

福岛核事故向环境释放的 Pu 研究进展

倪有意¹, 卜文庭¹, 郭秋菊^{1,*}, 胡丹², 许宏²

(1. 北京大学 物理学院 核物理与核技术国家重点实验室, 北京 100871;

2. 浙江省辐射环境监测站, 浙江 杭州 310012)

摘要: 福岛核事故向环境释放的放射性核素中包含了锕系元素 Pu, 其中以极毒组的²³⁹Pu、²⁴⁰Pu和高毒组的²⁴¹Pu为主。本文总结并分析了针对福岛核事故向环境释放的 Pu 的相关研究。据估计, 福岛核事故向环境中排放的²³⁹⁺²⁴⁰Pu 总量约为 10⁹ Bq, 是切尔诺贝利核事故排放量的万分之一。此次事故排放的 Pu 同位素原子比(²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 和²⁴¹Pu/²³⁹Pu)及活度比(A(²³⁸Pu)/A(²³⁹⁺²⁴⁰Pu))明显异于全球沉降值, 可作为事故中 Pu 溯源的判定依据。事故所排放的 Pu 全部来源于核电站 1~3 号反应堆堆芯而非乏燃料池。现有研究报道的数据表明, 在福岛核电站周围 30 km 范围内的陆地环境中存在来自核事故排放的 Pu 污染, 污染相对严重的“热点”区域和该地区与核电站的相对位置没有明显关联, 主要是受地形和降水的影响。而对于人们关心的海洋环境, 来自福岛核事故的 Pu 污染非常小。核事故向海洋中排放的 Pu 相对于核事故前海洋环境中的 Pu 污染水平可忽略不计。

关键词: 福岛核事故; Pu; 同位素原子比

中图分类号: TL732

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2015)10-1899-10

doi: 10. 7538/yzk. 2015. 49. 10. 1899

Plutonium Isotopes Released from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident into Environment

NI You-yi¹, BU Wen-ting¹, GUO Qiu-ju^{1,*}, HU Dan², XU Hong²

(1. *State Key Laboratory of Nuclear Physics and Technology, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China;*

2. *Environmental Radiation Monitoring Center of Zhejiang Province, Hangzhou 310012, China)*

Abstract: On March 11, 2011, a catastrophic tsunami induced by a magnitude 9.0 earthquake caused the terrible Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident, leading to the release of a large amount of radionuclides into the environment. The published studies on plutonium isotopes in the environment after the FDNPP accident were reviewed in this paper. The total atmospheric released amounts of Pu from the FDNPP accident were estimated to be 10⁹ Bq, that is only 1/10 000 of that released from the Chernobyl accident. The Pu isotopes were released from the damaged reactors, not

收稿日期: 2014-04-15; 修回日期: 2014-09-15

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(11275015); 北京大学本科生科研项目资助(J1103206)

作者简介: 倪有意(1992—), 男, 四川宜宾人, 博士研究生, 辐射防护与环境保护专业

* 通信作者: 郭秋菊, E-mail: qjguo@pku.edu.cn

from the spent fuel pools in the FDNPP. The Pu isotopic ratios ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$) and activity ratios of $A(^{238}\text{Pu})/A(^{239+240}\text{Pu})$ were significantly different from that of global fallout, serving as powerful fingerprints for Pu source identification. To date, the plutonium isotopes from the accident in the terrestrial environment within the 30 km zone around the FDNPP site have been widely observed and there are no strong positive correlations between the Pu isotopes contamination levels and the distances from the FDNPP site. The influence of the FDNPP accident on Pu distributions in the marine environment is limited. No detectable Pu contamination from the accident is observed even in the near coastal (5 km off the FDNPP site) marine sediments.

Key words: FDNPP accident; plutonium; isotopic ratio

环境中的 Pu (主要是 ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 和 ^{241}Pu)主要来源于大气层核武器试验、核事故、核动力卫星与潜艇失事等人类活动。其中最主要的来源是 20 世纪 40—80 年代以美国和前苏联为主的有核国家进行的大气层核试验。半个世纪以来,全球共进行了 2 000 多次核试验,其中 543 次为大气层核试验,导致了约 1.1×10^{16} Bq 的 $^{240+239}\text{Pu}$ 被释放到环境中^[1]。这些 Pu 随着大气扩散循环弥散进入对流层和平流层,并以干沉降和湿沉降的方式沉降到地球表面,形成了具有特定同位素原子比的 Pu 本底^[2-3]。大气层核试验结束后,人类核能利用实践活动中发生的核事故也会向环境中排放 Pu。其中影响最大的是 1986 年 4 月发生的前苏联切尔诺贝利(Chernobyl)核事故。在该次事故中,总计有 3.1×10^{13} Bq $^{239+240}\text{Pu}$ 、 1.5×10^{13} Bq ^{238}Pu 和 2.6×10^{15} Bq ^{241}Pu 被释放到环境中^[4]。

隶属于东京电力公司(Tokyo Electric Power Company, TEPCO)的福岛核电站共有 6 个沸水堆机组。事故发生时 1~3 号 3 个反应堆在正常工作,4 号反应堆虽已于 2010 年停堆,但其乏燃料池中存有大量乏燃料。2011 年 3 月 11 日,在距日本东北海岸 130 km 处的北太平洋发生了 9 级地震。地震发生后 1~3 号机组及时停止工作,并启动了应急柴油发电机供电。但地震引起的海啸在地震发生后约 45 min 后到达核电站,引起了包括柴油发电机在内的应急设施的损毁。由于应急设备损毁,无法控制和冷却反应堆,致使堆芯不断加热,诱发了燃料棒外壳的锆合金与水之间的锆-水反应。反应过程中产生的大量氢气从安全壳内泄漏后在厂房内聚集,最终发生爆炸。

