福岛第一核电站事故及核污水排海进入中国海路径及其影响

吴俊文[1,2], 陈吉生[2], 赵化德[3], 王　翠[4]

(1. 南方海洋科学与工程广东省实验室(广州), 广东 广州 511458; 2. 汕头大学 海洋科学研究院　海洋灾害预警与防护广东省重点实验室, 广东 汕头 515063; 3. 生态环境部 国家海洋环境监测中心, 辽宁 大连 116023; 4. 自然资源部 第三海洋研究所, 福建 厦门 361005)

摘要: 自 2011 年 3 月日本福岛第一核电站事故发生以来, 其对中国海的影响一直备受国内高度关注。基于近 10 年的研究成果, 本文综述了福岛第一核电站事故释放的放射性核素进入中国海的海洋传输路径主要为表层环流和模态水(亚热带模态水和中央模态水), 经表层环流和模态水到达中国海的时间尺度分别在 10—15 年和 2—3 年之间。对比分析福岛第一核电站事故前后可知: 南海 ^{137}Cs 活度持平, 黄海 ^{137}Cs 活度稍有降低, 但东海 ^{137}Cs 活度有所升高。鉴于目前有限的监测站位和短期的观测时间, 福岛第一核电站事故对中国海的影响程度大小还有待于长期监测和进一步的评估。同时针对日本政府宣布福岛第一核电站核污水排海计划, 分析了其潜在的风险和指出了未来的研究方向。

关键词: 福岛第一核电站事故; 中国海; 福岛核污水; 黑潮; ^{134}Cs; ^{137}Cs

中图分类号: P76　　**文献标识码**: A　　**文章编号**: 1000-3096(2022)06-0135-10

DOI: 10.11759/hykx20210610001

2011 年 3 月 11 日, 日本东北 9.0 级大地震和海啸引发了福岛第一核电站事故, 造成了大量人工放射性裂变产物(~520 PBq; 1 PBq=10^{15} Bq)进入环境[1], 如 ^{3}H、^{14}C、^{35}S、^{36}Cl、^{85}Kr、^{89}Sr、^{90}Sr、^{99}Tc、^{103}Ru、^{106}Ru、^{129}I、^{131}I、^{133}Xe、^{134}Cs、^{135}Xe、^{137}Cs 和 $^{239+240}$Pu 等[2-8]。以典型的人工放射性核素 ^{137}Cs 为例, 其排放量为 20 世纪 50—60 年代全球大气核爆试验排放量的五十分之一, 是切尔诺贝利事故释放量的五分之一, 与英国塞拉菲尔德核燃料加工厂的排放量相当[8]。最终, 大约 80%的放射性物质将以大气沉降、冷却水的直接排海, 雨水冲刷和地下水排放的方式进入太平洋[4]。进入海洋的放射性物质又将通过海洋表层和海洋内部的传输方式影响海洋生态系统[9]。

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(几天到几个月)直接传输进入中国海, 而大气传输是其快速(几天)进入中国海的主要途径。福岛核事故之初, 我们基于人工放射性核素 ^{137}Cs 评估了福岛核事故经大气传输对中国海的影响, 得出福岛核事故对中国海的影响微弱或不明显[10]。如今, 福岛核电站事故已经过去近十年, 国内外科学家对此也进行了大量的研究, 主要研究方向包括放射性核素的溯源、释放量的估算、环境传输路径及对海洋环境的影响等, 利用放射性测量技术和质谱技术, 通过现场调查或数值模拟研究得出了一些清晰的认识, 但仍然有许多未知的科学问题亟需解决。特别是现场调查或数值模拟都有其各自的弱点, 现场调查仅局限于某一特定时间的特定区域, 而数值模拟往往又缺少现场数据进行验证; 且大部分研究集中在太平洋区域, 而对于福岛核事故释放的放射性物质通过水体传输途径对中国海是否产生影响未见系统的报道; 因此, 本研究将在近 10 a 的研究基础上, 重点分析福岛核事故产生的放射性物质是否会传输到中国

收稿日期: 2021-06-10; 修回日期: 2021-07-28

基金项目: 国家自然科学基金项目(42076038); 南方海洋科学与工程广东省实验室(广州)重大专项团队项目(GML2019ZD0606); 广东省自然科学基金项目(2021A1515011886); 汕头大学科研启动基金项目(NTF18011); 广东省自然科学基金项目(2019A1515010611); 汕头市创新创业团体项目(201112176541391)

[Foundation: Project supported by the National Natural Science Foundation of China, No. 42076038; Key Special Project for Introduced Talents Team of Southern Marine Science and Engineering Guangdong Laboratory (Guangzhou), No. GML2019ZD0606; the Natural Science Foundation of Guangdong Province, No. 2021A1515011886; STU Scientific Research Foundation for Talents, No. NTF18011; Natural Science Foundation of Guangdong Province, No. 2019A1515010611; Innovation and Entrepreneurship Project of Shantou, No. 201112176541391]

作者简介: 吴俊文(1979—), 男, 江西南昌人, 教授, 主要研究方向为海洋环境化学、同位素海洋学, 电话: 0754-86503104, E-mail: wujw@stu.edu.cn; 赵化德(1982—), 通信作者, 副研究员, 主要从事海洋碳循环等方面的研究, 电话: 0411-84782507, E-mail: hdzhaowork@163.com

海，传输扩散的途径有哪些，最终对中国海的影响又如何。

本文综述和讨论了福岛第一核电站事故释放的放射性核素及核污水进入海洋后输入中国海的途径、对中国海可能产生的潜在环境影响、应对之策及未来的研究方向。

1 福岛第一核电站释放的放射性物质进入中国海的路径

1.1 大气输送

福岛第一核电站事故中由于氢气爆炸导致放射性物质进入大气，据估算，典型人工放射性核素 ^{131}I和 ^{137}Cs排入大气环境的量分别约为160~500 PBq 和 10~15 PBq[11]。进入大气的人工放射性物质可通过西风带产生全球性影响[12]，如，2011 年 3 月 16 日在远离福岛达 7 000 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[13]，2011年3月24日至4月9日在远离福岛达7 500 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[14]。与此同时，通过东北季风可快速传输到中国海[15]，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(0.006 8±0.002 2) mBq/m^3 和(0.006 2±0.001 1) mBq/m^3，4 月 6 日达到峰值，活度分别为(1.441 1±0.020 9) mBq/m^3 和(1.123 5±0.017 5) mBq/m^3[15]。针对福岛核事故通过大气传输对中国海的影响，Wu 等(2013)[10]率先通过现场监测数据和大气沉降模型估算了 ^{137}Cs 的大气输入通量为 5.4~42.9 mBq/ (m^2·d)，平均为 32.2 mBq/(m^2·d)，并得出福岛核事故对东海 ^{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。值得注意的是，福岛核事故释放的一小部分放射性物质可由大气传输快速地影响全球范围，虽然导致远离日本福岛区域的放射性核素活度很低，但都在可检测出的水平之上[16-22]。

