



海洋人工放射性研究简述

李培泉

(中国科学院海洋研究所)

海洋人工放射性研究已有38年的历史。由于原子能事业的迅速发展,这一领域的工作已成为海洋学重要研究内容之一。开展海洋放射性研究,对于海洋环境保护、同位素地球化学、制订海洋废物排放标准、核能设施的建造等有关问题,都有重要的意义。本文试就海洋人工放射性研究的一些主要内容、成果及其发展趋势作一简述。

主要内容和成果

1. 人工放射性同位素在海水、海洋生物和海洋沉积物中的含量、分布和变化规律研究

海洋人工放射性研究,始终以探索原子武器或其它核能设施对海洋的污染为其主要目标。几十年来,作了大量调查、积累了丰富的资料。如,基本上摸清了海洋环境中各种介质的核素浓度和时、空变化规律。总的看来,严重的污染出现在1958—1964年之间。从1964年之后,由于大规模核试验的停止而呈现逐年下降的趋势。从污染的海区来看,几乎所有海区都不同程度的存在着人工同位素,但最严重的是核试验区。如太平洋比基尼和安尼维托克岛及其附近海区。这里的海水、生物的放射性曾增加了数千数万、甚至几十万倍。然而,由于海水的巨大稀释扩散能力,该区严重的污染并没维持很久的时间。通过比较得知,世界大洋水的同位素污染程度,从高向低依次为北太平洋、南太平洋、大西洋和印度洋。由于同位素的大气沉降受气象等因素的影响,而全球污染的最高值出现在北纬 30° — 40° ,在南半球 30° — 40° 也有类似偏高的现象,但远远低于北半球。目前,在沿海核能基地和核工厂附近,由于人工同位素的排放而出现了令人担心的环境污染问题。但其含量和分布却因处理方法、区域特

点及反应堆类型不同而异。可以预料,如果大气核试验保持在目前的水平,则全球性的污染将不成为重要问题。然而,核能的和平利用引起的局部海区污染将上升为人们关注和急需研究的问题。

核素在海水中的存在形态,决定着它们在海水中的运动状态。颗粒状和胶体状核素较易下沉,离子态的核素则容易受海流影响而和水团一起运动。大部分核素,因海水垂直密度不同而停留在温跃层。另外,核素自身的物理化学性质及其与悬浮体结合的能力,也严重地影响着它们的分布。 ^{137}Cs 虽然主要以离子状态存在,但粘土性物质往往影响着它的分布。

同一核素在不同类型的沉积物中表现了不同的分配系数。放射性核素的吸附次序是: $\text{Ca} < \text{Sr} < \text{U}, \text{Pu}, \text{Cs} < \text{Rb} < \text{Zn} < \text{Fe}, \text{Zr/Nb}, \text{Mn} < \text{Ru} < \text{Pm}$ 。利用悬浮体、沉积物及其重金属物质吸附核素,可能是降低海水污染的有利方法。因为,许多核素可以通过这一过程埋藏在海底,从而减少与人类的接触。当然,这种自净过程,必然会增加底栖生物的污染,但就整体来看还是有利的。

需要指出:“国际海洋考察十年”计划中所进行的“地球化学海洋剖面研究”,为研究核素在大洋中的垂直分布和探索大洋环流、大尺度扩散模式作了许多工作。从1969年开始到1974年,参加单位在太平洋147个站、大西洋121个站,进行了营养元素、微量元素和放射性元素的调查,其中有 ^{14}C , ^{90}Sr , ^{137}Cs , Th , Ra 和 Ar 等10多种同位素。我国从六十年代开始,也进行了海水、海洋生物和沉积物的 ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^3H , ^{60}Co , ^{65}Zn 等若干核素的研究。基本上摸清了其含量和变化规律。

2. 核素在海水中的存在形态研究

核素在海水中的存在形态研究,对研究核素的运动规律、生物吸收、吸附和浓缩机制以及沉积物的吸附、解吸等过程,均有重要意义。目前,研究核素状态的方法,有吸附法、解吸法、渗析法、超滤法、电泳法、扩散法、放射性显影法和电化学分离法等。不管在什么情况下,只有在同时研究了吸附和胶体性质之后,才能作出元素存在状态的最后结论。研究人工同位素与环境中稳定同位素的平衡过程,可以通过放置法、模拟法和将同位素引入生物循环系统的方法进行。然而,像Pu, Np, Tc, Pm等同位素,则因自然界中没有稳定同位素而使研究更加困难。目前,已对 141 , ^{144}Ce , ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{106}Ru , ^{137}Cs , ^{239}Pu 等几十种核素进行了研究,并获得了显著成绩,这在苏联所出版的《海水中元素和放射性核素的存在形式》一书中有详细介绍。

