in the Western North Pacific: Estimation of residence time of plutonium in surface water. Appl Radiat Isot, 1992, 43: 349–359

30 刘广山, 门武, 纪丽红. 基于镭同位素分布的黄海和东海垂直混合速率计算. 地球物理学报, 2010, 53: 1976–1984

31 门武, 刘广山, 陈敏, 等. 中国东海的 ^{224}Ra. 地球科学, 2011, 36: 999–1008

32 Nozaki Y, Tsubota H, Kasemsupaya V, et al. Residence times of surface water and particle-reactive ^{210}Pb and ^{210}Po in the East China and Yellow seas. Geochim Cosmochim Acta, 1991, 55: 1265–1272

33 Hirose K, Amano H, Baxter M S, et al. Anthropogenic radionuclides in seawater in the East Sea/Japan Sea: Results of the first-stage Japanese-Korean-Russian expedition. J Environ Radioactiv, 1999, 43: 1–13

34 Kasamatsu F, Inatomi N. Effective environmental half-lives of ^{90}Sr and ^{137}Cs in the coastal seawater of Japan. J Geophys Res, 1998, 103: 1209–1217

35 Duran E B, Povinec P P, Fowler S W, et al. ^{137}Cs and $^{239+240}$Pu levels in the Asia-Pacific regional seas. J Environ Radioactiv, 2004, 76: 139–160

36 姚海云, 朱玲, 周滟, 等. 1995~2009 年我国近岸海域海水中放射性核素水平监测. 辐射防护通讯, 2010, 30: 13–17

37 Chen C T A. The Kuroshio intermediate water is the major source of nutrients on the East China Sea continental shelf. Oceanol Acta, 1996, 19: 523–527

38 Jost D T, Gaggeler H W, Balternperger U, et al. Chernobyl fallout in size-fractionated aerosol. Nature, 1986, 324: 22–23

39 石金辉, 张云, 高会旺, 等. 东海大气气溶胶的化学特征及来源. 环境科学学报, 2011, 31: 1750–1757

40 高会旺, 黄美元, 管玉平, 等. 大气中硫污染物的干沉降模式. 环境科学, 1997, 18: 1–4

41 Duce R A, Liss P S, Merrill J T, et al. The atmospheric input of trace species to the world ocean. Glob Biogeochem Cycle, 1991, 5: 193–259

42 Carbo P, Krom M D, Homoky W B, et al. Impact of atmospheric deposition on N and P geochemistry in the southeastern Levantine Basin. Deep-Sea Res, 2005, 52: 3041–3053

43 Spokes L J, Jickells T D. Is the atmosphere really an important source of reactive nitrogen to coastal waters. Cont Shelf Res, 2005, 25: 2022–2035

44 刘毅, 周明煜. 中国东部海域大气气溶胶入海通量的研究. 海洋学报, 1999, 21: 38–45

45 万小芳, 吴增茂, 常志清, 等. 南黄海和东海海域营养盐等物质大气入海通量的再分析. 海洋环境科学, 2002, 21: 14–18

46 朱玉梅, 刘素美. 东海大气湿沉降中营养盐的研究. 环境科学, 2011, 32: 2724–2731

47 Chou M D, Wu C H, Kau W S. Large-scale control of summer precipitation in Taiwan. J Clim, 2011, 24: 5081–5092

48 Buesseler K O, Aoyama M, Fukasawa M. Impacts of the Fukushima nuclear power plants on marine radioactivity. Environ Sci Technol, 2011, 45: 9931–9935

49 Currie L A. Limits for qualitative detection and quantitative determination. Anal Chem, 1968, 40: 586–593

50 Zvara I, Povinec P, Sykora I. Determination of very low levels of radioactivity. Pure Appl Chem, 1994, 66: 2537–2586

51 刘广山, 杨伟锋, 贾成霞, 等. 大体积海水镭同位素现场快速富集与γ谱直接测定. 核技术, 2004, 27: 116–121

52 Inoue M, Kofuji H, Hamajima Y, et al. ^{134}Cs and ^{137}Cs activities in coastal seawater along Northern Sanriku and Tsugaru Strait, north-eastern Japan, after Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. J Environ Radioactiv, 2012, 111: 116–119