随着爆炸的发生,大量挥发性核素如 ^{85}Kr 、 ^{133}Xe 、 ^{131}I 、 ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 被直接排放到大气中。由于福岛核电站地处太平洋西海岸,核事故产生的放射性核素不仅随着爆炸和挥发性气体进入大气,还通过放射性废水泄漏或直接排放到海洋中^[5]。

在福岛核事故向环境排放的放射性核素中,除 ^{131}I 、 ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 和 ^{90}Sr 等被大量测量研究的裂变产物外,锕系元素 Pu 也逐渐受到公众的关注。首先因为事故排放的 Pu 总量能直接反映堆芯的损毁情况,同时也是事故评级的重要参考依据;其次,环境中 Pu 的水平及其分布也与公众的食品安全和核安全密切相关。Pu 通过 ^{238}U 吸收中子在反应堆中大量生成,而且在福岛核电站 3 号机组中作为 MOX 燃料的重要组成成分被直接使用,一旦释放到环境中,其放射性和强化学毒性会对人类健康造成威胁。尤其是半衰期较短的 $^{241}\text{Pu}(T_{1/2}=14.4\text{ a})$,核事故释放后初期 ^{241}Pu 在环境中具有较强放射性,其 β 衰变产物 ^{241}Am 的半衰期为 432.7 a,也会成为环境中的另一个 α 放射源。因此需要对环境中 Pu 的比活度及其同位素原子比进行长期监测和研究,以增强公众对核安全的信心^[6]。

福岛核事故发生后,不同学者针对事故排放的 Pu 进行了研究和报道。为全面和直观地反映福岛核事故中 Pu 的排放情况以及环境中 Pu 的水平与分布,本文重点就以下几个问题对上述研究进行总结和分析:1) 陆地环境中的 Pu 分布;2) 事故释放的 Pu 溯源;3) 福岛核事故与切尔诺贝利核事故的对比;4) 福岛核事故对海洋环境的影响。

1 环境样品中 Pu 的测量

福岛核事故后研究 Pu 时,主要采集空气、土壤、海底沉积物、海水、生物、落叶等样品。Pu 的测量方法主要有传统的 α 能谱法、液闪测量法及近 20 年发展起来的质谱方法。 α 能谱法操作简单,设备要求不高,在对福岛核事故排放 Pu 的研究中常被用于检测 Pu 的活度分布。事故发生后,Yamamoto 等^[7]就利用该方法分析了福岛周边的土壤、落叶和落下灰中 Pu 的分布情况。

常用的质谱法有电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS)、加速器质谱法(AMS)和热电离质谱法(TIMMS)。与 α 能谱法相比,质谱法所需时间短、探测限低,一般用于精确测量 Pu 的同位素原子比。Schneider 等^[8]在福岛核事故发生后的前期调查中用 AMS 测量了土壤样品和植物叶片中 Pu 同位素原子比。最近 Shinonaga 等^[9]也利用该方法分析了在核电站以南的东海村采集的空气样品中 Pu 同位素原子比。

相较于 AMS 和 TIMMS,ICP-MS 造价低,易操作,因此 ICP-MS 测量也成为研究环境中痕量水平 Pu 的主要方法。Sakaguchi 等^[10]在事故后利用 ICP-MS 对核电站周围淡水(河水和稻田灌溉水)的受污染情况进行了研究。Zheng 等^[11]在事故发生后对福岛核电站 30 km 外海域海底沉积物中 Pu 的研究中也采用了该方法,并给出了详细的样品前处理流程。ICP-MS 应用的主要困难来自同量异位素及多原子离子的干扰。对于超铀元素 Pu 的 ICP-MS 分析,来自于同量异位素的干扰较小,最大的干扰来自于²³⁸U⁺拖尾及铀氢化合物(²³⁸UH⁺和²³⁸UH₂⁺)的影响。这是因为环境中 U 的含量远高于 Pu,例如海水样品中 U 的含量较 Pu 的含量高 9~10 个数量级。本研究小组与日本放射线医学综合研究所合作,开发了针对大量海底沉积物和小体积海水样品中 Pu 的分析方法^[12-13]。这些方法中,U 的去污因子提高到 10⁶ 以上,在使用超过 10 g 的沉积物样品来分析低含量²⁴¹Pu 的同时,将 U 对 Pu 的干扰降到可忽略的水平。得益于 ICP-MS 方法的高灵敏度,其中的海水 Pu 分析方法能测量 20 L 海水样品中的 Pu 含量,所需样品量较 α 谱仪方法

减少了 10 倍以上。这些方法已应用于分析福岛核电站外围海底沉积物和海水中 Pu 的分布,并以此来评价福岛核事故可能存在的对海洋环境的 Pu 污染。

2 福岛陆地环境 Pu 污染

2.1 环境样品中 Pu 活度分布

1) 表层土壤和落叶层中的分布

在对福岛核事故排放的 Pu 的前期研究中,环境样品中²⁴¹Pu 和²³⁹⁺²⁴⁰Pu 的比活度 $A(^{241}\text{Pu})$ 和 $A(^{239+240}\text{Pu})$ 是判断事故 Pu 排放的两个重要依据。福岛核事故向环境排放的 Pu 的相关研究结果列于表 1,其中的土壤为 0~5 cm 表层土壤。

