

林武辉, 何建华, 余克服, 等. 海洋中<sup>90</sup>Sr: 日本周边海域与南海的对比[J]. 海洋学报, 2020, 42(10): 47–58, doi:10.3969/j.issn.0253-4193.2020.10.005

Lin Wuhui, He Jianhua, Yu Kefu, et al. <sup>90</sup>Sr in marine environment: Comparison of seas surrounding Japan and the South China Sea[J]. Haiyang Xuebao, 2020, 42(10): 47–58, doi:10.3969/j.issn.0253-4193.2020.10.005

## 海洋中<sup>90</sup>Sr: 日本周边海域与南海的对比

林武辉<sup>1,2</sup>, 何建华<sup>3</sup>, 余克服<sup>1,2\*</sup>, 杜金秋<sup>4</sup>, 邓芳芳<sup>3</sup>, 梁林<sup>1</sup>, 李俊怡<sup>1</sup>,  
何贤文<sup>5</sup>, 陈宝才<sup>5</sup>, 冯亮亮<sup>5</sup>

(1. 广西大学 海洋学院, 广西南宁 530004; 2. 广西南海珊瑚礁研究重点实验室, 广西南宁 530004; 3. 自然资源部第三海洋研究所, 福建厦门 361005; 4. 国家海洋环境监测中心, 辽宁大连 116023; 5. 广西壮族自治区辐射环境监督管理站, 广西南宁 530222)

**摘要:** <sup>90</sup>Sr 长期被视为最重要的人工放射性核素之一, 日本福岛核事故导致包括 <sup>90</sup>Sr 在内的大量放射性物质泄漏进入海洋, 厂区储水罐中冷却废水至今仍然存在大量 <sup>90</sup>Sr。海洋中 <sup>90</sup>Sr 分析方法却繁琐耗时, 导致核事故后的 <sup>90</sup>Sr 研究较为匮乏, 且缺乏系统的认识。本研究在 2015–2018 年期间测量南海海水和多种海洋生物(马尾藻、海虾、牡蛎、红树林植物、造礁珊瑚)中 <sup>90</sup>Sr 的基础上, 深入分析核事故后日本周边海域和南海 <sup>90</sup>Sr 的比活度水平与环境半衰期。结合文献资料, 本研究发现 1975–2010 年期间日本近岸海水 <sup>90</sup>Sr 的环境半衰期为 15.4 a, 2011 年的核事故后日本周边海洋中 <sup>90</sup>Sr 比活度显著升高, 基于 ERICA 软件定量计算核事故后 <sup>90</sup>Sr 对海洋鱼类的剂量率比核事故前的结果高 5 个数量级。南海作为福岛核事故后北太平洋环流的下游海域, 本文进一步构建 1984–2018 年期间南海 <sup>90</sup>Sr 比活度的历史曲线, 发现核事故前后南海 <sup>90</sup>Sr 比活度水平没有可识别的变化, 进一步定量计算南海 <sup>90</sup>Sr 的环境半衰期为 26.7 a, 发现边缘海和大洋中 <sup>90</sup>Sr 和 <sup>137</sup>Cs 环境半衰期格局差异与核素 (<sup>90</sup>Sr 和 <sup>137</sup>Cs) 的源汇过程(河流输入和海洋生物泵)密切相关。鉴于海洋中 <sup>90</sup>Sr 分析方法的挑战性, 本文发现在 10 多种海洋生物中造礁珊瑚骨骼几乎拥有最高的 <sup>90</sup>Sr 浓集因子(约 1 000 L/kg), 同时具有较易大量获取、固定附着生长、连续高分辨率记录、前处理简单快速等优点, 很可能是海洋中 <sup>90</sup>Sr 可靠的指示生物。造礁珊瑚中 <sup>90</sup>Sr 研究将有利于揭示人工放射性核素的源汇过程, 同时为我国海洋放射性监测方案和相关标准导则的优化和完善提供有益的参考。

**关键词:** 福岛核事故; 放射性; 海水; 生物; 沉积物; 造礁珊瑚

中图分类号: P714<sup>+</sup>.4; P734.2<sup>+</sup>4

文献标志码: A

文章编号: 0253-4193(2020)10-0047-12

### 1 引言

2011 年 3 月日本福岛核事故(Fukushima Nuclear Accident, FNA)导致大量放射性物质进入海洋环境, 引起全世界的广泛关注<sup>[1-4]</sup>, 其中海洋中 <sup>90</sup>Sr 的排放量达到  $1 \times 10^{15}$  Bq<sup>[5]</sup>。<sup>90</sup>Sr 物理半衰期为 28.8 a, 容易进入

骨骼且停留时间超过 10 a, 被划分为高毒放射性核素, 是核事故后环境放射性测量与评估中重要的人工放射性核素<sup>[6-9]</sup>。福岛核事故排放的放射性物质在一段时间内显著提高了日本周边海域(Seas Surrounding Japan, SSJ)的海水<sup>[5, 10-12]</sup>、海洋沉积物<sup>[13-14]</sup>、海洋生物<sup>[15]</sup>中 <sup>90</sup>Sr 的比活度水平, 特别是海洋生物中 <sup>90</sup>Sr 还可以

收稿日期: 2020-04-02; 修订日期: 2020-07-19。

基金项目: 国家自然科学基金项目(41906043); 广西自然科学基金(2017GXNSFBA198096, 2019GXNSFAA185006)。

作者简介: 林武辉(1987—), 男, 福建省泉州市人, 博士, 主要从事海洋过程的同位素示踪、海洋放射性监测与评价研究。E-mail: linwuhui8@163.com

\* 通信作者: 余克服(1969—), 男, 湖北省公安县人, 教授, 主要从事珊瑚礁地质与生态环境研究。E-mail: kefuyu@scsio.ac.cn

通过食物链的传递对人类健康构成一定的威胁<sup>[16-17]</sup>。

在化学组分复杂的海洋环境中,影响海洋中<sup>90</sup>Sr测量的干扰元素众多,导致<sup>90</sup>Sr分析方法繁琐耗时<sup>[8-9, 18]</sup>,福岛核事故后海洋中<sup>90</sup>Sr的研究也远少于<sup>137</sup>Cs<sup>[1, 16, 19]</sup>。福岛核事故后<sup>90</sup>Sr的实测数据是后果评估的重要依据,然而目前海洋中<sup>90</sup>Sr的测量结果仍然较为匮乏与分散,长时间系列的连续观测数据更是稀缺,进一步限制对海洋中<sup>90</sup>Sr的系统认知。

南海(South China Sea, SCS)是我国最大的边缘海,是北太平洋环流的下游海域,与北太平洋存在密切的水体交换过程<sup>[20]</sup>,放射性物质(<sup>239+240</sup>Pu和<sup>137</sup>Cs)可以通过黑潮进入南海<sup>[21-24]</sup>。然而,福岛核事故前后的南海<sup>90</sup>Sr研究很少报道。比活度和环境半衰期(Environmental Half-Life, EHL)是两个重要的特征参数。<sup>90</sup>Sr的比活度水平是判断是否受到核事故影响的直接证据,EHL则是模型中预测核素在环境中比活度水平的关键参数,是在时间系列观测中物理-生物地球化学过程(如公式(1))对环境中的核素的综合清除能力的定量指标<sup>[25]</sup>,EHL可能小于物理半衰期,也可能大于物理半衰期。

$$\frac{dA}{dt} = D \frac{\partial^2 A}{\partial x^2} + u \frac{\partial A}{\partial x} - \lambda A - kA + S, \quad (1)$$

式中, $A$ 代表比活度(单位: Bq/kg), $D$ 和 $u$ 代表水体中的扩散系数(单位:  $\text{cm}^2/\text{s}$ )和流速(单位:  $\text{cm}/\text{s}$ ), $\lambda$ 代表物理衰变常数, $k$ 代表生物地球化学清除过程的速率常数(比如,海洋生物泵), $S$ 代表源项(比如,河流输入)。

因此,本文在2015-2018年期间测量南海海水和多种海洋生物(马尾藻、海虾、牡蛎、红树林、造礁珊瑚)中<sup>90</sup>Sr的基础上,试图构建1984-2018年期间南海<sup>90</sup>Sr比活度的长时间系列的历史曲线;对比分析福岛核事故后日本周边海域和南海<sup>90</sup>Sr的特征(比活度水平、环境半衰期);基于海水、沉积物、海洋鱼类中<sup>90</sup>Sr实测数据利用国际原子能机构(IAEA)推荐的欧盟项目(Environmental risks from ionising radiation: assessment and management)所开发的ERICA软件定量计算福岛核事故前后<sup>90</sup>Sr对海洋鱼类的辐射影响<sup>[26]</sup>;解析南海和大洋中<sup>90</sup>Sr和<sup>137</sup>Cs的源汇差异;通过对比10多种海洋生物,指出造礁珊瑚骨骼几乎拥有最高的<sup>90</sup>Sr浓集因子(约1000 L/kg),可能是海洋中<sup>90</sup>Sr可靠的指示生物,以期为我国的海洋放射性监测方案和标准的优化与完善提供有益的借鉴参考。