3. 海洋生物对核素的吸收、浓缩、排泄及生物指标种的研究

由于这个问题直接与环境污染,生物资源利用和人体健康有密切关系,所以世界上不少国家对这个问题的研究均比较重视。

由于实验方法和条件不同,各研究者所得资料也有很大差别。但是一些公认的资料越来越多。生物浓集核素的能力通常用 K_H 表示:

$$K_H = \frac{C_1(\text{生物体中放射性核素或元素浓度})}{C_2(\text{水溶液中放射性核素或元素浓度})}$$

$$\text{或 } K_H = \frac{A_1}{m_1} : \frac{A_2}{m_2}$$

A_1 , A_2 分别是生物体中和介质中的放射性; m_1 , m_2 分别为生物的重量和水量。浓缩系数具有加和性,即不同形态的生物群落的 K_H 总值,是由群落中每种生物分量乘以相应的分浓缩系数 n_1 之和,即 $K_H = K_{H1} \cdot n_1 + K_{H2} \cdot n_2 + \dots + K_{Hn} \cdot n_n$ 。阐述浓集动力学,通常采用以下经验式:

$$K_H = K_1 + n \ln t, \quad K_H = K_1 t^n, \quad K_H = K_1 (\ln t)^n$$

n 为经验参数, t 为时间, K_1 为 K_H 的一个常值。

近年来,利用生物作为监测环境放射性污

染指标种的工作引起了许多国家的注意,这一方法可省去处理几十升、几百升甚至上千升海水的麻烦。已提出了许多指标种,如磷虾作 ^{65}Zn 的指标种;软体动物之贝壳作为 ^{90}Sr 的指标种;贻贝和茗荷几作为 ^{239}Pu 污染的指标种等。

4. 海水、海洋生物和海洋底质的剂量率及放射性对生物的影响

IAEA和其他一些科学家,已经提出了海洋环境中各种物质的剂量率和计算剂量率的数学模式。计算得知:核能设施的废物排放区剂量率最高,人工下落核素已从剂量率的主要贡献者降为次要的地位。对于排污区的生物所受的辐射剂量率既可以从海水中的放射性浓度计算出来,也可以用热释光剂量仪(TLD/S)直接测出来。实践证明:在排污口的沉积物,对生物的辐射剂量作用最大。

关于海洋中电离辐射对生物的影响,至今仍未有统一的看法。一种认为,电离辐射对鱼卵的敏感性,即使在 $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ 浓度比现有水平大一百倍的情况下,鱼中畸形卵的数量也没有明显的增加;另一种认为,在 $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ 浓度只为天然海水中 ^{40}K 浓度的1/3时,影响就显露出来。从小剂量照射对昆布糖水解速度的影响看出,海洋生物即使积累量较小,其生命过程,也会引起剧烈的变化。

近年来,国际辐射防护委员会(ICRP*26号报告)提出了新概念,即辐射效应区分为随机效应和非随机效应。前者是线性无阈值,对致癌与遗传效应来讲,发生的几率与剂量成正比;后者为有阈值,如人眼晶体的混浊、皮肤的良性损伤等,当剂量低于阈值时不会发生,高于阈值就会发生,其严重程度与剂量有关。按照这种说法,则可解释上述发生的现象。随着科学的发展而提出的这些新概念将会有益于我们认识辐射对生物的影响。我们认为,低水平电离辐射对海洋生物产生微观变异的研究,仍然须要深入地进行。

5. 海水、海洋食品放射性标准与海洋排污标准的研究

这两项研究,是评价和限制海洋环境污染的法律根据。按照放射性同位素在人体中的代谢规律,可分两大类:一是人体很少吸收的,主要对胃肠道有影响的;二是被人体吸收并影响其它器官的,如 ^{90}Sr , ^{137}Cs 等。对于前一类,可以根据水中放射性物质的最大容许浓度来考虑;对于后一类,则应根据体内放射性物质的最大积载量来计算。第一类同位素在海水中的最大容许浓度,可用以下公式表示:

$$\text{MPC}_{\text{sw}} = \frac{S(\text{MPC}_w)F}{f}$$

MPC_{sw} 为海水中同位素的最大容许浓度; S 为对全民照射考虑的因子(ICRP推荐为0.1,对于排放后形成有机化合物者为0.01); F 为每天消耗水量与食物量之比,取值为10; f 为浓缩系数。

对于第二类同位素,采用下式计算:

$$\text{MPC}_{\text{sw}} = \frac{Sg'I_{\text{ne}}}{I_{\text{nb}'}} \cdot \frac{(K+B)}{B}$$