1.2 海洋表层输送

事实上，由于福岛第一核电站坐落于西北太平洋沿岸，核事故发生后冷却水携带的放射性污染物将直接排入太平洋。Tsumune 等[23]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(2012)[24]根据 2011 年 6 月 4 日至 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。排入海洋的放射性物质分布格局受控于西北太平洋的洋流运动和海洋生物地球化学过程(如颗粒活性的 Pu 同位素易被清除)等。福岛核电站处于南部黑潮和北部亲潮的交汇区[25]，因此，西边界流黑潮是阻碍放射性物质向南传输的一个主要屏障，但有利于放射性物质向太平洋东部扩散[24, 26]。以人工放射性核素 ^{137}Cs 为例，现场观测和模型研究结果揭示了福岛核事故释放的 ^{137}Cs 沿着黑潮及其延伸体向东的快速扩散[23, 27]。例如，福岛第一核电站事故释放的 ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 于 2013 年 6 月传输至美国西海岸海域[28]。8 个月后，该海域 150 m 以浅水柱中 ^{137}Cs 的活度升至 2 Bq/m^3，是该海域事故前 ^{137}Cs 背景水平的两倍[28]。随后在北太平洋东部夏威夷邻近海域，2014 年和 2015 年分别测的 ^{137}Cs 活度约为 6 Bq/m^3 和 10 Bq/m^3。2015 年 2 月，不列颠哥伦比亚省的科学家在北美近岸海域测的 ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 的活度分别为 1.4 Bq/m^3 和 5.6 Bq/m^3 (^{134}Cs 和 ^{137}Cs 活度校正到 2011 年 3 月分别为 5.0 Bq/m^3 和 6.1 Bq/m^3; 核事故之前该海域 ^{137}Cs 活度为 1.1 Bq/m^3)，并首次证实 ^{134}Cs 信号源自福岛第一核电站事故[4]。事实上，纬度方向上 25°S~55°N 区域在 2015 年均观测到福岛核事故信号。所以，从现有的观测结果表明，福岛核事故的放射性物质经过表层环流传输到北美近岸的时间大约为 4 a，并且数值模型的结果也进一步证实了观测结果[29]；据此推算，这些放射性物质再经北赤道流到达中国海的时间尺度大约为 5~10 a 的时间尺度。因此，福岛核事故释放的放射性物质经过表层洋流传输到中国海的将在 10~15 a 的时间尺度(图 1)。

1.3 海洋内部输送

在整个太平洋的大部分地区，除表层环流以外，次表层水体的生成和输运，尤其是亚热带模态水(STMW)和中央模态水(CMW)，对于泄漏放射性核素的输送和扩散起着重要的作用(图 1)[24, 28, 30]。由于冬季的降温和浮力损失形成的太平洋模态水可携带源自福岛核电站的放射性物质至次表层并与深层水混合[31]。由于 ^{134}Cs(半衰期为 2.06 a)具有较短的半衰期，20 世纪 50—60 年代全球核爆试验产生的 ^{134}Cs 均已衰减为零，所以，如今在日本以东、日本以南西太平洋海域大范围检测到的 ^{134}Cs 信号源可被认定为自福岛第一核电站事故。故此，这里我们重点分析了

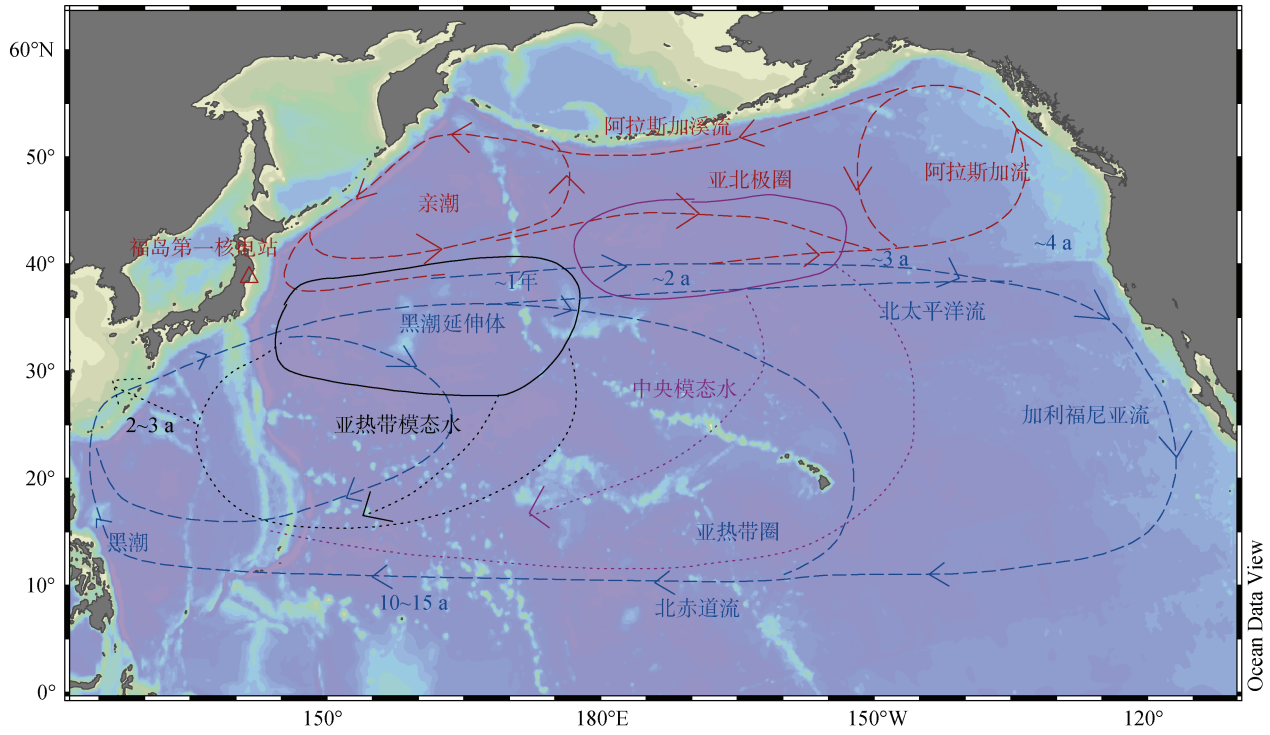


图 1　福岛第一核电站释放的放射性核素在太平洋的传输途径及传输时间示意图(数据源自之前的文献报道[4, 23, 27-29])