由表 1 可见,采样地区²³⁹⁺²⁴⁰Pu 比活度均很低,而 Zheng 等^[15]在福岛核电站周围 20~30 km 距离范围内的 3 个落叶层样品中测得了很高的²⁴¹Pu 比活度(4.52~34.8 mBq/g)。日本本土²⁴¹Pu 主要源于 20 世纪大气层核试验后的全球沉降,由于²⁴¹Pu 的半衰期很短(14.4 a),因此在福岛核事故发生前日本土壤中的²⁴¹Pu 含量很低。经衰变修正到 2011 年 3 月 15 日,日本土壤中²⁴¹Pu 与²³⁹⁺²⁴⁰Pu 的活度比($A(^{241}\text{Pu})/A(^{239+240}\text{Pu})$)为 1.2^[3]。将表 1 中 Zheng 等^[15]测量的落叶层的²⁴¹Pu 的比活度与²³⁹⁺²⁴⁰Pu 的比活度相比可看出,该地区的 $A(^{241}\text{Pu})/A(^{239+240}\text{Pu})$ 约为 100,高出本底值 1.2 约两个数量级,这也是福岛核事故向环境中排放了 Pu 的有力证据之一。

如表 1 所列,即使在相同采样区域,落叶层和表层土壤中的²³⁹⁺²⁴¹Pu 比活度也会在一定范围内变化。通过比较两种样品中的²³⁹⁺²⁴⁰Pu 比活度可知,部分采样点落叶层中²³⁹⁺²⁴⁰Pu 比活度高于表层土壤。这是因为在有落叶层的区域,Pu 沉降到地面时首先附着到表层土壤之上的落叶层中。随着时间的延长,落叶层中的 Pu 会向土壤迁移,但这个过程缓慢而不彻底,因此在采样时落叶层中来源于福岛核事故的 Pu 只有少部分转移到了表层土壤中,使得²³⁹⁺²⁴⁰Pu 比活度在落叶层中较高。另外也有部分采样区域表层土壤中²³⁹⁺²⁴⁰Pu 比活度高于落叶层,这可能是区域性大量降雨冲刷落叶层,加速 Pu 向土壤转移所致。

表 1 福岛核电站周围土壤和落叶中 Pu 的分布
Table 1 Plutonium distribution in soil and litter samples around FDNPP

采样地点	距核电站位置	样品类型	$A(^{239+240}\text{Pu})/(\text{mBq} \cdot \text{g}^{-1})$	$A(^{238}\text{Pu})/A(^{239+240}\text{Pu})$	$A(^{241}\text{Pu})/(\text{mBq} \cdot \text{g}^{-1})$	文献
Minamisoma City	北 10~30 km	土壤	0.022~0.434	0.043~0.63	—	[7]
		落叶层	0.086~0.657	0.57~1.57		
Iitate Village	西北 30~50 km	土壤	0.005~0.540	0.029~0.17	—	[7]
		落叶层	0.174~1.793	1.53~2.26		
Iitate Village	西北 25~40 km	土壤	0.007 6~0.068 4	0.088~1.324	—	[14]
Namie Town	西北 10~20 km	土壤	0.019~1.714	0.035~1.00	—	[7]
		落叶层	0.235~2.954	0.73~2.63		
Futaba Town	西北 0~10 km	土壤	0.003~0.290	0.060~1.15	—	[7]
		落叶层	0.042~1.141	0.51~2.87		
Okuma Town	西南 0~5 km	土壤	0.023~1.294	0.033~1.06	—	[7]
		落叶层	0.532~1.555	0.58~3.19		
South areas	南 6~50 km	土壤	0.008~0.537	0.024~0.76	—	[7]
		落叶层	0.016~0.051	0.26~1.17		
Okuma Town	周围 2~5 km	土壤	0.002 4~0.178 0	0.028~0.103	—	[14]
J-Village	南 20 km	土壤	0.059±0.004	—	4.52±0.56	[15]
Namie Town	西北 26 km	土壤	1.163±0.033	—	—	[15]
		落叶层	0.329±0.011		34.8±2.7	
Iitate Village	西北 32 km	土壤	1.400±0.023	—	—	[15]
		落叶层	0.184±0.011		20.2±4.2	

2) 空气中的 Pu 分布

Shinonaga 等^[9]测量了福岛核电站以南 120 km 的东海村地区空气中²³⁹Pu、²⁴⁰Pu、²⁴¹Pu 的活度浓度。测量结果显示,空气中²³⁹Pu、²⁴⁰Pu、²⁴¹Pu 的活度浓度分别为 1.3×10^{-7} 、 1.5×10^{-7} 、 2.5×10^{-5} Bq/m³,空气中²⁴¹Pu 的活度浓度约较²³⁹⁺²⁴⁰Pu 活度浓度大 2 个数量级,这与表 1 中 Zheng 等^[15]在福岛核电站周围 20~30 km 范围内测量的 3 个落叶层样品的结果相符,说明这些地方也受到了来自于福岛核事故排放的 Pu 的影响。

²³⁹⁺²⁴⁰Pu 比活度的空间分布也不均匀,在个别地区会出现比活度较大、污染较严重的所谓“热点”区域。如表 1 中的 Okuma Town 和 Namie Town,这两个地区落叶层中²³⁹⁺²⁴⁰Pu 的比活度分别达到了 0.532 mBq/g 和 0.235 mBq/g,