## 2 海洋中<sup>90</sup>Sr分析方法

### 2.1 南海北部湾<sup>90</sup>Sr分析方法

本研究于2015-2018年期间在北部湾防城港核

电站(21.68°N, 108.55°E)周边海域采集40 L海水,同时获得多种海洋生物(马尾藻、海虾、牡蛎、红树林植物、造礁珊瑚)。海水中<sup>90</sup>Sr分析方法如下:海水采样后,立即用浓 $\text{HNO}_3$ 将海水pH调为约1.0。返回实验室后,添加200 mg  $\text{Sr}^{2+}$ 和40 mg  $\text{Y}^{3+}$ 的载体至海水样品中,搅拌2 h使其混合均匀,加入200 g  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 和30 g  $\text{NH}_4\text{Cl}$ 于海水中,形成沉淀。收集沉淀,用6 mol/L  $\text{HNO}_3$ 溶解,并调节至pH=1.0。用10%的二-(2-乙基己基)磷酸(HDEHP)与正庚烷混合液萃取<sup>90</sup>Y,进一步用6 mol/L  $\text{HNO}_3$ 进行反萃,加入浓氨水在pH范围8.0~9.0条件下形成沉淀。沉淀用浓硝酸溶解,在pH=1.0的条件下加入饱和草酸,获得草酸铯沉淀(含<sup>90</sup>Y和Y)。称量草酸铯沉淀,计算Y的化学回收率,并用流气式低本底 $\beta$ 计数器(MPC9604, ORTEC)测量<sup>90</sup>Y。此方法顺利通过2016年IAEA举办的海水<sup>90</sup>Sr测量的国际比对<sup>[6]</sup>。生物样品中<sup>90</sup>Sr分析方法与海水类似,采用HDEHP萃取- $\beta$ 计数法<sup>[17]</sup>,需要先对生物进行解剖,并根据需要再将生物分为肌肉部分(可食部分)、内脏部分、骨骼部分等,然后进一步碳化、灰化、消解。样品中的<sup>90</sup>Sr比活度及其不确定度由式(2)及式(3)计算:

$$A_0 = \frac{n_1 - n_0}{\varepsilon \eta V} \times \frac{\lambda_1 T}{1 - e^{-\lambda_1 T}} \times e^{\lambda_1(t_2 - t_1)} \times e^{\lambda_0(t_1 - t_0)}, \quad (2)$$

$$\delta A_0 = A_0 \times \sqrt{\frac{n_1 + n_0}{T(n_1 - n_0)^2} + \left(\frac{\delta \varepsilon}{\varepsilon}\right)^2}, \quad (3)$$

式中, $A_0$ 和 $\delta A_0$ 代表采样时刻<sup>90</sup>Sr的比活度和不确定度; $n_1$ ,  $n_0$ 分别表示样品计数率和本底计数率; $\varepsilon$ ,  $\eta$ ,  $V$ 分别代表<sup>90</sup>Y探测效率、<sup>90</sup>Y回收率和海水体积(生物样品则用鲜重); $T$ 是草酸铯样品测量时间; $t_0$ ,  $t_1$ ,  $t_2$ 分别代表采样时刻、<sup>90</sup>Sr-<sup>90</sup>Y分离时刻、<sup>90</sup>Y测量时刻; $\lambda_0$ 和 $\lambda_1$ 分别代表<sup>90</sup>Sr和<sup>90</sup>Y的衰变常数; $\delta \varepsilon$ 代表<sup>90</sup>Y探测效率的不确定度。

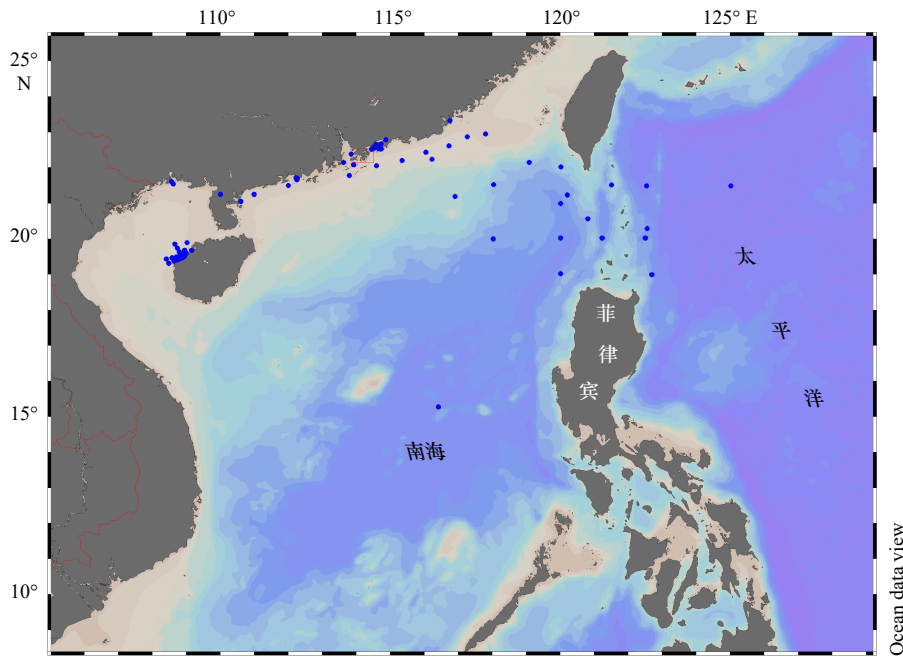
### 2.2 南海<sup>90</sup>Sr历史数据汇总

本研究在测量2015-2018年期间南海北部湾海水<sup>90</sup>Sr的基础上,系统地收集1984-2018年期间南海海水<sup>90</sup>Sr的历史数据<sup>[27-41]</sup>,深入分析南海<sup>90</sup>Sr的EHL,其中<sup>90</sup>Sr站位空间分布如图1。

## 3 日本周边海域中<sup>90</sup>Sr特征与福岛核事故影响

### 3.1 海水中<sup>90</sup>Sr

福岛核事故发生后,<sup>90</sup>Sr泄漏进入海洋环境中,福岛核电站排水口周边海水中<sup>90</sup>Sr的比活度从 $4.00 \times 10^5 \text{ Bq}/\text{m}^3$ 的高值不断通过扩散稀释而下降<sup>[5]</sup>。日本周

图1 南海<sup>90</sup>Sr 站位(蓝点)空间分布Fig. 1 Stations (blue dots) of <sup>90</sup>Sr in the South China Sea

边海域的海水中<sup>90</sup>Sr 比活度在空间上差别较大,与采样时间也密切相关。因此,本文将福岛核事故后日本周边海域的海水<sup>90</sup>Sr 比活度列于表1中,可以看出相对于核事故前的日本周边海域的海水中<sup>90</sup>Sr 比活度(约 1.00 Bq/m<sup>3</sup>)<sup>[5]</sup>,日本周边海域中<sup>90</sup>Sr 比活度均有显著的上升。

自 1965 年起,日本周边海域的海水<sup>90</sup>Sr 已经拥有

较长的连续监测记录<sup>[46]</sup>,笔者进一步将 1965 年以来日本周边海域<sup>90</sup>Sr 的年度平均值进行汇总如图 2。1965–2010 年期间日本周边海域中海水<sup>90</sup>Sr 比活度总体上呈现指数下降趋势,进一步拟合计算 1975–2010 年期间海水<sup>90</sup>Sr 的 EHL 为 15.4 a,该结果与西北太平洋的大洋区域<sup>90</sup>Sr 的 EHL(14.4~16.2 a)极为接近<sup>[25]</sup>,也间接说明日本近岸海水与西北太平洋海水存在较

表 1 福岛核事故后日本周边海域的海水中<sup>90</sup>Sr 的比活度Table 1 <sup>90</sup>Sr activity in seawater from the sea surrounding Japan after the Fukushima Nuclear Accident

样品来源	年份	位置	比活度范围/Bq·m <sup>-3</sup>	平均值/Bq·m <sup>-3</sup>	参考文献
福岛核电站附近海水	2011	37.40°N, 141.20°E	200.00~4.00×10 <sup>5</sup>	—	[5]
福岛外海海水(15 km外)	2011	37.50°N, 141.20°E	10.00~9.00×10 <sup>3</sup>	—	[5]
日本近海海水样品	2011	34.00~38.00°N, 141.00~148.00°E	0.80~85.00	—	[10]
福岛核电站附近海水	2011	36.25~41.10°N, 141.00~141.20°E	6.00~104.00	—	[42]
	2012	36.25~41.10°N, 141.00~141.20°E	2.00~53.00	—	[42]
	2013	36.25~41.10°N, 141.00~141.20°E	3.00~42.00	—	[42]
福岛核电站附近海水	2013	36.60~37.60°N, 141.00~141.50°E	0.66~29.13	6.66	[43]
福岛核电站附近海水	2013	37.40°N, 141.10°E	154.20~172.30	160.20	[44]
福岛核电站附近海水	2013	37.00~38.37°N, 141.02~141.50°E	0.60~8.90	—	[12]
福岛核电站附近海水	2014	37.43°N, 141.04°E	—	26.00	[45]
福岛核电站附近海水	2015	37.43°N, 141.04°E	—	1.53	[45]
福岛核电站附近海水	2016	37.43°N, 141.04°E	—	1.03	[45]