Fig. 1　Schematic diagram of the transport pathway and arrival time of radionuclides released by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) in the Pacific Ocean. The data are obtained from previous studies[4, 23, 27-29]

源自福岛第一核电站事故的 ^{134}Cs 在太平洋的内部传输(图 2)。STMW 在冬季生成于黑潮以南 30°N~35°N 的区域形成，随后下沉至~400 m 的深度，向西南方向扩散。福岛核泄漏核发生的时间和区域，恰好与 STMW 生成的时间(2011 年 3 月)和区域相吻合。诸多研究发现，通过大气沉降到达 STMW 生成区域的放射性核素，被迅速“抽吸”至海洋次表层，并随 STMW 向北太平洋扩散[22, 32-33]。根据 149°E 断面的研究结果(图 2 断面 B)，在 STMW 形成过程中，表层 ^{134}Cs 被迅速输送至 300~400 m 的区域，沿着 σ_θ=25.0–25.6 等密面向南输送，在核事故 10 个月后(2011 年 12 月—2012 年 2 月)，最南到达东经 149°、北纬 20° 附近的亚热带锋面海域。^{134}Cs 的最大值位于北纬 32.16°海域、水深 350 m 的水体[22]。核事故 19 个月后(2012 年 9 月)，在 134°E~138°E，13°N~34°N 的区域也发现 ^{134}Cs 的信号(图 2 断面 C)，最南到达了 18°N 附近的海域[33]。^{134}Cs 最大值位于 136.15°E、26.49°N 海域，水深 300 m 水体，对应的 σ_θ 为 25.3。Men 等[32]在 2012 年 5—6 月份，于台湾岛以东 430 km 外海域(125.00°E, 21.50°N)水深 200 m 处，检测到了 ^{134}Cs 的信号。该水团对应的 σ_θ 为 25.13，在 σ_θ 小于 25 的相邻站位，并未检测到 ^{134}Cs 的信号，表明该站位的 ^{134}Cs 受到了 STMW 输送的影响。此后，在 2012 年 11—12 月，于南海 118.9°E, 21.5°N 的 100 m 深度，检测到了 ^{134}Cs 的信号，然而在该站位表层和 500 m 深度并没有检测到的 ^{134}Cs 信号[34]。该 ^{134}Cs 很可能是福岛核事故产生的放射性核素，通过 STMW 在次表层的运动输送到了南海。将断面 B、C、D、E 中的 ^{134}Cs 最大值连成一条线，可以看出方向上从 STMW 形成区域向我国南海，深度从 400 m 逐渐变浅。表层只有在靠近福岛 2011 年时浓度高，其他时间表层浓度低于次表层。在更远处的 165°E 经向断面，于 2012 年 6—7 月份，大约在 200 m 处发现 ^{134}Cs 的次表层极大值，对应的密度为 25.0~25.6。根据 2014 年 12 月在该断面附近的调查结果，次表层最大值呈现出向深、向南扩散的趋势。这些观察结果表明，模态水的形成和下沉是将福岛核电站放射性物质快速(大约 1 a 的时间尺度)输入海洋内部和快速向南扩散的一个有效的途径[22, 32-33]。经该传输途径携带向南扩散的放射性物质可较快(大约在 2~3 a 的时间尺度)进入中国海，如进入东海的时间约为 3 a[35]，进入南海的时间约为 2 a[34]，这与模型的研究结果也相一致[29]。

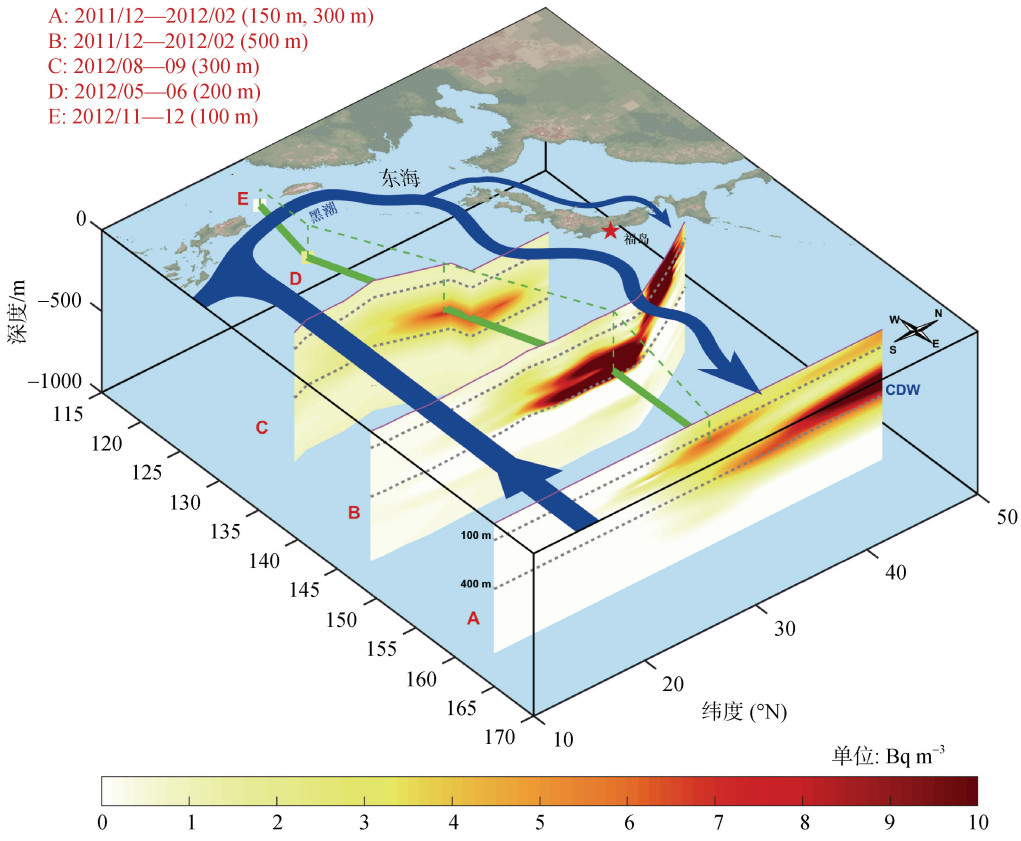


图 2　福岛第一核电站事故释放的 ^{134}Cs(单位: Bq m^{-3})在太平洋传输运移示意图

Fig. 2　Distribution of ^{134}Cs derived from the FDNPP accident in the Pacific Ocean