是其他部分地区如南方地区(²³⁹⁺²⁴⁰Pu 的比活度为 0.016 mBq/g)的 10 倍以上。这些放射性“热点”区域的分布也在对 Cs 的监测结果中得到印证。大量的文献^[16-18]报道表明,在福岛核电站西北方向 50 km 内的带状区域内观测到了异常高的¹³⁷Cs 和¹³⁴Cs 沉积通量,而表 1 中的 Okuma Town 和 Namie Town 也位于该区域内。

“热点”的出现与其到核电站的距离之间并没有呈现出明显的相关性,而是主要受降水和地形的影响^[19]。放射性烟尘随着风向迁徙,大量沉积在下风向的山谷地区。同时,伴随降水而发生的湿沉降加速了放射性物质的沉积过程,直接造成放射性“热点”的形成。Katata 等^[19]报道了 3 月 15 日上午 9 点起 24 h 内福岛核电站周围的降水和风向,证实从 3 月 15 日下

午起,福岛核电站西北方向逐渐开始降水,并且有西北风出现。当日的气象条件致使事故释放的放射性物质在核电站西北方向区域性沉积,导致“热点”的形成。

2.2 福岛核事故后 Pu 同位素比

相比于 $^{239+240}\text{Pu}$ 的比活度, ^{238}Pu 与 $^{239+240}\text{Pu}$ 的活度比($A(^{238}\text{Pu})/A(^{239+240}\text{Pu})$)和 ^{240}Pu 与 ^{239}Pu 同位素原子比($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$)能提供更详细的信息,如核事故中燃料燃烧情况、Pu 来源甄别以及 Pu 在环境中的行为等。在福岛核事故之前,日本环境中的 Pu 主要来自于全球沉降。20 世纪 90 年代末,Kelly 等^[3]对不同纬度的 Pu 进行测量和加权平均得到北纬 $30^\circ\sim 70^\circ$ 的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 为 0.180 ± 0.007 , $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 为 0.03;Zhang 等^[20]测量了日本气象研究所 1963—1979 年间采集的日本本土落下灰中的 Pu 的同位素信息,得到福岛核事故之前,日本本底 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 为 $0.191\ 5\pm 0.003\ 0(n=5)$,与同纬度的平均值相近。

Nishihara 等^[21]利用 ORIGEN2 模型计算得到福岛核事故排放的 $A(^{238}\text{Pu})/A(^{239+240}\text{Pu})$ 为 2.3。Zheng 等^[15]测量得出福岛核事故排放的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 为 0.323~0.330。所以无论从活度比还是同位素原子比来看,福岛核事故产生的 $A(^{238}\text{Pu})/A(^{239+240}\text{Pu})$ 和 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 的值均显著高于全球沉降。对于采集到的土壤样品,其中的 Pu 除来源于全球沉降的本底外,还可能来自于福岛核事故。因此即使在样品 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度较低的情况下,仍可通过测量相关活度比和同位素原子比来判断所研究区域是否存在来自于福岛核事故的 Pu,从而大致得出核事故的污染范围和污染程度。

从现有的研究结果来看,在核电站周围 30 km 内陆地上大部分样品中均检测到了高出全球沉降 0.03 的 $A(^{238}\text{Pu})/A(^{239+240}\text{Pu})$,说明至少在该范围内的日本陆地受到了来自福岛核事故排放的 Pu 污染。而核电站以南 120 km 处的东海村地区,气溶胶中异常大的 $A(^{241}\text{Pu})/A(^{239+240}\text{Pu})$ 说明了该地也受到了核事故的 Pu 污染^[9]。对于 120 km 范围内是否普遍存在污染的问题,还需要更多的布点和测量数据才能得出进一步的结论。另一方面,从 Yamamoto 等^[7]的研究结果中可看出,对于落叶层和表层

土壤的 $A(^{238}\text{Pu})/A(^{239+240}\text{Pu})$,落叶层中的值要显著高于表层土壤的值。这是因为核事故之前表层土壤中的 Pu 来源于全球沉降,而落叶层中几乎没有 Pu。因此在事故发生后落叶层中检测到的 Pu 可认为全部来源于福岛核事故。落叶层上来自于福岛核事故的 Pu 向表层土壤中迁移的过程,也是高 $A(^{238}\text{Pu})/A(^{239+240}\text{Pu})$ 和低 $A(^{238}\text{Pu})/A(^{239+240}\text{Pu})$ 混合的过程。这个过程的结果是 Pu 的“稀释”。所以检测到的表层土壤中的 $A(^{238}\text{Pu})/A(^{239+240}\text{Pu})$ 会显著低于落叶层上的 $A(^{238}\text{Pu})/A(^{239+240}\text{Pu})$ 。

另外,福岛核事故排放的 Pu 同位素原子比信息,还可作为事故中 Pu 溯源的依据。与具有唯一确定释放源的切尔诺贝利核事故不同,福岛核事故发生时,有 3 个反应堆正在运行,但事故发生后 4 号反应堆也出现燃烧现象,因此确认放射性核素具体来自哪个反应堆以及是否有乏燃料池的释放是核事故评价的一个关键问题。福岛核事故发生时,1~3 号反应堆堆芯约有 256 t 核燃料^[6],而 4 号堆的燃料池中还存放有多达 1 331 t 乏燃料,是 1~4 号乏燃料池中最大的一个^[22]。因此,福岛核事故排放的 Pu 来源可能有两个:1~3 号反应堆堆芯或 1~4 号乏燃料池。Schwantes 等^[22]、Kirchner 等^[23]以及日本原子能机构^[21]通过计算给出了福岛核事故中 1~3 号反应堆堆芯和 1~4 号反应堆乏燃料池中 Pu 的同位素原子比与活度比。环境检测结果中,Shinonaga 等^[9]测量的空气样品、Zheng 等^[15]测量的落叶层样品以及 Yamamoto 等^[7]测量的黑色物质(主要是降落灰)均可将福岛核事故作为所测量样品中唯一的 Pu 来源。与土壤样品不同的是,这 3 种样品中的 Pu 均没有受到全球沉降的稀释,可认为是核事故排放的实际值。将上述值作为环境样品测量结果与模拟计算得到的理论值进行比较,结果显示,无论是 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$,还是 $A(^{238}\text{Pu})/A(^{239+240}\text{Pu})$ 均接近于 1~3 号反应堆堆芯值,而显著低于乏燃料池中的相关值(图 1)。 $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 虽然较堆芯的理论值小,但与乏燃料池中的理论值相比仍然相去甚远。另外 Zheng 等^[6]也认为,堆芯和乏燃料池中的 $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 可能被高估了。因此从来源看,在此次核事故中排放到环境中的 Pu 来源于 1~3 号反应堆