注:—表示参考文献并未给出具体数据。

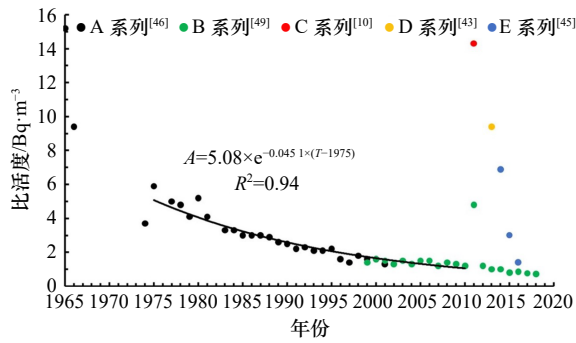


图2 1965–2018年日本周边海域的海水<sup>90</sup>Sr比活度的历史曲线

Fig. 2 Historical <sup>90</sup>Sr activity in seawater from the sea surrounding Japan during 1965–2018

为强烈的混合交换过程,导致二者海水中<sup>90</sup>Sr信号的变化较为同步。海水中<sup>90</sup>Sr的EHL(15.4 a)小于<sup>90</sup>Sr的物理半衰期(28.8 a),也进一步说明除了物理衰变过程之外海洋环境中<sup>90</sup>Sr还存在稀释扩散的物理过程和放射虫(产生SrSO<sub>4</sub>晶体)等生物的清除过程<sup>[47]</sup>,降低海水中<sup>90</sup>Sr比活度。此外,日本周边海域中<sup>90</sup>Sr的EHL(15.4 a)低于波罗的海中<sup>90</sup>Sr的EHL(50.3 a)<sup>[48]</sup>,说明在边缘海和大洋中<sup>90</sup>Sr的物理-海洋生物地球化学过程存在较大差异。

福岛核事故发生后,日本周边海域的海水中<sup>90</sup>Sr在一段时间内存在显著升高的特征<sup>[5, 10]</sup>,5 a之后IAEA

和日本的监测结果显示<sup>90</sup>Sr已经显著下降并接近核事故之前的<sup>90</sup>Sr本底水平(约1.00 Bq/m<sup>3</sup>)<sup>[42, 45, 49]</sup>,且低于1998–2016年期间波罗的海中海水<sup>90</sup>Sr比活度(5.60~8.70 Bq/m<sup>3</sup>)<sup>[48]</sup>。

### 3.2 海洋沉积物中<sup>90</sup>Sr

沉积物是海洋中许多放射性核素的归宿,同时也可以成为海水中放射性核素的“二次污染源”<sup>[50–53]</sup>。核事故早期,<sup>90</sup>Sr从海水逐渐清除进入沉积物中,模型预测核事故之后沉积物中放射性核素可以再次进入上覆海水<sup>[54]</sup>。目前福岛周边海域中沉积物中<sup>137</sup>Cs实测数据已经证实沉积物从核事故早期的“汇”成为上覆海水的“二次污染源”<sup>[55]</sup>。然而,由于沉积物中<sup>90</sup>Sr测量方法相比海水的<sup>90</sup>Sr测量更加复杂,核事故后海洋沉积物中<sup>90</sup>Sr数据更加稀缺。表2给出福岛核事故后日本周边海域的海洋沉积物样品中<sup>90</sup>Sr的比活度范围与平均值,均高于事故前的沉积物中<sup>90</sup>Sr的本底比活度0.13 Bq/kg<sup>[13–14]</sup>。虽然这些沉积物中的<sup>90</sup>Sr比活度有所升高,但是与2005–2008年期间波罗的海的海洋沉积物中<sup>90</sup>Sr比活度水平(2.10~4.70 Bq/kg)相当,甚至更低<sup>[56]</sup>。

### 3.3 海洋生物中<sup>90</sup>Sr

福岛核事故来源的<sup>90</sup>Sr也会进入海洋生物体内,参与食物链传递<sup>[16]</sup>。部分研究报道指出海洋鱼类和贝类都检测出高于事故前本底水平的<sup>90</sup>Sr<sup>[15, 17, 42, 57]</sup>。表3

表2 福岛核事故后日本周边海域的海洋沉积物中<sup>90</sup>Sr比活度

Table 2 <sup>90</sup>Sr activity in marine sediment from the sea surrounding Japan after the Fukushima Nuclear Accident

样品来源	年份	经纬度	比活度范围/Bq·kg <sup>-1</sup>	平均值/Bq·kg <sup>-1</sup>	参考文献
日本太平洋沿岸海洋沉积物	2011	37.13°N, 141.00°E	3.20~5.60	4.16	[14]
日本茨城县近岸沉积物	2012	36.37°N, 140.84°E	0.13~0.26	–	[13]

注:–表示参考文献并未给出具体数据。

表3 福岛核事故后日本周边海域的海洋生物中<sup>90</sup>Sr的比活度

Table 3 <sup>90</sup>Sr activity in marine biotas from the sea surrounding Japan after the Fukushima Nuclear Accident

样品来源	年份	经纬度	比活度范围/Bq·kg <sup>-1</sup>	平均值/Bq·kg <sup>-1</sup>	参考文献
福岛核电站港湾内海洋鱼类	2013	37.40°N, 141.00°E	<170.00	–	[57]
福岛外海海洋鱼类	2011–2014	37.20~37.50°N, 140.90~141.20°E	<1.20	–	[15]
	2011	36.25~41.10°N, 141.00~141.20°E	0.13×10 <sup>-1</sup> ~1.91×10 <sup>-1</sup>	–	[42]
海洋贝类	2012	36.25~41.10°N, 141.00~141.20°E	0.29×10 <sup>-1</sup> ~0.85×10 <sup>-1</sup>	–	[42]
	2013	37.40°N, 141.00°E	0.57×10 <sup>-1</sup>	0.57×10 <sup>-1</sup>	[42]
西北太平洋海洋生物	2012	–	0.01~0.19	–	[17]

注:–表示参考文献并未给出具体数据。

列出了日本周边海域海洋生物中<sup>90</sup>Sr的比活度范围与平均值,均高于该海域核事故前的生物中<sup>90</sup>Sr比活度( $7.10 \times 10^{-3}$  Bq/kg)<sup>[16]</sup>,污染严重的福岛核电站港湾内部分海洋鱼类体内的<sup>90</sup>Sr最高可达170.00 Bq/kg<sup>[57]</sup>。Sr与Ca属于同主族,容易进入骨骼中,部分学者发现海洋鱼类的骨骼中<sup>90</sup>Sr比活度显著高于肌肉组织的<sup>90</sup>Sr水平<sup>[16, 58-59]</sup>。

### 3.4 基于ERICA的海洋鱼类中<sup>90</sup>Sr辐射剂量评价

为了评估福岛核事故后排放的<sup>90</sup>Sr对海洋鱼类的影响,我们根据所收集核事故前后的海水、海洋沉积物、海洋鱼类中<sup>90</sup>Sr比活度的最大值(表4),利用ERICA软件较为保守地定量计算核事故前后<sup>90</sup>Sr对海洋底栖鱼类和游泳鱼类的辐射剂量<sup>[60]</sup>。结果如表4所示,核事故后<sup>90</sup>Sr对海洋中底栖鱼类和游泳鱼类的剂量率为 $1.12 \times 10^{-1}$  μGy/h和 $1.16 \times 10^{-1}$  μGy/h,比核事故前的本底水平(约 $10^{-6}$  μGy/h)高出5个量级,但是仍小于欧盟推荐的无效应剂量率阈值(10 μGy/h)<sup>[61]</sup>。本文也发现核事故后<sup>90</sup>Sr对海洋鱼类的剂量率(约0.1 μGy/h)小于天然放射性核素(<sup>238</sup>U、<sup>226</sup>Ra、<sup>228</sup>Ra、<sup>40</sup>K、<sup>210</sup>Po)对海洋鱼类产生的剂量率(约25 μGy/h)<sup>[62]</sup>。综上,福岛核事故后海洋中<sup>90</sup>Sr不会对日本周边海域的海洋鱼类构成显著的电离辐射危害。值得指出的是,<sup>90</sup>Sr与Ca的行为类似,更容易在海洋鱼类的骨骼中富集<sup>[16, 59]</sup>。然而,ERICA软件将海洋鱼类整体视为一个椭球形进行剂量率的模拟计算,并没有分器官、组织开展评价,可能会低估某些器官对特定核素的高度富集效应与辐射危害。

## 4 南海<sup>90</sup>Sr的特征

南海作为我国最大的边缘海,与北太平洋存在较强的水体交换,北太平洋的放射性核素(<sup>137</sup>Cs和<sup>239+240</sup>Pu)可以通过黑潮进入南海<sup>[21-24]</sup>。南海<sup>90</sup>Sr的历史曲线构建是判断核事故来源的<sup>90</sup>Sr的重要依据,是未来东南亚区域滨海核电站和核设施快速发展背景下的海洋生态环境安全评估的科学支撑。因此,本研究在测量2015-2018年期间海水和多种海洋生物的

<sup>90</sup>Sr基础上,系统收集1984-2018年期间南海<sup>90</sup>Sr的历史数据(图1和图3),并深入分析南海<sup>90</sup>Sr特征。