注: 蓝色代表表层环流, 绿色代表次表层 ^{134}Cs 最大值的连线。其中断面 A、B、C、D、E 分别引自文献[22, 32-34]; 相应的调查时间和 ^{134}Cs 最大值的深度标注在图左上角。

1.4　输送途径分析

福岛第一核电站释放的放射性物质经大气或海洋环流输送进入中国海的途径。从时间尺度来看, 大气输送途径明显快于海洋环流输送, 前者在数天的时间尺度, 而后者在数年或者数十年的时间尺度。大气输送途径除了能快速到达中国海外, 其输送的放射性物质对中国海的影响还取决于放射性颗粒尘埃粒径大小或沉降系数。海洋环流输送途径分别为海洋表层输送和海洋内部输送, 时间尺度分别为 10~15 a 和 2~3 a。对比分析两种海洋输送途径在时间上的差异, 也暗示其对中国海的影响程度不同。对于海洋表层输送途径来讲, 短寿命放射性核素(如 ^{134}Cs)在进入中国海的路途中将大部分衰变, 而对于长寿命放射性核素也将被太平洋水稀释。因此, 对于同一浓度的放射性物质经过海洋表层输送进入中国海的影响应小于海洋内部输送。此外, 两种海洋环流输送运动方式不同, 海洋表层输送主要是水平运动的表层环流, 而海洋内部输送主要是通过模态水的下沉来实现。例如, 在同一观测海域, 表层环流和模态水中同一放射性物质的活度随时间变化可以理解其在空间上的水平分布和垂直分布。在表层环流输送中表层放射性物质随时间和稀释作用逐渐降低, 而在模态水的次表层可观测到放射性核素浓度极大值。

2　中国海人工放射性核素研究现状

从 1980—2010 年间近 30 a 来关于中国海人工放射性核素的研究仅有一些零星的报道。2011 年福岛第一核电站事故发生后, 国内外学者相继开展了中国海人工放射性核素的溯源及评估福岛第一核电站事故对中国海的影响等工作[9-10, 36-41]。我们分别对中国海典型的人工放射性核素 $^{239+240}$Pu 和 ^{137}Cs 的研究现状进行了综述[42-43], 给出海水和沉积物中 $^{239+240}$Pu 和 ^{137}Cs 的来源、时空分布类型、储量及其调控因素。以水体中人工放射性核素 $^{239+240}$Pu 为研究对象, 现有研究表明中国海 Pu 的来源主要为全球大气核爆试

验的沉降和太平洋中部马绍尔群岛美国核爆试验(Pacific Proving Grounds, PPG)产生的钚经北赤道流和黑潮输送到中国海[37, 44-48]。中国海表层海水中 $^{239+240}$Pu 水平分布呈现以下两个特征: 1) 中国海 $^{239+240}$Pu 活度高于黑潮水, 这主要是中国海 $^{239+240}$Pu 具有更高的累积[48]; 2) 陆架区或外海区 $^{239+240}$Pu 活度高于近岸区, 这主要是近岸区 $^{239+240}$Pu 相对于陆架区或外海区具有更高的清除[42]。

中国海表层海水中 ^{137}Cs 活度范围为 0.03~1.80 Bq/m^3(平均=(0.74±0.34)Bq/m^3), 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)和海洋中丰度最高的天然核素 ^{40}K 活度(~12 000 Bq/m^3)[10]; 其水平分布呈现以下三个特征: 1) 黑潮水 ^{137}Cs 活度高于中国海, 这可能马绍尔群岛 PPG 沉积物或水体中高活度的 ^{137}Cs 经北赤道流的持续输送有关[43]; 2) 中国海 ^{137}Cs 活度沿着纬度从南向北逐渐降低, 即南海与东海相当但高于黄海, 黄海水深较浅和河流输入的大量颗粒物快速清除水体 ^{137}Cs 至沉积物中, 导致黄海 ^{137}Cs 活度较低[43]; 3) 近岸及河口区 ^{137}Cs 活度低于边缘海陆架区, 这也与近岸及河口区大量颗粒物的快速清除效应有关[43]。综合中国海已有的现场观测数据和国际原子能机构(IAEA)的海洋信息系统数据(marine information system-MARIS: https://maris.iaea.org/), 我们给出了中国海 1960—2020 年 ^{137}Cs 活度的时间变化(图 3)。从中可以看出, 自 20 世纪 60 年代全球核爆试验禁止后, 中国海 ^{137}Cs 活度随时间逐渐降低, 至福岛核事故前约为 1.5 Bq/m^3。这里我们重点分析比较了福岛核事故前后(2011 年 1 月—2015 年 7 月) ^{137}Cs 活度变化[36-41], 发现南海 ^{137}Cs 活度基本持平, 而黄海 ^{137}Cs 活度稍有降低, 但东海 ^{137}Cs 活度有所升高。另有报道南海和东海均观测到源自福岛第一核电站事故的 ^{134}Cs 信号[34-35], 但鉴于目前观测站位数量少和观测时间短的限制, 福岛第一核电站事故释放的 ^{134}Cs 对中国海的影响程度大小还有待于进一步的评估。