堆芯,而非来自于乏燃料池^[6]。另外,Merz等^[24]和Komori等^[25]测量了事故发生后环境中的 $A(^{134}\text{Cs})/A(^{137}\text{Cs})$ 并与堆芯和乏燃料池中的理论值进行了比较,依然得到与Zheng等相似的结论,即放射性核素来自于1~3号反应堆堆芯而非4号乏燃料池。

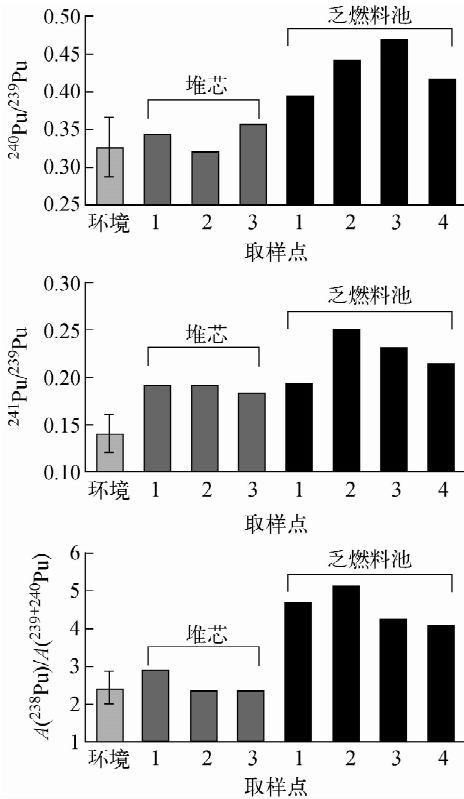


图1 Pu环境测量值与堆芯和乏燃料池理论值的对比

Fig. 1 Comparison of Pu observed in environment samples and reactor cores or spent fuel pools

2.3 福岛核事故空气中Pu排放总量估计

Zheng等^[6]测量了核电站20~30 km范围内的森林落叶层和土壤中的 $A(^{137}\text{Cs})/A(^{239+240}\text{Pu})$ 。鉴于Pu在土壤-植物的迁徙因子很小($4 \times 10^{-3} \sim 9 \times 10^{-6}$),因此对于落叶层样品,可认为其中不含来源于全球沉降的Pu,测量得到的Pu全部来自于福岛核事故。基于Pu和Cs在环境中行为规律近似的假设,Zheng等^[15]结合实际测量得到的 $A(^{137}\text{Cs})/A(^{239+240}\text{Pu})$ 和Stohl等^[26]估计的福岛核事故中 ^{137}Cs 排放总量,估算出福岛核事故向空气中排放的 $^{239+240}\text{Pu}$ 总量为 $1.0 \times 10^9 \sim 2.4 \times 10^9$ Bq,略

小于METI^[27]模拟计算得到的 6.4×10^9 Bq。利用 $^{239+240}\text{Pu}$ 总量,Zheng等计算出福岛核事故空气中 ^{238}Pu 的排放量为 $2.9 \times 10^9 \sim 6.9 \times 10^9$ Bq, ^{241}Pu 的排放量为 $1.1 \times 10^{11} \sim 2.6 \times 10^{11}$ Bq,分别较METI模拟计算的 ^{238}Pu 总量 1.9×10^{10} Bq和 ^{241}Pu 总量 1.2×10^{12} Bq小1个数量级。另外,Yamamoto等^[7]也计算了福岛核事故排放的Pu,得到的事故中 ^{238}Pu 和 $^{239+240}\text{Pu}$ 的排放量分别为 6.1×10^9 Bq和 3.5×10^9 Bq。与切尔诺贝利核事故相比,福岛核事故排放的Pu总量较少,METI^[27]、Zheng等^[15]以及Yamamoto等^[7]计算得到的福岛核事故Pu的排放量与切尔诺贝利核事故的比较示于图2。其中切尔诺贝利核事故Pu的排放量数据来源于Kruger等^[28]、IAEA^[29]、Harrison等^[30]和Devell等^[31]。

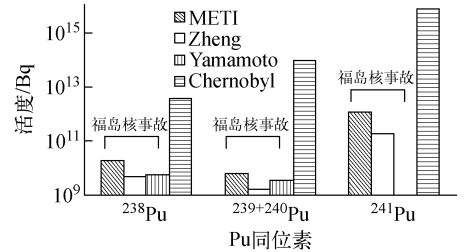


图2 福岛核事故与切尔诺贝利核事故Pu排放量的比较

Fig. 2 Comparison of Pu release amounts from FDNPP accident and Chernobyl accident