Sg' 为在人体器官中的最大容许积载量; I_{ne} 为在海水中稳定性同位素(或载体)的浓度(克/千克); $I_{\text{nb}'}$ 为在人体器官中稳定性同位素的总量; K 和 B 分别为物理和生物衰变常数(天 $^{-1}$)。可以根据这些公式推测海水中核素的容许浓度。

排污标准主要是对核潜艇和核设施而言。美国将海洋环境分为:①近岸区:海湾、河口和二海里内的海面;②大陆架区:从2海里以外到400米深处;③深水区:10海里以远的公海。按照对原子能企业周围居民规定的标准,其近岸区应为0.5伦姆/年,②,③区按全民计算为0.2伦姆/年。近岸区、大陆架区和深海区海水的最大容许浓度计算公式分别为:

$$\frac{0.34\text{MPC}_w}{F}, \frac{0.33 \times 10^{-2}\text{MPC}_w}{F}, \frac{10^{-2}\text{MPC}_w}{F}$$

MPC_w 为淡水中同位素的最大容许浓度; F 为浓缩因子。

6.放射性核素的富集、分离、测试方法研

究及调查规范的制订

海洋环境中需要测定的主要核素有二十几种,而最多的是 ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{106}Ru , ^{210}Po , U , ^3H , ^{14}C , ^{239}Pu , ^{241}Am 等。IAEA出版了测定海洋环境中核素的参考方法,我国1981年出版了海洋放射性调查方法的重要译文,它们都有详细的程序介绍,可以参考。

目前提出的富集剂是很多的,其沉淀形式也是多种多样的,如氢氧化物、氧化物、硫化物、硫酸盐、还原为元素形式、草酸盐、氟化物、四苯硼酸盐、银盐、磷钼酸盐,各种有机化合物等。分离方法有共沉淀法、离子交换法、液-液萃取、反相色谱、挥发法、电沉积等。各种方法都在被运用着,但是,离子交换法以及萃取法更加引人注目。如果能制备出各种核素的离子交换材料和萃取剂,则核素的分析将会有一个新的跃进。

测试仪器正在经历着重大的更新。各种计数器和谱仪正在迅速发展,例如带有 $\text{Ge}(\text{Li})$ 或纯 Ge 探头的多道谱仪;适应环境样品测量的康普顿抑制谱仪;低本底装置和液闪系统等,为实现非破坏性测定以及提高分析水平打下了基础。

7.利用海洋处理放射性废物的研究

很早就有人提出利用海洋作为处理放射性废物库的意见,但未得到定论。尽管如此,许多国家已把废物抛进了大海。英国温茨凯工厂,每年都向爱尔兰海排入大量放射性(10^5 居里左右)废物。欧洲一些国家于1967年,1969年和1971年,在大西洋进行了几次联合抛放废物的实践。1981年,IAEA所属摩纳哥实验室已开展了这一专题的研究。这对于保护海洋环境和开发大自然的潜在能力都是很需要的。我们认为:合理的、有计划的向海洋中排放一定量的放射性物质是可以的,也是势在必行。

8.放射性同位素在海洋学中的应用

人工同位素的出现为研究水体运动提供了一个新方法,利用这一方法研究了海水和悬浮体的运动规律,测定了水平、垂直扩散系数和水体停留时间,研究了海-气交换、上升流,

沉积速度和地质年龄等。例如,从1954年对在太平洋比基尼和安尼威托克环形礁进行核实验所造成的污染测定得知,北赤道流速大约为20厘米/秒,其流向为西;同时通过北太平洋大面积的调查,证明了北赤道流是黑潮的主要来源。在此期间,也测定了水平扩散系数R(厘米²/秒),它与污染源的距离S可表示为S² = 2Rt。而R与扩散尺度之间的关系为R = 0.01L^{4/3} (10¹⁰厘米 > L > 10厘米)。利用¹³⁷Cs和⁹⁰Sr的垂直分布可以求出垂直涡动扩散系数,并预示了在跃层以下达到均匀分布状态所需要的时间,其表达式为:

$$C = \frac{C_0}{\sqrt{\pi Dt}} e^{-\frac{Z^2}{2Dt}}$$

C₀为在200米深的核素量; C为t时候在深度Z的核素浓度, D为太平洋涡动扩散系数(200厘米²/秒)。

海水循环模型和停留时间的研究: 海水中的¹⁴C与水团年龄有关,同时也与水团和具有不同¹⁴C值的水团混合程度有关。太平洋和印度洋中¹⁴C的分布与纬度、深度有较好的函数关系。研究发现: 表层水的¹⁴C值从北向南依次减少,而深层水却从南向北减少。利用此模型确定了南冰洋是太平洋深层冷水的主要来源,并以0.06厘米/秒的速度向北移动。用同位素法测定太平洋深海水的停留时间为1000—1600年;大西洋约为400—700年,其表层水为10—20年。