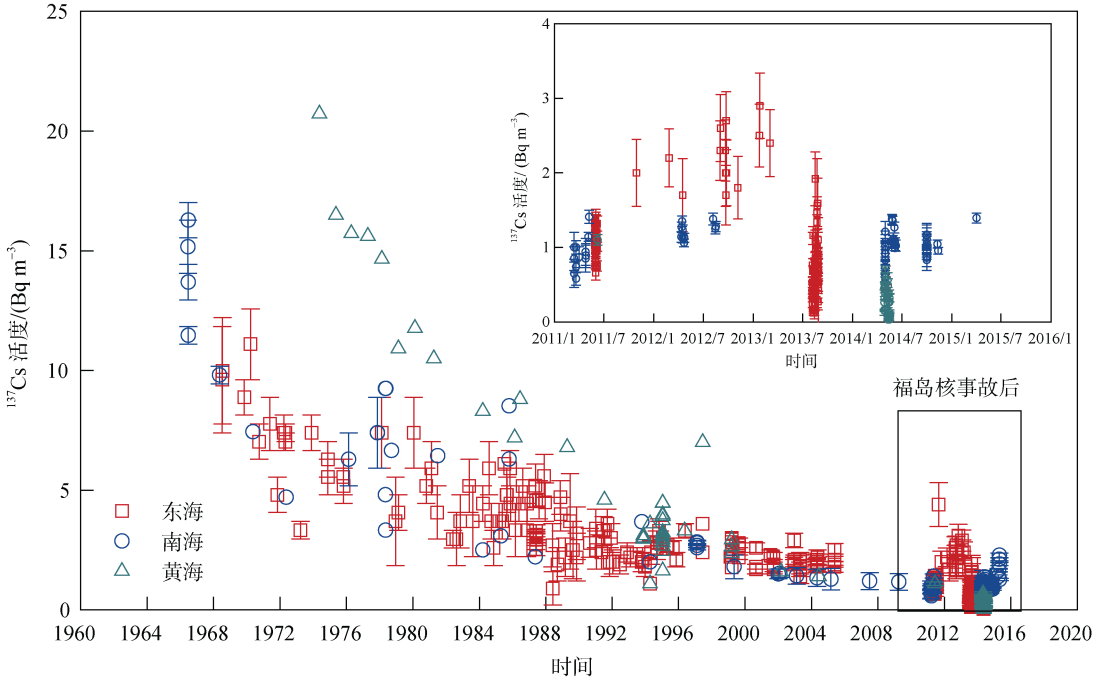


图 3 中国海表层海水中 ^{137}Cs 活度(单位: Bq m^{-3})时间变化。^{137}Cs 的数据源自之前的文献报道[10, 37-43, 46, 50]

Fig. 3 Temporal variations of surface ^{137}Cs activity in the China Sea. ^{137}Cs data are obtained from previous studies[10, 37-43, 46, 50]

中国沿海城市水产品中放射性核素的研究相对较少, 在已有的报道中尚未发现超标情况, 如 2013 年 7 月, 在青岛沿海采集的 11 种水产品中 ^{226}Ra, ^{232}Th, ^{40}K 和 ^{137}Cs 的活度浓度与福岛第一核电站事故之前的测量结果相当[49-51]。总体来讲, 我们对福岛第一核电站释放的放射性核素对海洋环境影响的信息仍然有限, 尤其是对于西太海水进入南海和东海关键通道的监测数据还十分匮乏, 更缺乏长期连续的监测数据。这很大程度上限制了全面评估福岛第一核电站事故对中国海放射性核素的影响。

3 福岛第一核电站核污水的排放及其潜在风险

2011 年福岛第一核电站事故发生以来, 为降低反应堆温度, 东京电力公司(以下简称“东电公司”)需要每天向炉内注入大量冷却水, 再加上由于炉壁破损, 地下水、雨水不断渗入, 大量含有氚、铯-134、铯-137、碘-129、锶-90、钴-60 等的核污水正在源源不断地产生。2014 年, 污水增加速度达到 540 t/d, 在有关管理机构采取了建设地下水旁流系统、防渗墙、地表硬化层等措施, 并在液体处理系统建成后改用净化水冷却堆芯后, 污水增加速度目前已降低至每天 140 t, 并有望在 2025 年降至每天 100 t。虽然将来的核污水产生量能够得到控制, 但前期已经产生了巨量核污水并储存在 1 044 座储水罐中。目前, 储水量已超过 1.2×10^6 t, 并以每天 140 t 的数量继续增加。而污水储罐建设于 2020 年底结束, 总储水能力上限为 1.37×10^6 m^3。届时, 新产生的污水将无处可存, 并会影响核电站拆除工程。

针对核污水去处, 东电公司曾提出 5 种处理方案: 增加储罐及容量、在其他地方设置储罐、固化后进入地下、处理后排入大海、以水蒸汽形式排入大气。经多次论证, 东电公司认为处理后排入海洋是最佳处理方案。目前, 东电公司对福岛第一核电站的核污水采用了一套完整的处理工艺, 包括锶铯吸附装置、反渗透膜除盐装置以及多核素去除装置, 以期处理后的核污水中 62 种放射性核素达到国际辐射防护委员会制定的排放标准。实际上, 根据东电公司所披露的数据显示, 该处理工艺并不能一次性有效清除核污水中所有 62 种核素, 需要经过二次处理。假设排放的福岛核污水均经过严格的处理, 且达到其公布的二次处理后的浓度水平, 我们估算了最终向海洋排放的 ^{137}Cs 为 6×10^8 Bq, ^{90}Sr 为 5×10^7 Bq, ^{60}Co 为 7×10^8 Bq, ^{14}C 为 4×10^{10} Bq 和 ^{3}H 为 1×10^{15} Bq 等。值得指出的是该处理工艺无法去除 ^{3}H 和 ^{14}C, 如处理后的氚浓度仍然高达 730 000 Bq/L。根据 UNSCEAR (2000)[52]报告指出, 在哺乳动物的实验室中研究表明氚可以诱发生物的随机效应和确定效应。因此, 对于大量排放含氚污水对周边生物健康所产生的潜在威胁仍不容忽视。当然, 除了向海洋排放这一处理方式外, 对于像氚这种半衰期较短(12.35 a)的放射性核素, 也可采取放置待其完全衰变, 因为在放置 60 a 后, 其中 97%的氚都将衰变; 但此种方案无法解决日本目前所面临储藏罐紧张及储藏罐泄露的风险。此外, 核污水中的碳-14 和钴-60 的含量虽然低于氚的含量, 但它们在不同污水处理罐中的含量可能存在很大差异, 并且需要更长的时间衰变, 且与海洋生物如鱼类具有很强的亲和力, 对人类具有潜在的毒性。例如, 碳-14 在鱼体内的生理浓度可能是氚的 5 万倍。而钴-60 能在海底沉积物中富集, 浓度可能会上升 30 万倍。这就使得我们有必要对核污染水进行多次处理, 且对处理后的所有样本中的核素进行确认, 同时也应扩大测量项目, 将钚等可能存在的放射性核素也纳入其中。