从不同研究得到的福岛核事故的Pu排放量来看,福岛核事故中Pu排放量约为切尔诺贝利核事故排放总量的万分之一,这与反应堆结构和事故过程等因素有关。切尔诺贝利核电站使用的是老式石墨慢化沸水堆,没有自调自稳定性,而且反应堆外也无安全壳的保护。在工人操作失误的情况下发生了堆芯的爆炸,事故发生后大量放射性物质不受限制地排放到环境中。相比之下,福岛核电站采用的是重水慢化沸水堆,功率具有自稳定性,最重要的是在反应堆外有一层安全外壳,事故中堆芯发生了熔化,但并未爆炸。发生的氢气爆炸也只是在安全壳和厂房之间,因此大量的放射性物质都被限制在了安全壳内,使得释放到环境中的放射性远小于切尔诺贝利核事故。

3 海洋环境中可能存在的来自福岛核事故的 Pu 污染

福岛核事故向空气中释放了大量放射性核素,其中超过 70% 最终沉降到了海洋环境中^[32],另外数以万吨计的放射性污染水泄漏或被直接排放到了太平洋^[5]。因海产品在日本的食物消费中占据着无可替代的重要地位,因此核事故后海洋环境的放射性污染水平成为公众普遍关注的问题。

Kim 等^[33]测量了核事故发生 1 到 3 个月 after 韩国附近海域海水中的 Pu 含量,结果没有发现异于事故前水平的 Pu 分布。Sakaguchi 等^[10]用 AMS 分析了福岛核电站外围 50 km 的西太平洋的两个海水样品,结果表明,无论是²³⁹⁺²⁴⁰Pu 的总比活度还是²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 均与核事故前日本文部科学省(MEXT)在同区域监测到的分布水平相当^[34],这一结论在 Bu 等^[13]的研究中被进一步证实。Pu 是一种粒子吸附性较强的元素,其在海洋环境中的沉积物-海水分配系数(K_d)达 10^5 ^[35]。因此福岛核事故一旦向海洋中释放了 Pu,这些 Pu 将会快速与海水中的悬浮粒子结合,从而沉降到沉积物中。Zheng 等^[11]和 Bu 等^[36]研究了核事故后福岛 30 km 以外海域中的 Pu 分布及同位素原子比,结果显示,Pu 在沉积物中的活度并无异常,虽然在沉积物中观察到了明显高于全球沉降(²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 为 0.18)的²⁴⁰Pu/²³⁹Pu(>0.23),但²⁴¹Pu/²³⁹Pu(0.001 2~0.001 6)却较福岛核事故释放的理论值(>0.1)低两个数量级,因此判定这些沉积物没有受到来自福岛核事故的污染^[12]。日本东海岸海洋环境受美国太平洋核试验的影响,洋流将美国太平洋核试验场(马绍尔群岛)较高²⁴⁰Pu/²³⁹Pu(0.30~0.36)的 Pu 传输到了西太平洋及周边海域,形成了在福岛核事故前已广泛分布的高²⁴⁰Pu/²³⁹Pu^[37-38]。

Periáñez 等^[39]模拟了 Pu 在福岛外围海洋环境中的迁移行为。模拟结果显示,如果福岛核事故存在向海洋环境中的 Pu 排放,排放的 Pu 将沉积在福岛外围 30 km 以内的海域。因此为了更全面地评价福岛核事故可能导致的海洋环境的 Pu 污染,对于福岛近岸海洋环境中的 Pu 污染状况的研究尤为必要。最近,本研究小组与日本放射线医学综合研究所合

作,分析了福岛周边 30 km 内(最近 5 km)海域沉积物中的²³⁹Pu、²⁴⁰Pu 和²⁴¹Pu 的分布^[40],结果发现 30 km 以内海域中的 Pu 分布与 30 km 以外海域的结果相似,没有观测到来自福岛核事故的 Pu 污染。全球沉降与美国太平洋核试验仍然是该区域 Pu 污染的两个主要来源。

4 结论与展望

1) 从 Pu 的来源来看,福岛核事故向环境中排放的 Pu 全部来自于 1~3 号反应堆堆芯而不是乏燃料池。对环境中 Pu 和 Cs 的同位素信息的测量结果均表明 1~3 号反应堆的损坏导致了放射性核素向环境释放。作为重要的同位素溯源指标之一,Pu 的同位素组成信息在福岛核事故 Pu 来源鉴别上发挥了重要作用。

2) 模拟计算结合实测数据估算得到的福岛核事故排放的²³⁹⁺²⁴⁰Pu 总量约为 10^9 Bq,是切尔诺贝利核事故排放量的万分之一。

3) 尽管福岛核事故后环境中的²³⁹⁺²⁴⁰Pu 的比活度很低,但在核电站周围陆地环境中仍检测到了来源于核事故的 Pu。大量的测量数据表明,福岛核电站周围 30 km 范围内的陆地受到了来自核事故的 Pu 污染。陆地 Pu 的空间分布也不均匀,放射性较高的“热点”区域的形成主要是受地形和降水的影响,而 3 月 15 日下午开始的核电站 Pu 排放则是这些地区 Pu 的主要来源。空气监测结果显示,福岛核电站以南 120 km 处的东海村地区也受到了来自福岛核事故的 Pu 污染,但由于数据密度低,对于核电站 120 km 范围内的污染情况目前还不能得出详细结论。