在<sup>90</sup>Sr的比活度水平方面,本研究发现2015-2018年期间广西防城港核电站周边海域的海水中<sup>90</sup>Sr比活度(0.84~1.07 Bq/m<sup>3</sup>),以及前人报道2011-2014年期间南海海水<sup>90</sup>Sr范围(低于0.56~2.62 Bq/m<sup>3</sup>)<sup>[39]</sup>,均与2018年日本周边海域的海水<sup>90</sup>Sr比活度无显著差别<sup>[49]</sup>,且接近福岛核事故前的西太平洋海水<sup>90</sup>Sr的本底水平(约1.00 Bq/m<sup>3</sup>)<sup>[5]</sup>。Zhou等<sup>[39]</sup>也指出基于2011-2014年期间南海<sup>90</sup>Sr的数据无法识别来自福岛核事故的影响。值得注意的是,Deng等<sup>[63]</sup>在2012年11-12月期间发现南海海水中含有微量的<sup>134</sup>Cs(0.20 Bq/m<sup>3</sup>)<sup>[63]</sup>,黄海海域也曾报道海水中微量的<sup>134</sup>Cs(0.10~0.20 Bq/m<sup>3</sup>)<sup>[64]</sup>。这是众多关于海水放射性核素公开报道中,至今为止仅有的两例基于福岛核事故的<sup>134</sup>Cs对我国海域的影响。日本学者进一步指出福岛核事故后,福岛来源的<sup>134</sup>Cs可以通过黑潮进入黄海和日本海<sup>[65]</sup>。基于现有南海周边海域<sup>134</sup>Cs的报道<sup>[63, 66]</sup>,我们推测福岛核事故来源的<sup>134</sup>Cs和<sup>90</sup>Sr也可能通过吕宋海峡进入南海。福岛核事故后<sup>90</sup>Sr入海源项估算认为比<sup>134</sup>Cs小2~3个数量级<sup>[2]</sup>,假如根据目前黑潮海水的<sup>134</sup>Cs(约1.00 Bq/m<sup>3</sup>)和<sup>90</sup>Sr/<sup>137</sup>Cs比值(0.01)报道估算<sup>[2, 65]</sup>,黑潮中来自福岛核事故的<sup>90</sup>Sr比活度约为0.01 Bq/m<sup>3</sup>。然而,海水中<sup>90</sup>Sr的常规测量方法的不确定度往往达到0.10 Bq/m<sup>3</sup>以上,并且南海海水<sup>90</sup>Sr本身也存在一定的季节性波动(小于0.56~2.62 Bq/m<sup>3</sup>)<sup>[39]</sup>。因此,我们认为很难从海水<sup>90</sup>Sr的角度识别福岛核事故对南海的影响。

在<sup>90</sup>Sr的EHL方面,本文进一步汇总1984-2018年期间南海海水<sup>90</sup>Sr,首次较为系统地构建了南海<sup>90</sup>Sr历史曲线(图3)。总体而言,1984-2018年期间南海海水<sup>90</sup>Sr比活度存在指数下降的趋势,拟合后<sup>90</sup>Sr的EHL为26.7 a,略高于赤道太平洋<sup>90</sup>Sr的EHL(21 a±2 a)<sup>[25]</sup>。南海受到来自赤道太平洋的黑潮影响,同时南海周边又有珠江、湄公河等大河流域和众多山溪性河流的<sup>90</sup>Sr持续输入(式(1)中的源项S),二者可能共同作用并减缓南海<sup>90</sup>Sr的下降趋势,导致南海

表4 基于ERICA软件的核事故前后<sup>90</sup>Sr对海洋鱼类的电离辐射评价

Table 4 ERICA tool-derived radiation dose rate of <sup>90</sup>Sr on marine fish in pre-Fukushima and post-Fukushima eras

时间	海水中比活度/Bq·L <sup>-1</sup>	海鱼中比活度/Bq·kg <sup>-1</sup>	海洋沉积物中比活度/Bq·kg <sup>-1</sup>	剂量率/μGy·h <sup>-1</sup>	
				底栖鱼类	游泳鱼类
福岛核事故后	400.00 <sup>[5]</sup>	170.00 <sup>[57]</sup>	5.60 <sup>[14]</sup>	$1.12 \times 10^{-1}$	$1.16 \times 10^{-1}$
福岛核事故前	$1.00 \times 10^{-3}$ <sup>[5]</sup>	$7.10 \times 10^{-3}$ <sup>[16]</sup>	0.13 <sup>[13]</sup>	$7.54 \times 10^{-6}$	$4.43 \times 10^{-6}$

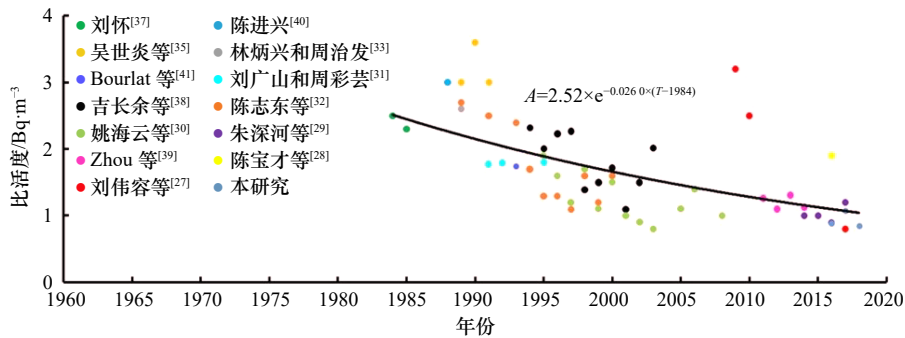


图3 1984–2018年期间南海海水<sup>90</sup>Sr的历史变化曲线

Fig. 3 Historical <sup>90</sup>Sr activity in seawater from the South China Sea during 1984–2018

<sup>90</sup>Sr的EHL接近而又略高于赤道太平洋<sup>90</sup>Sr的EHL。

<sup>90</sup>Sr和<sup>137</sup>Cs是两种最重要的人工放射性核素,二者的物理半衰期(<sup>90</sup>Sr和<sup>137</sup>Cs分别为28.8 a和30.2 a)较为接近,传统观点认为二者在海洋中都以溶解态为主且拥有非常相似的行为,进而导致在海水中拥有较为稳定的<sup>90</sup>Sr/<sup>137</sup>Cs比活度比值(约0.63)<sup>[5]</sup>。然而,前人研究计算获得南海<sup>137</sup>Cs的EHL为16.9 a<sup>[24]</sup>,却低于本文获得的南海<sup>90</sup>Sr的EHL(26.7 a)。图4进一步对比南海<sup>[24]</sup>、日本海<sup>[67]</sup>、波罗的海<sup>[48]</sup>,发现3个边缘海中<sup>90</sup>Sr的EHL均高于<sup>137</sup>Cs的EHL。边缘海的<sup>90</sup>Sr和<sup>137</sup>Cs的EHL格局(<sup>90</sup>Sr环境半衰期大于<sup>137</sup>Cs)很可能是因为陆地土壤中<sup>137</sup>Cs吸附能力高于<sup>90</sup>Sr,导致流域的<sup>90</sup>Sr更容易通过河流汇入边缘海。波罗的海已经证实河流输入的<sup>90</sup>Sr通量高于<sup>137</sup>Cs通量<sup>[48]</sup>,1963–1999年期间日本河水中<sup>90</sup>Sr活度也长期高于<sup>137</sup>Cs活度<sup>[68]</sup>,而我国多年的全国辐射环境质量报告中长江、黄河、珠江等河流的<sup>90</sup>Sr比活度也往往高于<sup>137</sup>Cs比活度<sup>[69]</sup>。因此,边

缘海中相对更高的<sup>90</sup>Sr源项(式(1))很可能导致相对更长<sup>90</sup>Sr的EHL。

然而,图4显示北太平洋、赤道太平洋、南太平洋等大洋海区<sup>90</sup>Sr的EHL却略低于<sup>137</sup>Cs的EHL<sup>[25]</sup>。大洋<sup>90</sup>Sr和<sup>137</sup>Cs的EHL格局(<sup>90</sup>Sr环境半衰期小于<sup>137</sup>Cs)可能与海洋生物泵对核素的清除过程有关。<sup>90</sup>Sr与Ca行为类似,容易进入生物矿物骨骼(颗石藻、有孔虫、放射虫)而沉降进入深层海洋和沉积物;<sup>137</sup>Cs与K行为类似,容易进入生物软组织中,然而软组织相对于生物矿物骨骼密度较低,不易沉降,容易在表层海洋再矿化和再循环,进而拥有更长的<sup>137</sup>Cs停留时间和EHL。因此,大洋中海洋生物泵对表层海水中<sup>90</sup>Sr清除过程的速率常数大于<sup>137</sup>Cs的速率常数(式(1)中的k值),导致大洋中更短的<sup>90</sup>Sr的EHL。总之,不同于传统观点,本文发现从EHL的角度可以看出边缘海和大洋中<sup>90</sup>Sr和<sup>137</sup>Cs行为存在一定差异。

## 5 海洋中<sup>90</sup>Sr的指示生物:造礁珊瑚

日本福岛核事故后,陆地环境中气溶胶<sup>[70]</sup>、土壤<sup>[71–73]</sup>、植物<sup>[74]</sup>、动物<sup>[75]</sup>、食物<sup>[76–77]</sup>都检出福岛来源的<sup>90</sup>Sr。日本学者建议将牛的牙齿作为陆地环境中<sup>90</sup>Sr的生物指示物<sup>[78]</sup>。放射性核素泄漏进入海洋环境后,也会对海洋生态环境产生一定的影响<sup>[1–2]</sup>。鉴于目前海洋中<sup>90</sup>Sr分析方法的挑战性,在复杂多样的海洋环境介质中,寻找拥有较高的<sup>90</sup>Sr浓集因子的海洋指示生物具有重要的科学意义。