根据上面关于福岛核事故时的研究结果分析可知, 福岛核污水通过表层环流和模态水进入中国海的时间尺度则分别在 10~15 a 和 2~3 a 之间, 这势必对中国海的海洋环境造成以下几方面的不利影响。(1) 长期影响我国海洋环境: 2011 年 3 月福岛核事故表现为短期集中排放, 对海洋影响呈逐渐降低的特征。而福岛核污水排放是一个中长期持续排放, 对海洋影响呈逐渐累积的趋势。(2) 影响我国渔业资源: 鱼类受到高于有效剂量的辐射将导致生命力下降, 破坏其组织和细胞再生功能, 造成鱼类种类和数量的减少。福岛核污水的排放区域位于全球重要的海洋渔场-北太平洋渔场, 我国在北太平洋渔场的主要渔业资源包括太平洋巴特柔鱼、太平洋褶柔鱼和秋刀鱼等。我国沿海捕捞产量较高的鲐鱼、竹荚鱼、鳗鲡、太平洋褶柔鱼、远东拟沙丁鱼、秋刀鱼等渔业资源的洄游路线经过日本沿海时也会受到福岛核污水排放的影响, 使得这些渔业资源遭受放射性污染, 甚至影响全球的鱼类迁徙。(3) 影响食品安全和人类健康: 海洋环境和海洋生物中的放射性核素, 通过生物富集和食物链富集效应进入海洋水产食品。人们食用污染的水产品后放射性核素会在人体内累积, 长期食用会引起慢性疾病, 甚至致癌。福岛核事故后, 研究者在福岛附近海区的浮游动物和鱼体中检测到 Cs 同位素和 ^{110m}Ag[3]; 另外, 不同生物体对不同核素具有不同的富集能力, 如 2011 年 6 月在福岛附近海域的鱿鱼和蟹中未检测到 Cs 同位素, 但检测到 ^{110m}Ag[53]。已有研究表明, 福岛核事故发生十多年后, 福岛附近海域海洋生物体内的放射性核素水平已经显著下降, 但仍有个别放射性核素含量超标[4]。2019 年, 东京电力公司调查报告显示, 相关海域发现的黑石斑鱼核辐射含量高出当地

标准 18 倍; 2021 年, 报道显示黑石斑鱼核辐射含量高出当地标准 10 倍。食用我国渔业捕捞或国外进口的核污染水产品, 都会对我国人们生命健康构成威胁。(4) 海底沉积物是放射性颗粒物进一步封存的重要场所, 并将成为海底生物生活和摄食的主要场所[54]。通过生物扰动可使沉积物中的放射性核素快速向下混合, 有助于降低表层沉积物放射性核素浓度, 减少沉积物-水界面的生物吸收, 但生物扰动也可以使污染沉积物在数年到数十年的时间尺度上重新返回海水中[55]。所以, 沉积物再悬浮、生物扰动和沉积物孔隙水交换将会影响放射性核素在沉积物中的分布, 海底沉积物中的放射性物质可成为一个长期的污染源。

4 结论及展望

2011 年福岛第一核电站事故发生后, 纵观近 10 a 来对中国海人工放射性核素的研究, 福岛第一核电站产生的放射性核素进入海洋后传输到中国海的途径主要为表层流和模态水。经表层流达到中国海的时间大约在 10~15 a 时间尺度, 同时考虑到海水稀释作用的影响, 通过海洋表层慢速输运途径进入中国海的影响有待长期观测研究, 同时如何甄别福岛第一核电站事故产生的放射性物质信号也是一大研究方向。经模态水到达中国海的时间较短, 为 2~3 a 的时间尺度, 因此, 加强北太平洋副热带模态水放射性物质的长期监测和水团运动是一个主要的研究方向, 这也包括该海区海洋经济生物物种放射性核素的监测。这些研究为福岛核污水排海的传输路径和传输时间的研究提供了借鉴。特别需要指出的是, 核废水排海后对太平洋生态环境和中国海的影响仍需要长期监测、观测和综合研究。

截至目前, 鉴于有限的监测站位和短期的观测时间, 福岛第一核电站事故释放的 ^{134}Cs 对中国海影响程度大小还有待于长期的观测和评估; 同时考虑到大部分放射性核素的半衰期较长、经海洋表层和海洋内部传输的两种途径仍可持续输入、放射性核素经生物富集及食物链传递所产生的影响也不明确,加强和建立西北太平洋与中国管辖海域人工放射性核素的长期监测、科技支撑和研究势在必行, 这既能丰富中国海人工放射性核素的背景资料, 也为未来应对核事故应急及发生的相关海洋放射性科学研究提供基础。与此同时, 提升快速、准确监测、检测能力、建立快速风险评估体系是当前必须重视和大力提倡开展的工作, 以便为政府部门决策提供基础。最后, 加强我国核污染的科学传播, 包括正确的宣传和科普工作, 提高公民对核事故及核污染的认知。

参考文献:

[1] STEINHAUSER G, BRANDL A, JOHNSON T. Comparison of the Chernobyl and Fukushima nuclear accidents: a review of the environmental impacts[J]. Science of the Total Environment, 2014, 470/471: 800-817.

[2] MORINO Y, OHARA T, NISHIZAWA M. Atmospheric behavior, deposition, and budget of radioactive materials from the Fukushima Daiichi nuclear power plant in March 2011[J]. Geophysical Research Letters, 2011, 38: 1-7.

[3] BUESSELER K, AOYAMA M, FUKASAWA M. Impacts of the Fukushima nuclear power plants on marine radioactivity[J]. Environmental Science & Technology, 2011, 45: 9931-9935.

[4] BUESSELER K, DAI M H, AOYAMA M, et al. Fukushima Daiichi-derived radionuclides in the ocean: transport, fate and impacts[J]. Annual Review Marine Science, 2017, 9: 173-203.