4) 虽然福岛核事故排放的绝大部分 Pu 进入到了海洋环境中,但由于排放的总量小,因此不论在核电站周围的海水样品还是海底沉积物样品中均没有检测到异常的 Pu 同位素原子比。对于福岛核电站周围的海洋环境,全球沉降与美国太平洋核试验仍是该区域 Pu 污染的两个主要来源,来源于福岛核事故的 Pu 污染水平可忽略不计。

福岛核事故发生后,与针对¹³⁷Cs 等核素的研究相比,有关 Pu 的研究数量少、数据密度低。为得到更为详尽 Pu 污染信息,可适当加

大测量范围和采样密度,从而提高数据的可信度。另一方面,事故排放到空气中的Pu会随着大气进行扩散循环,因此可利用高灵敏度的质谱分析仪对事故排放的Pu的长距离输运过程进行系统研究。放射性核素从核事故释放到环境中后会迁徙进入作物,通过食物链最终被人体吸收。稻米是日本的主食,因此进行锕系元素土壤-水稻迁徙因子的研究对于调查和评估核事故发生后锕系元素的污染所造成的公众放射剂量的增加有着非常重要的意义。除Pu外,对于事故向环境排放的其他锕系元素如 ^{241}Am 、 ^{237}Np 等也有待进行相应研究。

日本福岛核事故发生以后,从基于Pu的相关研究过程可看出,测量核电站周围Pu的比活度、同位素原子比等信息,建立一个有效可靠的Pu本底数据库,对于可能发生的核事故的影响评价有重要的参考作用。我国核电事业起步时间虽然较晚,但发展速度快,目前正逐渐迎来核电建设的高潮期。但目前针对我国环境中Pu的研究开展得非常有限,我国土壤和近海海底沉积物中Pu的相关数据极少,基本处于空白状态。与 ^{137}Cs 等半衰期短(30 a)的核素相比,针对我国环境尤其是核电设施周围环境中Pu的研究,不仅能提供更加长久可靠的本底信息,而且对核事故发生后事故的污染评价具有重要的参考价值。这是因为自禁止核试验以来,环境中的Pu来源单一、明确。作为长半衰期核素,环境中的 $^{239}\text{Pu}(T_{1/2}=24\ 110\ \text{a})$ 和 $^{240}\text{Pu}(T_{1/2}=6\ 563\ \text{a})$ 在没有偶发性Pu来源(如核事故)加入的情况下能在较长时间内保持较稳定的同位素原子比,相比同样作为环境示踪核素的 ^{137}Cs 来说更容易溯源。因此,不论是核电设施建设的前期环境评价还是对可能出现的核事故的安全评价,都亟需进行系统而全面的Pu测量和研究,建立并完善我国环境中的Pu本底数据库。

参考文献:

[1] Exposures and effects of the Chernobyl accident [R]. New York: United National Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000.

[2] KREY P W, HARDY E P, PACHUCKI C, et

al. Mass isotopic composition of global fallout plutonium in soil[M]//Transuranium Nuclides in the Environment. Vienna: IAEA, 1976.

- [3] ELLEY J M, BOND L A, BEASLEY T M. Global distribution of Pu isotopes and ^{237}Np [J]. Science of the Total Environment, 1999, 237-238: 483-500.
- [4] STEINHAUSER G, ALEXANDER B, JOHN-SO T E. Comparison of the Chernobyl and Fukushima nuclear accidents: A review[J]. Science of the Total Environment, 2014, 470: 800-817.
- [5] 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]. Journal of Environmental Radioactivity, 2011, 111: 100-108.
- [6] ZHENG J, KEIKO T, SHIGEO U. Release of plutonium isotopes into the environment from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident: What is known and what needs to be known[J]. Environmental Science & Technology, 2013, 47(17): 9 584-9 595.
- [7] YAMAMOTO M, SAKAGUCHI A, OCHIAI S, et al. Isotopic Pu, Am and Cm signatures in environmental samples contaminated by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident [J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2014, 132: 31-46.
- [8] SCHNEIDER S, WALTHER C, BISTER S, et al. Plutonium release from Fukushima Daiichi fosters the need for more detailed investigations [J]. Scientific Reports, 2013, 3. DOI: 10.1038/Srep02988.
- [9] SHINONAGA T, STEIER P, LAGOS M, et al. Airborne plutonium and non-natural uranium from the Fukushima DNPP found at 120 km distance a few days after reactor hydrogen explosions[J]. Environmental Science & Technology, 2014, 48: 3 808-3 814.
- [10] SAKAGUCHI A, KADOKURA A, STEIER P, et al. Isotopic determination of U, Pu and Cs in environmental waters following the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident[J]. Geochemical Journal, 2012, 46(4): 355-360.
- [11] ZHENG J, AONO T, UCHIDA S, et al. Distribution of Pu isotopes in marine sediments in the