福岛核事故来源的<sup>90</sup>Sr已经在海洋鱼类和海洋贝类中检出<sup>[15,42]</sup>。虽然日本学者指出海洋双壳类的软组织与海水中的<sup>90</sup>Sr比活度成正比,可以指示海水<sup>90</sup>Sr比活度,但是双壳类的软组织对海水<sup>90</sup>Sr的浓集因子仅有1.40 L/kg<sup>[42]</sup>,导致双壳类软组织中<sup>90</sup>Sr比活度较低,需要采集大量的样品进行<sup>90</sup>Sr富集,使得样品前处理和<sup>90</sup>Sr测量更加耗时困难。日本学者指出鱼类的

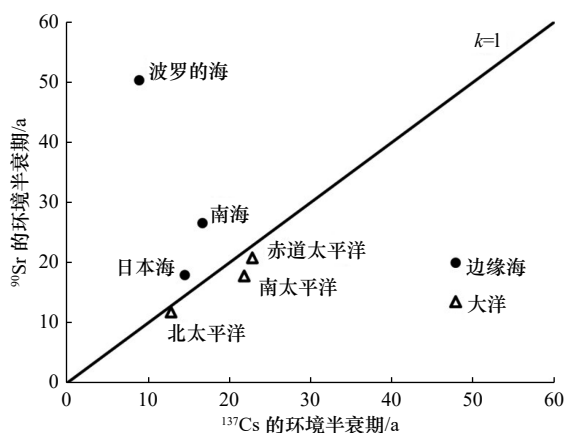


图4 <sup>90</sup>Sr和<sup>137</sup>Cs在边缘海(南海<sup>[24]</sup>、日本海<sup>[67]</sup>、波罗的海<sup>[48]</sup>)和大洋<sup>[25]</sup>的EHL格局

Fig. 4 Distinct EHL patterns of <sup>90</sup>Sr and <sup>137</sup>Cs in the marginal seas (South China Sea<sup>[24]</sup>, Japan Sea<sup>[67]</sup>, and Baltic Sea<sup>[48]</sup>) and open oceans<sup>[25]</sup>

耳石拥有更高的浓集因子, 建议将鱼类的耳石作为<sup>90</sup>Sr在海洋环境中的指示物<sup>[57]</sup>。但是, 耳石的尺寸和重量一般很小(5~240 mg), 经常难以满足常规的<sup>90</sup>Sr分析方法所要求的样品量。此外, 鱼类的洄游习性也导致鱼类耳石较难准确反映固定海域<sup>90</sup>Sr的污染现状。

本文测量南海的海水和多种海洋生物(马尾藻、海虾、牡蛎、红树林植物、造礁珊瑚)中<sup>90</sup>Sr比活度, 发现南海造礁珊瑚骨骼中<sup>90</sup>Sr的比活度为1.21 Bq/kg<sup>[79]</sup>, 高于核事故后日本近海的海洋沉积物中<sup>90</sup>Sr的比活度(0.13~0.26 Bq/kg)<sup>[13]</sup>, 高于波罗的海的海洋鱼类中<sup>90</sup>Sr比活度(0.16 Bq/kg)<sup>[59]</sup>, 也高于日本周边海域受到核事故影响的海洋鱼类中<sup>90</sup>Sr比活度(<1.2 Bq/kg)<sup>[15]</sup>。造礁珊瑚骨骼中较高的<sup>90</sup>Sr比活度, 主要由于其对<sup>90</sup>Sr高浓集因子所致。表5显示, 相比于海洋鱼类、双壳类、虾、藻等典型海洋生物, 造礁珊瑚骨骼对<sup>90</sup>Sr几乎拥有最高的浓集因子(约 $1.00 \times 10^3$  L/kg)<sup>[79, 85-86]</sup>。

本文发现基于造礁珊瑚骨骼中<sup>90</sup>Sr比活度计算获得的浓集因子与基于珊瑚骨骼中元素Sr浓度计算获得的浓集因子一致<sup>[87]</sup>。因为<sup>90</sup>Sr属于元素Sr的一种

同位素, 二者应该具有相同的化学行为和浓集因子。进一步对比有孔虫<sup>[80]</sup>、颗石藻<sup>[81]</sup>、双壳类外壳<sup>[82]</sup>、鱼类耳石<sup>[83]</sup>对元素Sr的浓集因子, 本文发现在10多种海洋生物中造礁珊瑚骨骼也几乎拥有最高的<sup>90</sup>Sr浓集因子。虽然仙掌藻也具有较高的Sr浓集因子<sup>[84]</sup>, 但是相比造礁珊瑚骨骼, 仙掌藻较难大量获取。此外, 仙掌藻表面通常附着较多杂质, 导致前处理也将更加复杂。

造礁珊瑚骨骼固定附着于海底, 可以连续高分辨记录海水中<sup>90</sup>Sr信号, 并且比较容易大量获取(一般可达kg级别), 无需长时间的烘干、碳化、灰化的前处理过程(其他海洋生物的前处理过程所消耗时间往往需要1~3 d不等)。这些优点都是其他许多海洋生物所不具备的。

因此, 在海洋中<sup>90</sup>Sr分析方法的挑战性背景下, 造礁珊瑚具有很高的<sup>90</sup>Sr浓集因子, 本文认为造礁珊瑚很可能是<sup>90</sup>Sr可靠的海洋指示生物。造礁珊瑚的生长受到温度的限制, 在我国四大海域中主要分布在南海<sup>[88]</sup>。我国的广东大亚湾核电站和海南昌江核电站周边海域都有造礁珊瑚分布, 此外我国也计划将来在

表5 海洋生物中<sup>90</sup>Sr比活度与浓集因子Table 5 <sup>90</sup>Sr activity and its concentration factor in marine biotas

海洋生物种类	<sup>90</sup> Sr比活度/Bq·kg <sup>-1</sup>	浓集因子/L·kg <sup>-1</sup>	参考文献
南海造礁珊瑚骨骼	1.21	~1.00×10 <sup>3</sup>	[79]
福岛核事故后的海洋双壳类软组织	0.01~0.17	~1.40	[42]
福岛核事故后的西北太平洋鱿鱼	0.02~0.05	4.00~19.00	[17]
福岛核事故后的西北太平洋海洋鱼类	0.01~0.06	3.00~49.00	[17]
波罗的海海洋鱼类(比目鱼) 鱼骨	0.77	81.80	[59]
波罗的海海洋鱼类(比目鱼) 肌肉	0.06	8.40	[59]
波罗的海海洋鱼类(比目鱼) 全鱼	0.16	25.40	[59]
波罗的海海洋双壳类	0.57~1.19	61.00~129.00	[56]
广西防城港核电站周边海虾	0.06~0.07	28.00~40.00	本研究
广西防城港核电站周边牡蛎	0.18	75.00	本研究
广西防城港核电站周边马尾藻	0.10	45.00	本研究
广西防城港核电站周边红树林	0.20~0.50	106.00~217.00	本研究
有孔虫	-	150.00	[80]
颗石藻	-	320.00	[81]
双壳类外壳	-	250.00	[82]
鱼类耳石	-	500.00	[83]
仙掌藻	-	1.10×10 <sup>3</sup>	[84]

注: -表示参考文献中没有<sup>90</sup>Sr的数据, 浓集因子基于元素Sr浓度计算获得。

南海珊瑚岛礁建设漂浮型核电站以解决岛礁能源问题<sup>[79, 85]</sup>。因此,造礁珊瑚作为<sup>90</sup>Sr的海洋指示生物研究探索可以进一步为我国海洋放射性监测方案和标准的优化与完善提供有益的借鉴参考,进而可为保障我国的核电海域特别是南海相关海域的生态环境安全提供技术支撑。

## 6 结论

福岛核事故发生后,日本周边海域中<sup>90</sup>Sr在一段时间内受到核事故的显著影响,ERICA软件定量计算结果显示<sup>90</sup>Sr对日本周边海洋鱼类的辐射剂量率比核事故前的本底水平高5个数量级。1975–2010年期间日本周边海水<sup>90</sup>Sr的EHL为15.4 a,与西北太平洋的大洋区域<sup>90</sup>Sr的EHL(14.4~16.2 a)极为接近,日本近岸海水与西北太平洋海水存在较为强烈的混合交换过程,有利于核事故后日本周边海域中放射性水平的快速下降。核事故发生5 a后,日本周边海域的海水<sup>90</sup>Sr已经基本接近核事故前的本底水平(约1.00 Bq/m<sup>3</sup>)。

南海作为北太平洋环流的下游海域,南海<sup>90</sup>Sr的

历史曲线是判断核事故来源的<sup>90</sup>Sr的重要依据。本研究通过大量的<sup>90</sup>Sr数据对比发现核事故前后南海海水<sup>90</sup>Sr比活度水平没有显著改变,并利用现有的黑潮<sup>134</sup>Cs和福岛源项中<sup>90</sup>Sr/<sup>137</sup>Cs比值,通过定量估算认为基于南海<sup>90</sup>Sr的常规分析方法将很难识别黑潮水体中福岛核事故来源的<sup>90</sup>Sr(约0.01 Bq/m<sup>3</sup>)对南海的影响。本文定量计算1984–2018年期间南海<sup>90</sup>Sr的EHL为26.7 a,并发现从EHL角度可以看出海洋中<sup>90</sup>Sr和<sup>137</sup>Cs行为存在一定差异,不同于海洋中<sup>90</sup>Sr和<sup>137</sup>Cs拥有类似行为的传统认识。边缘海和大洋中<sup>90</sup>Sr和<sup>137</sup>Cs的EHL存在差异与核素(<sup>90</sup>Sr和<sup>137</sup>Cs)的源汇过程(河流输入和海洋生物泵)密切相关。