海-气交换及上升流的研究: 可以利用³H, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr和¹⁴C来进行此项工作,例如在GEOSECS计划中,通过大西洋¹⁴C测定结果,发现大西洋核试验产生的¹⁴C有二个明显的异常现象,即赤道区表层水¹⁴C/C比值低于附近中纬度表层水的¹⁴C/C比值;赤道区垂直水柱中核试¹⁴C含量几乎是附近中纬度区的1/5,赤道区与中纬度区的分界线正好在15°N—15°S之间。这种现象,是由于赤道带的水被深层含极微量的核试¹⁴C的深层水上升而冲淡造成的。这种现象发现了赤道区水的运动规律,并可以根据单箱模式或一度空间稳定状态

下的平流-扩散模式,进行上升流的通量计算。以单箱式为例,可以求出赤道上升流的通量:

$$W = \frac{AE}{[\Sigma CO_2]} \left[\frac{({}^{14}C^*/C)_{S_w}^E}{({}^{14}C^*/C)_{S_w}} - 1 \right]$$

W为上升流通量(米³/年); [ΣCO₂]为表层水总碳含量(2mole/米³); A为大西洋15°S—15°N区域的面积(20×10¹²平方米); E为CO₂交换率(22mole/米²·年); (¹⁴C*/C)_{S_w}^E为表层水与大气核试验的¹⁴C*达到平衡时的比值; (¹⁴C*/C)_{S_w}为表层水观测值。

若 $\frac{({}^{14}C^*/C)_{S_w}^E}{({}^{14}C^*/C)_{S_w}} = \frac{500+40}{100+40} = 3.9$

则 $W = 64 \times 10^{13} \text{米}^3/\text{年} = 20.2S_v$

若赤道带有效深度取为150米,则水和C的存留时间为:

$$I_{H_2O} = \frac{150 \times A}{64 \times 10^{13}} \approx \frac{15 \times 20 \times 10^{13}}{64 \times 10^{13}} = 4.7 \text{ (年)}$$

$$I_C = \frac{150 \times A \times \Sigma CO_2}{W \times \Sigma CO_2 + E \times A} = \frac{150 \times 20 \times 10^{12} \times 2}{64 \times 10^{13} \times 2 + 22 \times 20 \times 10^{12}} = 3.5 \text{ (年)}$$

通过测定和计算得知,工业污染和核试之前天然¹⁴C在大气—表层水的交换速率为14mole/米²·年,核试后为22mole/米²·年,1955—1973年之间核试产生的¹⁴C量为10⁻⁸μmole/厘米²。

另外,利用同位素测定地质年代和沉积速度的工作也获得了显著成绩,目前已建立了十几种方法,但多为天然放射系中的同位素,而应用人工同位素的工作,由于适应范围很小(20年左右),使用并不普遍。

海洋放射性研究工作的任务

综合过去工作,展望未来,今后海洋放射性工作应当着重以下几个方面:

1. 建立和发展海洋环境放射性的研究机构,开展海洋同位素研究,尤其对那些毒性大、危害严重的核素更要给予足够的重视,积

累资料，掌握其变化规律。如果核武器实验停留在目前的水平，则海洋放射性的研究从大面积调查转向核能设施的局部海区和从核碎片转到核能工厂的排污是完全可能和必要的。应当指出，超铀元素（钷和镅等）的研究已成为各国十分重视的研究内容。

2. 开展各种重要核素及其稳定同位素存在形态的研究，是深入揭示元素运动规律、地球化学过程、改进和提高分析方法、探索生物吸收浓缩机制所必不可少的重要任务。

3. 研究改进和更新核素的分析方法，提供快速、灵敏、准确监测海洋污染和进行同位素地球化学研究的手段。目前，应当注意多种核素的系统分析方法。在仪器方面，应使用和发展低本底 α 、 β 计数系统和带有纯 Ge 或 Ge (Li) 探头的多道谱仪。1982年出产的系列85-

康普顿-朱皮特系统是比较理想的。

4. 围绕核电站的建立及海区排污，开展海洋物理、化学、生物和地质方面的综合研究，是刻不容缓的任务。如混合扩散、核素运动规律、上下层水体交换、核电站排污对海洋生物资源和生态系的影响和危害、沉积过程与同位素的关系等。

5. 利用人工同位素作示踪剂，研究河流与沿岸海之间的河口界面；河口与大洋间的沿岸海界面；沉积层与水的界面（海底边界层）；海空界面的化学通量及有关化学反应，是近几十年海洋科学研究中的一项重要任务。同时，应用同位素技术，探索海洋地质、化学、生物等学科中一些重要现象和过程的机理及联系，也是当前值得注意的发展方向。

（参考文献略）