[5] YOSHIDA N, KANDA J. Tracking the Fukushima radionuclides[J]. Science, 2012, 336: 1115-1116.

[6] KANDA J. Continuing ^{137}Cs release to the sea from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant through 2012[J]. Biogeosciences, 2013, 10: 6107-6113.

[7] STEINHAUSER G. Fukushima's forgotten radionuclides: a review of the understudied radioactive emissions[J]. Environmental Science & Technology, 2014, 48: 4649-4663.

[8] BUESSELER K. Fukushima and ocean radioactivity[J]. Oceanography, 2014, 27(1): 92-105.

[9] 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[J]. 科学通报, 2011, 56: 887-894.
QIAO Fangli, WANG Guansuo, ZHAO Wei, et al. Predicting the spread of nuclear radiation from the damaged Fukushima Nuclear Power Plant[J]. Chinese Science Bulletin, 2011, 56: 887-894.

[10] 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[J]. Chinese Science Bulletin, 2013, 58: 552-558.

[11] THAKUR P, BALLARD S, NELSON R. An overview of Fukushima radionuclides measured in the northern hemisphere[J]. Science of the Total Environment, 2013, 458/460: 577-613.

[12] 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[J]. Geophysical Resarch Letters, 2012, 39: 1-6.

[13] BOWYER T W, BIEGALSKI S R, COOPER M, et al. Elevated radioxenon detected remotely following the Fukushima nuclear accident[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2011, 102: 681-687.

[14] MANOLOPOULOU M, VAGENA E, SYOULOS S, et al. Radioiodine and radiocesium in Thessaloniki, Greece due to the Fukushima nuclear accident[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2011, 102: 796-797.

[15] HUH C A, HSU S C, LIN C Y. Fukushima-derived fission nuclides monitored around Taiwan: free tropospheric versus boundary layer transport[J]. Earth and Planetary Science Letters, 2012, 319/320: 9-14.

[16] MASSON O, BAEZA A, BIERINGER J, et al. Tracking of airborne radionuclides from the damaged Fukushima Dai-Ichi nuclear reactors by European networks[J]. Environmental Science & Technology, 2011, 45: 7670-7677.

[17] INOUE M, KOFUJI H, HAMAJIMA Y, et al. ^{134}Cs and ^{137}Cs activities in coastal seawater along northern Sanriku and Tsugaru Strait, northeastern Japan, after Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2012, 111: 116-119.

[18] LUJANIENE G, BYCENKIENE S, POVINEC P, et al. Radionuclides from the Fukushima accident in the air over Lithuania: measurement and modelling approaches[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2012, 114: 71-80.

[19] MIN B I, PERIANEZ R, KIM I G, et al. Marine dispersion assessment of ^{137}Cs released from the Fukushima nuclear accident[J]. Marine Pollution Bulletin, 2013, 72: 22-33.

[20] EVANGELIOU N, BALKANSKI Y, COZIC A, et al. How “lucky” we are that the Fukushima disaster occurred in early spring: predictions on the contamination levels from various fission products released from the accident and updates on the risk assessment for solid and thyroid cancers[J]. Science of the Total Environment, 2014, 500: 155-172.

[21] KAERIYAMA H, AMBE D, SHIGENOBU Y, et al. ^{134}Cs and ^{137}Cs in Seawater around Japan after the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident[J]. Umi Kenkyu, 2014, 23: 127-146.

[22] KUMAMOTO Y, AOYAMA M, HAMAJIMA Y, et al. Southward spreading of the Fukushima-derived radiocesium across the Kuroshio extension in the North Pacific[J]. Scientific Reports, 2014, 4: 4276.

[23] 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, 2012, 111: 100-108.

[24] BUESSELER K, JAYNE S R, FISHER N S, et al. Fukushima-derived radionuclides in the ocean and biota off Japan[J]. Proceedings of the National Academy of the Sciences of the United States of America, 2012, 109: 5984-5988.

[25] MIZUNO K, WHITE W B. Annual and interannual variability in the Kuroshio current system[J]. Journal of Physical Oceanography, 1983, 13: 1847-1867.

[26] RYPINA I I, JAYNE S R, YOSHIDA S, et al. Short-term dispersal of Fukushima-derived radionuclides off Japan: modeling efforts and model-data intercomparison[J]. Biogeosciences, 2013, 10: 4973-4990.

[27] KAWAMURA H, KOBAYASHI T, FURUNO A, et al. Preliminary numerical experiments on oceanic dispersion of ^{131}I and ^{137}Cs discharged into the ocean because of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant disaster[J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2011, 48: 1349-1356.

[28] SMIITH J N, BROWN R M, WILLIAMS W J, et al. Arrival of the Fukushima radioactivity plume in North American continental waters[J]. Proceedings of the National Academy of the Sciences of the United States of America, 2015, 112: 1310-1315.

[29] ZHAO C, WANG G, ZHANG M, et al. Transport and dispersion of tritium from the radioactive water of the Fukushima Daiichi nuclear plant[J]. Marine Pollution Bulletin, 2021, 169: 112515.

[30] YOSHIDA S, MACDONALD A M, JAYNE S R, et al. Observed eastward progression of the Fukushima ^{134}Cs signal across the North Pacific[J]. Geophysical Research Letters, 2015, 42: 7139-7147.

[31] AOYAMA M, HAMAJIMA Y, HULT M, et al. ^{134}Cs and ^{137}Cs in the North Pacific Ocean derived from the March 2011 TEPCO Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant accident, Japan. Part one: surface pathway and vertical distributions[J]. Journal of Oceanography, 2016, 72: 53-65.

[32] MEN W, HE J H, WANG F F, et al. Radioactive status of seawater in the northwest Pacific more than one year after the Fukushima nuclear accident[J]. Scientific Reports, 2015, 5: 7757.

[33] KAERIYAMA H, SHIMIZU Y, AMBE D, et al. Southwest intrusion of ^{134}Cs and ^{137}Cs derived from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident in the Western North Pacific[J]. Environmental Science &

Technology, 2014, 48: 3120-3127.

[34] DENG F, LIN F, YU W, et al. The distributions of ^{134}Cs, ^{137}Cs and ^{90}Sr in the northwest Pacific seawater in the winter of 2012[J]. Marine Pollution Bulletin, 2020, 152: 110900.