鉴于目前海水中<sup>90</sup>Sr分析的挑战性,亟须寻找一种可靠的<sup>90</sup>Sr海洋指示生物。本文发现在10多种海洋生物中造礁珊瑚骨骼几乎拥有最高的<sup>90</sup>Sr浓集因子(约1.00×10<sup>3</sup> L/kg),同时具有较易大量获取、固定附着生长、连续高分辨率记录、前处理简单快速等优点,很可能是海洋中<sup>90</sup>Sr可靠的指示生物。

## 参考文献:

- [1] 林武辉, 陈立奇, 何建华, 等. 日本福岛核事故后的海洋放射性监测进展[J]. 中国环境科学, 2015, 35(1): 269–276.  
Lin Wuhui, Chen Liqi, He Jianhua, et al. Review on monitoring marine radioactivity since the Fukushima Nuclear Accident[J]. China Environmental Science, 2015, 35(1): 269–276.
- [2] Lin Wuhui, Chen Liqi, Yu Wen, et al. Radioactive source terms for the Fukushima Nuclear Accident[J]. *Science China: Earth Sciences*, 2016, 59(1): 214–222.
- [3] Lin Wuhui, Chen Liqi, Yu Wen, et al. Radioactivity impacts of the Fukushima Nuclear Accident on the atmosphere[J]. *Atmospheric Environment*, 2015, 102: 311–322.
- [4] Buesseler K, Dai Minhan, Aoyama M, et al. Fukushima daiichi-derived radionuclides in the ocean: transport, fate, and impacts[J]. *Annual Review of Marine Science*, 2017, 9: 173–203.
- [5] Povinec P P, Hirose K, Aoyama M. Radiostromtium in the western North Pacific: characteristics, behavior, and the Fukushima impact[J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, 46(18): 10356–10363.
- [6] 邓芳芳, 林武辉, 林静, 等. 海水中<sup>90</sup>Sr测量的国际比对研究[J]. 海洋环境科学, 2018, 37(3): 448–451, 463.  
Deng Fangfang, Lin Wuhui, Lin Jing, et al. International comparison of <sup>90</sup>Sr analysis in seawater[J]. *Marine Environmental Science*, 2018, 37(3): 448–451, 463.
- [7] 邓芳芳, 林武辉, 于涛, 等. 海洋沉积物中<sup>90</sup>Sr的分析方法[J]. 核化学与放射化学, 2015, 37(4): 231–237.  
Deng Fangfang, Lin Wuhui, Yu Tao, et al. <sup>90</sup>Sr analysis method in the marine sediments[J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2015, 37(4): 231–237.
- [8] Vajda N, Kim C K. Determination of radiostromtium isotopes: A review of analytical methodology[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2010, 68(12): 2306–2326.
- [9] Shao Yang, Yang Guosheng, Tazoe H, et al. A review of measurement methodologies and their applications to environmental <sup>90</sup>Sr[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2018, 192: 321–333.
- [10] Casacuberta N, Masqué P, Garcia-Orellana J, et al. <sup>90</sup>Sr and <sup>89</sup>Sr in seawater off Japan as a consequence of the Fukushima Dai-ichi nuclear accident[J]. *Biogeosciences*, 2013, 10(6): 3649–3659.
- [11] Yu Wen, He Jianhua, Lin Wuhui, et al. Distribution and risk assessment of radionuclides released by Fukushima nuclear accident at the Northwest Pacific[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2015, 142: 54–61.
- [12] Castrillejo M, Casacuberta N, Breier C F, et al. Reassessment of <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs, and <sup>134</sup>Cs in the coast off Japan derived from the Fukushima Dai-ichi nuclear accident[J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(1): 173–180.
- [13] Nagaoka M, Yokoyama H, Fujita H, et al. Spatial distribution of radionuclides in seabed sediments off Ibaraki coast after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2015, 303(2): 1305–1308.

- [14] Shozugawa K, Riebe B, Walther C, et al. Fukushima-derived radionuclides in sediments of the Japanese Pacific Ocean coast and various Japanese water samples (seawater, tap water, and coolant water of Fukushima Daiichi reactor unit 5)[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2015, 307: 1787–1793.
- [15] Miki S, Fujimoto K, Shigenobu Y, et al. Concentrations of <sup>90</sup>Sr and <sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr activity ratios in marine fishes after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident[J]. *Fisheries Oceanography*, 2017, 26(2): 221–233.
- [16] Johansen M P, Ruedig E, Tagami K, et al. Radiological dose rates to marine fish from the Fukushima Daiichi accident: the first three years across the North Pacific[J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49(3): 1277–1285.
- [17] Men Wu, Deng Fangfang, He Jianhua, et al. Radioactive impacts on nekton species in the Northwest Pacific and humans more than one year after the Fukushima nuclear accident[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2017, 144: 601–610.
- [18] 陈锦芳, 刘广山. 环境样品中<sup>90</sup>Sr的分析方法及其在海洋学研究中的应用[J]. *台湾海峡*, 2003, 22(3): 395–406.  
Chen Jinfang, Liu Guangshan. Reviews on <sup>90</sup>Sr measurement methods and applications in oceanographical research in environment[J]. *Journal of Oceanography in Taiwan Strait*, 2003, 22(3): 395–406.
- [19] Steinhäuser G. Fukushima's forgotten radionuclides: a review of the understudied radioactive emissions[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48(9): 4649–4663.
- [20] Cai Zhongya, Gan Jianping, Liu Zhiqiang, et al. Progress on the formation dynamics of the layered circulation in the South China Sea[J]. *Progress in Oceanography*, 2020, 181: 102246.
- [21] Yamada M, Zheng Jian, Wang Zhongliang. <sup>137</sup>Cs, <sup>239+240</sup>Pu and <sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>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(1): 242–252.
- [22] Yamada M, Wang Zhongliang, Zheng Jian. The extremely high <sup>137</sup>Cs inventory in the Sulu Sea: a possible mechanism[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2006, 90(2): 163–171.
- [23] Wu Junwen, Sun Jiang, Xiao Xiyu. An overview of current knowledge concerning the inventory and sources of plutonium in the China Seas[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2020, 150: 110599.
- [24] Wu Junwen. Impacts of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident on the Western North Pacific and the China seas: evaluation based on field observation of <sup>137</sup>Cs[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2018, 127: 45–53.
- [25] Povinec P P, Aarkrog A, Buesseler K O, et al. <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs and <sup>239,240</sup>Pu concentration surface water time series in the Pacific and Indian Oceans—WOMARS results[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2005, 81(1): 63–87.
- [26] Brown J E, Alfonso B, Avila R, et al. The ERICA tool[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2008, 99(9): 1371–1383.
- [27] 刘伟容, 齐宇虹, 林峰, 等. 海南昌江核电厂两次海域放射性调查结果分析[J]. *应用海洋学学报*, 2020, 39(1): 63–70.  
Liu Weirong, Qi Yuhong, Lin Feng, et al. Result analysis of two marine radioactivity surveys in the adjacent waters of Hainan Changjiang NPP[J]. *Journal of Applied Oceanography*, 2020, 39(1): 63–70.
- [28] 陈宝才, 彭崇, 周花珑, 等. 防城港核电厂运行初期周围环境中<sup>90</sup>Sr放射性水平调查[J]. *中国辐射卫生*, 2019, 28(5): 575–578.  
Chen Baocai, Peng Chong, Zhou Hualong, et al. Investigation of <sup>90</sup>Sr radioactivity level in the environment of Fangchenggang Nuclear Power Plant during initial operation period[J]. *Chinese Journal of Radiological Health*, 2019, 28(5): 575–578.
- [29] 朱深河, 陈日荣, 张家俊. 阳江核电站外围环境海水中铯-90放射性水平调查[J]. *资源节约与环保*, 2018(8): 84–85.  
Zhu Shenhe, Chen Rirong, Zhang Jiajun. Investigation on Sr-90 radioactivity level in seawater of external environment of Yangjiang Nuclear Power Plant[J]. *Resources Economization & Environmental Protection*, 2018(8): 84–85.
- [30] 姚海云, 朱玲, 周滢, 等. 1995-2009年我国近岸海域海水中放射性核素水平监测[J]. *辐射防护通讯*, 2010, 30(5): 13–17.  
Yao Haiyun, Zhu Ling, Zhou Yan, et al. Monitoring of radioactivity levels of sea water in near coast marine environment in China during 1995–2009[J]. *Radiation Protection Bulletin*, 2010, 30(5): 13–17.
- [31] 刘广山, 周彩芸. 大亚湾不同介质中<sup>137</sup>Cs和<sup>90</sup>Sr的含量及行为特征[J]. *台湾海峡*, 2000, 19(3): 261–268.  
Liu Guangshan, Zhou Caiyun. Contents and behavior characteristics of <sup>137</sup>Cs and <sup>90</sup>Sr in various mediums of Daya Bay[J]. *Journal of Oceanography in Taiwan Strait*, 2000, 19(3): 261–268.
- [32] 陈志东, 林清, 邓飞, 等. 大亚湾核电站周围海洋介质中核素<sup>90</sup>Sr、<sup>137</sup>Cs的放射性水平[C]//全国放射性流出物和环境监测与评价研讨会论文集. 北京: 中国核学会, 中国环境学会, 2003: 110–115.  
Chen Zhidong, Lin Qing, Deng Fei, et al. Radioactivity levels of nuclides <sup>90</sup>Sr and <sup>137</sup>Cs in marine media around Daya Bay Nuclear Power Plant[C]//Compilation of Papers from National Symposium on Radioactive Effluent and Environmental Monitoring and Evaluation. Beijing: China Nuclear Society, China Environmental Society, 2003: 110–115.
- [33] 林炳兴, 周治发. 广东大亚湾沿海地区生态环境中<sup>90</sup>Sr含量水平调查[J]. *辐射防护*, 1995, 15(2): 129–137.  
Lin Bingxing, Zhou Zhifa. Investigation of <sup>90</sup>Sr activity level of Daya Bay coastal areas in Guangdong[J]. *Radiation Protection*, 1995, 15(2): 129–137.
- [34] 陈进兴. 南海近海水中U、<sup>90</sup>Sr、<sup>137</sup>Cs、<sup>3</sup>H和总β放射性分布[J]. *海洋科学*, 1993, 17(1): 69–70.  
Chen Jinxing. Distribution of U, <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs, <sup>3</sup>H and gross Beta radioactivity in offshore water of South China Sea[J]. *Marine Sciences*, 1993, 17(1): 69–70.
- [35] 吴世炎, 施纯坦, 陈进兴. 广东近岸海域表层水中<sup>90</sup>Sr和<sup>137</sup>Cs的分布[J]. *台湾海峡*, 1992, 11(4): 363–367.  
Wu Shiyuan, Shi Chuntan, Chen Jinxing. Distribution of <sup>90</sup>Sr and <sup>137</sup>Cs in coastal surface waters of Guangdong[J]. *Journal of Oceanography*