- Pacific 30 km off Fukushima after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident[J]. *Geochemical Journal*, 2012, 46(4): 361-369.
- [12] BU W T, ZHENG J, GUO Q J, et al. A Method of measurement of ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu in high U content marine sediments by sector field ICP-MS and its application to Fukushima sediment samples[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48: 534-541.
- [13] BU W T, ZHENG J, GUO Q J, et al. Ultra-trace plutonium determination in small volume seawater by sector field inductively coupled plasma mass spectrometry with application to Fukushima seawater samples[J]. *Journal of Chromatography A*, 2014, 1 337: 171-178.
- [14] YAMAMOTO M, TAKADA T, NAGAO S, et al. An early survey of the radioactive contamination of soil due to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, with emphasis on plutonium analysis[J]. *Geochemical Journal*, 2012, 46: 341-353.
- [15] ZHENG J, TAGAMI K, WATANABE Y, et al. Isotopic evidence of plutonium release into the environment from the Fukushima DNPP accident [J]. *Scientific Reports*, 2012, 2: 304.
- [16] YOSHIDA N, YOSHIO T. Land-surface contamination by radionuclides from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident[J]. *Elements*, 2012, 8: 201-206.
- [17] MEXT, DOE. Ministry of education, culture, sports, science and technology of Japan and U. S. Department of Energy [EB/OL]. [2011] (2014). http://radioactivity.mext.go.jp/en/contents/5000/418_2/24/1304797_0708e.pdf.
- [18] KINOSHITA N, SUEKI K, SASA K, et al. Assessment of individual radionuclide distributions from the Fukushima nuclear accident covering central-east Japan[C]// *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*. [S. l.]: [s. n.], 2011.
- [19] KATATA G, TERADA H, NAGAI H, et al. Numerical reconstruction of high dose rate zones due to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2011, 111: 2-12.
- [20] ZHANG Y S, ZHENG J, YAMADA M, et al. Characterization of Pu concentration and its isotopic composition in a reference fallout material [J]. *Science of the Total Environment*, 2010, 408: 1 139-1 144.
- [21] NISHIHARA K, IWAMOTO H, SUYAMA K. Estimation of fuel compositions in Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant[R]. Japan: Japan Atomic Energy Agency, 2012.
- [22] SCHWANTES J M, ORTON C R, CLARK R A. Analysis of a nuclear accident: Fission and activation product releases from the Fukushima Daiichi nuclear facility as remote indicators of source identification, extent of release, and state of damaged spent nuclear pool[J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, 46: 8 621-8 627.
- [23] KIRCHNER G K, BOSSEW P, de CORT M. Radioactivity from Fukushima Daiichi in air over Europe, Part2: What can it tell us about the accident? [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2012, 114: 35-40.
- [24] MERZ S, STEINHAUSER G, HAMADA N. Anthropogenic radionuclides in Japanese food: Environmental and legal implications[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47: 1 248-1 256.
- [25] KOMORI M, SHOZUGAWA K, NOGAWA N, et al. Evaluation of radioactive contamination caused by each plant of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station using $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio as an index[J]. *Bunseki Kagaku*, 2013, 62(6): 475-483.
- [26] STOHL A, SEIBERT P, WOTAWA G, et al. Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant: Determination of source term, atmospheric dispersion, and deposition[J]. *Atmos Chem Phys Discuss*, 2011, 11: 28 319-28 394.
- [27] METI. Data on the amount of released radioactive materials[EB/OL]. [2011]. <http://www.meti.go.jp/press/2011/10/20111020001/20111020001.pdf>(accessed2012. 1. 26).
- [28] KRUGER F W, ALBRECHT L, SPODEN E, et al. Der ablauf des reaktorunfalls tschernobyl 4 und die weitraumige verfrachtund des freigesetzten materials: Neuere erkenntnisse und ihre bewertund in zehn jahre nach tschernobyl, eine bilanz, gustav fisher [M]. Stuttgart, Germany: [s.

- n.], 1996: 3-22.
- [29] IAEA, International Nuclear Safety Advisory Group. Summary report on the post-accident review meeting on the chernobyl accident, IAEA Safety Series No. 75-INSAG-1[R]. Vienna: IAEA, 1986.
- [30] HARRISON R M, WARNER S F. Atmospheric pathways in SCOPE50, radioecology after chernobyl, biogeochemical pathways of artificial radionuclides[M]. Chichester, UK: [s. n.], 1993: 55-100.
- [31] DEVELL L, GUNTAY S, POWERS D A. The chernobyl reactor accident source term: Development of a consensus view[R]. Paris: Organization for Economic Co-Operation and Development (OECD), 1995.
- [32] YOSHIDA N, KANDA J. Tracking the Fukushima radionuclides[J]. *Science*, 2012, 336: 1 115-1 116.
- [33] KIM C K, BYUN J I, CHAE J S, et al. Radiological impact in Korea following the Fukushima nuclear accident [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2012, 111: 70-82.
- [34] MEXT. Environmental radiation database [EB/OL]. (2014). [http://www.kankyo-hoshano.go.jp/08/ers lib/ers abs53. pdf](http://www.kankyo-hoshano.go.jp/08/ers/lib/ers_abs53.pdf).
- [35] IAEA. Sediment distribution coefficients and concentration factors for biota in the marine environment[R]. Vienna: IAEA, 2004.
- [36] BU W T, ZHENG J, AONO T, et al. Vertical distributions of plutonium isotopes in marine sediment cores off the Fukushima coast after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident [J]. *Biogeosciences*, 2013, 10: 2 497-2 511.
- [37] BUESSELER K O. The isotopic signature of fallout plutonium in the North Pacific[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 1997, 36 (1): 69-83.
- [38] YAMADA M, ZHENG J, WANG Z L. ¹³⁷Cs, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu and ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu atom ratios in the surface waters of the Western North Pacific Ocean, Eastern Indian Ocean and their adjacent seas[J]. *Science of the Total Environment*, 2006, 366 (1): 242-252.
- [39] PERIÁÑEZ R, SUH K S, MIN B I. Should we measure plutonium concentrations in marine sediments near Fukushima? [J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2013, 298(1): 635-638.
- [40] BU W T, FUKUDA M, ZHENG J, et al. Release of Pu isotopes from the Fukushima accident to the marine environment was negligible [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48: 9 070-9 078.