[35] INOMATA Y, AOYAMA M, HAMAJIMA Y, et al. Transport of FNPP1-derived radiocaesium from subtropical mode water in the western North Pacific Ocean to the Sea of Japan[J]. Ocean Science, 2018, 14(4): 813-826.

[36] WU J W, ZHENG J, DAI M H, et al. Isotopic composition and distribution of plutonium in northern South China Sea sediments revealed continuous release and transport of Pu from the Marshall Islands[J]. Environmental Science & Technology, 2014, 48: 3136-3144.

[37] HAO Y P, XU Y H, PAN S M, et al. Sources of plutonium isotopes and ^{137}Cs in coastal seawater of Liaodong Bay and Bohai Strait, China and its environmental implications[J]. Marine Pollution Bulletin, 2018, 130: 240-248.

[38] ZHAO L J, LIU D T, WANG J L, et al. Spatial and vertical distribution of radiocesium in seawater of the East China Sea[J]. Marine Pollution Bulletin, 2018, 128: 361-368.

[39] ZHOU P, LI D M, ZHAO L, et al. Radioactive status of seawater and its assessment in the northeast South China Sea and the Luzon Strait and its adjacent areas from 2011 to 2014[J]. Marine Pollution Bulletin, 2018, 131: 163-173.

[40] WU J W. 2018. Impacts of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident on the Western North Pacific and the China Seas: evaluation based on field observation of ^{137}Cs[J]. Marine Pollution Bulletin, 2018, 127: 45-53.

[41] ZHANG F L, WANG J L, LIU D T, et al. Distribution of ^{137}Cs in the Bohai Sea, Yellow Sea and East China Sea: sources, budgets and environmental implications[J]. Science of the Total Environment, 2019, 672: 1004-1016.

[42] WU J W, SUN J, XIAO X Y. An overview of current knowledge concerning the inventory and sources of plutonium in the China Seas[J]. Marine Pollution Bulletin, 2020, 150: 110599.

[43] WU J W, XIAO X Y, SUN J. Distribution and budget of ^{137}Cs in the China Seas[J]. Scientific Reports, 2020, 10: 8795.

[44] KIM C K, KIM C S, YUN J Y, et al. 1997. Distribution of ^{3}H, ^{137}Cs and $^{239+240}$Pu in the surface seawater around Korea[J]. Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry, 1997, 218: 33-40.

[45] YAMADA M, AONO T. Vertical profiles of $^{239+240}$Pu in seawater from the East China Sea[J]. Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry, 2003, 256: 399-402.

[46] 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[J]. Science of the Total Environment, 2006, 366: 242-252.

[47] YAMADA M, ZHENG J. Determination of ^{240}Pu/^{239}Pu atom ratio in seawaters from the East China Sea[J]. Radiation Protection Dosimetry, 2011, 146: 311-313.

[48] WU J W, DAI M H, XU Y, et al. Sources and accumulation of plutonium in a large Western Pacific marginal sea: The South China Sea[J]. Science of the Total Environment, 2018, 610/611: 200-211.

[49] YANG B L, HA Y M, JIN J. Assessment of radiological risk for marine biota and human consumers of seafood in the coast of Qingdao, China[J]. Chemosphere, 2015, 135: 363-369.

[50] NAGAYA Y, NAKAMURA K. $^{239, 240}$Pu and ^{137}Cs in the East China and the Yellow Seas[J]. Journal of Oceanography, 1992, 48: 23-35.

[51] KIM C K, KIM C S, CHANG B U, et al. Plutonium isotopes in seas around the Korean Peninsula[J]. Science of the Total Environment, 2004, 318: 197-209.

[52] UNSCEAR Report. Sources and effects of ionizing radiation[C]. United Nations scientific committee on the effects of atomic radiation exposures to the public from man-made sources of radiation: United Nations, New York, 2000.

[53] AONO T, ITO Y, SOHTOME T, et al. Observation of Radionuclides in Marine Biota off the Coast of Fukushima Prefecture After TEPCO's Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Accident[C]. Radiation Monitoring & Dose Estimation of the Fukushima Nuclear Accident. Springer, 2014.

[54] AMBE D, KAERIYAMA H, SHIGENOBU Y, et al. Five-minute resolved spatial distribution of radiocesium in sea sediment derived from the Fukushima Dai- Ichi nuclear power plant[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2014, 138: 264-275.

[55] BLACK E, BUESSELER K. Spatial variability and the fate of cesium in coastal sediments near Fukushima, Japan[J]. Biogeosciences, 2014, 11: 7235-7271.

Transport pathway of radioactive materials and nuclear sewage discharged from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident into the China Sea and its impact

WU Jun-wen[1, 2], CHEN Ji-sheng[2], ZHAO Hua-de[3], WANG Cui[4]

(1. Southern Marine Science and Engineering Guangdong Laboratory (Guangzhou), Guangzhou 511458, China; 2. Institute of Marine Sciences & Guangdong Provincial Key Laboratory of Marine Disaster Prediction and Prevention, Shantou University, Shantou 515063, China; 3. National Marine Environmental Monitoring Center, Ministry of Ecological Environment, Dalian 116023, China; 4. Third Institute of Oceanography, Ministry of Natural Resources, Xiamen 361005, China)

Received: Jun. 10, 2021
Key words: Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident; China Sea; Fukushima nuclear sewage; Kuroshio; ^{134}Cs; ^{137}Cs

Abstract: Since the occurrence of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident in March 2011, its environmental impact on the China Sea has become of considerable public concern. Based on previous studies in the past ten years, we determined that the transport pathways of radionuclides released by the FDNPP accident into the China Sea are mainly surface circulation and mode water (i.e., subtropical and central mode waters). The arrival time of the surface circulation and mode water reaching the China Sea are 10–15 and 2–3 years, respectively. Before and after the FDNPP accident, the ^{137}Cs activity in the South China Sea and the Yellow Sea showed minor variation, whereas the ^{137}Cs activity in the East China Sea showed a slight increase. However, given the limited monitoring stations and short observation time, the impact of the FDNPP accident on the China Sea needs long-term monitoring and further evaluation. Meanwhile, we identified potential risks and future research directions of the FDNPP nuclear sewage disposal plan announced by the Japanese government. Furthermore, this study can provide a scientific basis for future research on Fukushima's nuclear sewage discharge.

(本文编辑: 康亦兼)