- graphy in Taiwan Strait, 1992, 11(4): 363–367.
- [36] 刘怀, 陈炽, 梁谦林. 南海珠江口海区人工放射性核素<sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs分布特征的研究[J]. 海洋科学, 1989(1): 62–64.  
Liu Huai, Chen Zhi, Liang Qianlin. Study of distribution character of artificial radioactives <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs in the Zhujiang Estuary area in South China Sea[J]. Marine Sciences, 1989(1): 62–64.
- [37] 刘怀. 南海近海海水中人工放射性核素<sup>90</sup>Sr的含量及分布[J]. 海洋科学, 1987, 11(5): 36–37.  
Liu Huai. The content and distribution of artificial radionuclide <sup>90</sup>Sr in the offshore water in South China Sea[J]. Marine Sciences, 1987, 11(5): 36–37.
- [38] 吉长余, 张东果. 大亚湾核电站1994~2003年环境辐射监测结果与分析[J]. 辐射防护, 2004, 24(3/4): 173–190.  
Ji Changyu, Zhang Dongguo. Results and analysis of environmental radiation monitoring at GNPS (1994~2003)[J]. Radiation Protection, 2004, 24(3/4): 173–190.
- [39] Zhou Peng, Li Dongmei, Zhao Li, 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] 陈进兴, 吴世炎, 施纯坦, 等. 南海近海放射性背景值的综合研究[J]. 同位素, 1993, 6(1): 41–46.  
Chen Jinxing, Wu Shiyang, Shi Chuntan, et al. Comprehensive study of radioactive background in the coastal waters of South China Sea area[J]. Journal of Isotopes, 1993, 6(1): 41–46.
- [41] Bourlat Y, Millies-Lacroix J, Le Petit G, et al. <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs and <sup>239, 240</sup>Pu in world ocean water samples collected from 1992 to 1994[M]//Guegueniat P, Germain P, Metivier H. Radionuclides in the Oceans. Input and Inventories. Les Ulis: Les editions de Physique, 1996: 75–93.
- [42] Karube Z I, Inuzuka Y, Tanaka A, et al. Radiostrontium monitoring of bivalves from the Pacific coast of eastern Japan[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, 23(17): 17095–17104.
- [43] Tazoe H, Yamagata T, Tsujita K, et al. Observation of dispersion in the Japanese coastal area of released <sup>90</sup>Sr, <sup>134</sup>Cs, and <sup>137</sup>Cs from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant to the Sea in 2013[J]. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2019, 16(21): 4094.
- [44] Tazoe H, Obata H, Yamagata T, et al. Determination of strontium-90 from direct separation of yttrium-90 by solid phase extraction using DGA resin for seawater monitoring[J]. *Talanta*, 2016, 152: 219–227.
- [45] IAEA. Interlaboratory Comparisons 2014–2016: Determination of Radionuclides in Sea Water, Sediment and Fish[M]. Vienna: IAEA, 2019.
- [46] Cigna A A. Forty years of anthropogenic radionuclides in surface seawater. Italian and Japanese data[J]. *Ocean Science Journal*, 2006, 41(4): 261–290.
- [47] de Villiers S. Seawater strontium and Sr/Ca variability in the Atlantic and Pacific oceans[J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 1999, 171(4): 623–634.
- [48] Saniewski M, Zalewska T. Budget of <sup>90</sup>Sr in the Gulf of Gdańsk (southern Baltic Sea)[J]. *Oceanologia*, 2018, 60(3): 256–263.
- [49] Japan Coast Guard. Annual Reports of Radioactivity Survey for 1999–2018[EB/OL]. [2019-10-28]. <https://www1.kaiho.mlit.go.jp/KANKYO/OSEN/housha.html>.
- [50] 林武辉, 余克服, 王英辉, 等. 海洋沉积过程的铀系放射性核素示踪技术: 物源识别、沉积、再悬浮[J]. 海洋地质与第四纪地质, 2020, 40(1): 60–70.  
Lin Wuhui, Yu Kefu, Wang Yinghui, et al. Using uranium-series radionuclides as tools for tracing marine sedimentary processes: Source identification, sedimentation rate, and sediment resuspension[J]. Marine Geology & Quaternary Geology, 2020, 40(1): 60–70.
- [51] Lin Wuhui, Feng Yu, Yu Kefu, et al. Long-lived radionuclides in marine sediments from the Beibu Gulf, South China Sea: Spatial distribution, controlling factors, and proxy for transport pathway[J]. *Marine Geology*, 2020, 424: 106157.
- [52] Lin Wuhui, Chen Liqi, Zeng Shi, et al. Residual  $\beta$  activity of particulate <sup>234</sup>Th as a novel proxy for tracking sediment resuspension in the ocean[J]. *Scientific Reports*, 2016, 6: 27069.
- [53] Wang Cuiyu, Baumann Z, Madigan D J, et al. Contaminated marine sediments as a source of cesium radioisotopes for benthic fauna near Fukushima[J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(19): 10448–10455.
- [54] Maderich V, Jung K T, Bezhenar R, et al. Dispersion and fate of <sup>90</sup>Sr in the northwestern Pacific and adjacent seas: Global fallout and the Fukushima Dai-ichi accident[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 494–495: 261–271.
- [55] Takata H, Kusakabe M, Inatomi N, et al. The contribution of sources to the sustained elevated inventory of <sup>137</sup>Cs in offshore waters east of Japan after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station accident[J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(13): 6957–6963.
- [56] Zalewska T, Suplińska M. Anthropogenic radionuclides <sup>137</sup>Cs and <sup>90</sup>Sr in the southern Baltic Sea ecosystem[J]. *Oceanologia*, 2013, 55(3): 485–517.
- [57] Fujimoto K, Miki S, Kaeriyama H, et al. Use of otolith for detecting strontium-90 in fish from the harbor of Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant[J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49(12): 7294–7301.
- [58] Miura T, Minai Y, Yonezawa C, et al. Preparation and certification of certified reference materials of fish meat and ashed bone for determination of <sup>90</sup>Sr and radiocesium after Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2018, 318(1): 347–352.

- [59] Zalewska T, Saniewski M, Suplińska M, et al. <sup>90</sup>Sr in fish from the southern Baltic Sea, coastal lagoons and freshwater lake[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2016, 158–159: 38–46.
- [60] Brown J E, Alfonso B, Avila R, et al. A new version of the ERICA tool to facilitate impact assessments of radioactivity on wild plants and animals[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2016, 153: 141–148.
- [61] Garnier-Laplace J, Copplestone D, Gilbin R, et al. Issues and practices in the use of effects data from FREDERICA in the ERICA Integrated Approach[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2008, 99(9): 1474–1483.
- [62] Lin Wuhui, Feng Yu, Yu Kefu, et al. Comparative study of radioactivity levels and radionuclide fingerprints in typical marine ecosystems of coral reefs, mangroves, and hydrothermal vents[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2020, 152: 110913.
- [63] Deng Fangfang, Lin Feng, Yu Wen, et al. The distributions of <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs and <sup>90</sup>Sr in the northwest Pacific seawater in the winter of 2012[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2020, 152: 110900.
- [64] Inoue M, Shirotani Y, Nagao S, et al. Spatial variations of <sup>226</sup>Ra, <sup>228</sup>Ra, <sup>134</sup>Cs, and <sup>137</sup>Cs concentrations in western and southern waters off the Korean Peninsula in July 2014[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2018, 182: 151–156.
- [65] Inoue M, Shirotani Y, Yamashita S, et al. Temporal and spatial variations of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs levels in the Sea of Japan and Pacific coastal region: Implications for dispersion of FDNPP-derived radiocesium[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2018, 182: 142–150.
- [66] Men Wu, He Jianhua, Wang Fenfen, 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.
- [67] Hirose K, Povinec P P. <sup>137</sup>Cs and <sup>90</sup>Sr in surface waters of the Sea of Japan: Variations and the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident impact[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2019, 146: 645–652.
- [68] Ikeuchi Y. Temporal variations and behaviour of <sup>90</sup>Sr and <sup>137</sup>Cs in precipitation, river water and seawater in Japan[J]. *Radioactivity in the Environment*, 2006, 8: 397–405.
- [69] 中华人民共和国生态环境部. 全国辐射环境质量报告[R]. 北京: 生态环境部, 2014–2018.  
Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China. Annual Report of the National Radiation Environment[R]. Beijing: Ministry of Ecology and Environment, 2014–2018.
- [70] Zhang Zijian, Ninomiya K, Yamaguchi Y, et al. Atmospheric activity concentration of <sup>90</sup>Sr and <sup>137</sup>Cs after the Fukushima Daiichi nuclear accident[J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 52(17): 9917–9925.
- [71] Rosenberg B L, Ball J E, Shozugawa K, et al. Radionuclide pollution inside the Fukushima Daiichi exclusion zone, part 1: Depth profiles of radiocesium and strontium-90 in soil[J]. *Applied Geochemistry*, 2017, 85: 201–208.
- [72] Sahoo S K, Kavasi N, Sorimachi A, et al. Strontium-90 activity concentration in soil samples from the exclusion zone of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant[J]. *Scientific Reports*, 2016, 6: 23925.
- [73] Konno M, Takagai Y. Determination and comparison of the strontium-90 concentrations in topsoil of Fukushima prefecture before and after the Fukushima Daiichi nuclear accident[J]. *ACS Omega*, 2018, 3(12): 18028–18038.
- [74] Amano H, Sakamoto H, Shiga N, et al. Method for rapid screening analysis of Sr-90 in edible plant samples collected near Fukushima, Japan[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2016, 112: 131–135.
- [75] Koarai K, Kino Y, Takahashi A, et al. <sup>90</sup>Sr in teeth of cattle abandoned in evacuation zone: Record of pollution from the Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant accident[J]. *Scientific Reports*, 2016, 6: 24077.
- [76] Merz S, Shozugawa K, Steinhauser G. Analysis of Japanese radionuclide monitoring data of food before and after the Fukushima nuclear accident[J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49(5): 2875–2885.
- [77] Nabeshi H, Tsutsumi T, Uekusa Y, et al. Surveillance of strontium-90 in foods after the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident[J]. *Shokuhin Eiseigaku Zasshi*, 2015, 56(4): 133–143.
- [78] Koarai K, Kino Y, Takahashi A, et al. <sup>90</sup>Sr specific activity of teeth of abandoned cattle after the Fukushima accident—teeth as an indicator of environmental pollution[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2018, 183: 1–6.
- [79] 林武辉, 余克服, 邓芳芳, 等. 南海现代珊瑚骨骼中放射性核素特征指纹[J]. *中国环境科学*, 2019, 39(10): 4279–4289.  
Lin Wuhui, Yu Kefu, Deng Fangfang, et al. Fingerprints of radionuclides in modern coral skeletons in the South China Sea[J]. *China Environmental Science*, 2019, 39(10): 4279–4289.
- [80] Dissard D, Nehrke G, Jan Reichart G, et al. The impact of salinity on the Mg/Ca and Sr/Ca ratio in the benthic foraminifera *Ammonia tepida*: Results from culture experiments[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2010, 74(3): 928–940.
- [81] Stoll H M, Rosenthal Y, Falkowski P. Climate proxies from Sr/Ca of coccolith calcite: Calibrations from continuous culture of *Emiliania huxleyi*[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2002, 66(6): 927–936.
- [82] Gillikin D P, Lorrain A, Navez J, et al. Strong biological controls on Sr/Ca ratios in aragonitic marine bivalve shells[J]. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 2005, 6(5): Q05009.
- [83] DiMaria R A, Miller J A, Hurst T P. Temperature and growth effects on otolith elemental chemistry of larval Pacific cod, *Gadus macrocephalus*[J]. *Environmental Biology of Fishes*, 2010, 89(3/4): 453–462.
- [84] Delaney M L, Linn L J, Davies P J. Trace and minor element ratios in *Halimeda* aragonite from the Great Barrier Reef[J]. *Coral Reefs*, 1996, 15(3): 181–189.
- [85] Lin Wuhui, Yu Kefu, Wang Yinghui, et al. Radioactive level of coral reefs in the South China Sea[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2019,

142: 43–53.

- [86] 林武辉, 余克服, 王英辉, 等. 珊瑚礁区沉积物的极低放射性水平特征与成因[J]. *科学通报*, 2018, 63(21): 2173–2183.  
Lin Wuhui, Yu Kefu, Wang Yinghui, et al. Extremely low radioactivity in marine sediment of coral reefs and its mechanism[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2018, 63(21): 2173–2183.
- [87] Sun Y, Sun M, Lee T, et al. Influence of seawater Sr content on coral Sr/Ca and Sr thermometry[J]. *Coral Reefs*, 2005, 24(1): 23–29.
- [88] Yu Kefu. Coral reefs in the South China Sea: Their response to and records on past environmental changes[J]. *Science China: Earth Sciences*, 2012, 55(8): 1217–1229.

## <sup>90</sup>Sr in marine environment: Comparison of seas surrounding Japan and the South China Sea

Lin Wuhui<sup>1,2</sup>, He Jianhua<sup>3</sup>, Yu Kefu<sup>1,2</sup>, Du Jinqiu<sup>4</sup>, Deng Fangfang<sup>3</sup>, Liang Lin<sup>1</sup>,  
Li Junyi<sup>1</sup>, He Xianwen<sup>5</sup>, Chen Baocai<sup>5</sup>, Feng Liangliang<sup>5</sup>

(1. School of Marine Sciences, Guangxi University, Nanning 530004, China; 2. Guangxi Key Laboratory on the Study of Coral Reefs in the South China Sea, Nanning 530004, China; 3. Third Institute of Oceanography, Ministry of Natural Resources, Xiamen 361005, China; 4. National Marine Environmental Monitoring Center, Dalian 116023, China; 5. Radiation-Environment Management and Monitoring Station of Guangxi Zhuang Autonomous Region, Nanning 530222, China)

**Abstract:** <sup>90</sup>Sr is recognized to be one of most important artificial radionuclides. A huge amount of radioactive substance (e.g., <sup>90</sup>Sr) was released into marine environment after the Fukushima Nuclear Accident (FNA). High <sup>90</sup>Sr activity was still observed in the treated wastewater which was stored on site in many tanks. However, <sup>90</sup>Sr was rarely investigated in marine environment due to its complicated and time-consuming analytical procedure after the FNA, constraining a comprehensive understanding of the fate of <sup>90</sup>Sr in marine environment. We discussed the <sup>90</sup>Sr activity and environmental half-life (EHL) in seas surrounding Japan (SSJ) and the South China Sea (SCS) on the basis of previous data and our <sup>90</sup>Sr data in seawater and marine biotas (e.g., sargassum, shrimp, oyster, mangrove, reef coral) collected from the SCS during 2015–2018. We found that the EHL of <sup>90</sup>Sr in the SSJ was 15.4 years during 1975–2010. <sup>90</sup>Sr in the SSJ was significantly elevated after the FNA. Radiation dose rate of <sup>90</sup>Sr on marine fish was increased by five orders of magnitude after the FNA relative to the baseline before the FNA. As the downstream basin of the North Pacific Subtropical Gyre, the SCS was not identified with noticeable <sup>90</sup>Sr-derived from the FNA. The EHL of <sup>90</sup>Sr in the SCS was calculated to be 26.7 years during 1984–2018 based on the compilation of historical <sup>90</sup>Sr data. The contrasting patterns of the EHL of <sup>90</sup>Sr and <sup>137</sup>Cs in the marginal seas and open oceans were attributed to the distinct sources (river input) and sinks (marine biological pump) of <sup>90</sup>Sr and <sup>137</sup>Cs. In the context of challenge of <sup>90</sup>Sr analytical method in marine environment, extremely high <sup>90</sup>Sr concentration factor (around 1 000 L/kg) was observed in the reef coral skeleton after comparing with concentration factors of <sup>90</sup>Sr in more than 10 kinds of marine biotas. Additionally, reef coral is potential to be a reliable <sup>90</sup>Sr marine bioindicator with other advantages of easy availability in large quantity, growth at a fixed location, continue record with high resolution, and simple pretreatment. The study of <sup>90</sup>Sr in reef coral will not only help to reveal distinct sources and sinks of artificial radionuclides in marine environment, but also provide valuable insights to optimization and improvement of standards/guidelines of marine radioactivity monitoring program.

**Key words:** Fukushima Nuclear Accident; radioactivity; seawater; biotas; sediment; reef coral