

# 福岛核事故后的海洋放射性排放和监测研究进展

陈灿, 李俊峰, 王建龙

清华大学核能与新能源技术研究院, 北京 100084

**摘要** 海洋放射性监测是保障海洋核环境安全的重要支撑。回顾了日本福岛核事故对海洋的放射性排放特点、监测内容和监测结果,介绍了国内外海洋放射性监测工作,总结分析了海洋放射性监测项目、监测布点、监测方法、监测设备、监测数据指导核应急响应等方面的进展,为我国海洋放射性监测提供参考。

**关键词** 核事故;海洋核应急监测;核应急准备与响应

2011年日本东部发生9.0级大地震并引发海啸,造成东京电力公司福岛第一核电站发生核事故,大量放射性核素从电站释放到大气中,然后沉积到陆地和海洋,也发生了向海洋的直接释放和排放。在核事故应急阶段以及恢复阶段,福岛核电站还产生了大量放射性污染水,带来海洋放射性排放隐患。福岛核事故引发了国际社会对海洋核安全的广泛关注。

## 1 日本福岛核事故后的海洋排放和监测

### 1.1 放射性物质向海洋的释放

福岛核事故产生的放射性物质向大气的大量释放主要发生在事故发生后的2周内(2011年3月11—23日)。2011年4月,放射性物质向大气的释

放不及3月释放量的1%,后期大气释放量进一步降到更低。大部分大气释放沉积和弥散在北太平洋。除了从大气沉积进入海洋的放射性核素外,还有福岛第一核电站在厂址直接排入海洋的液体释放和排放<sup>[4-5]</sup>。多个研究机构及专家学者对反应堆堆芯状态诊断结果或环境监测结果进行了源项评估。联合国原子效应科学委员会(UNSCEAR)总结出了福岛核电站主要放射性核素<sup>131</sup>I、<sup>137</sup>Cs向环境的释放量(表1<sup>[6]</sup>)。林武辉<sup>[4]</sup>于2015年总结分析了<sup>90</sup>Sr、<sup>3</sup>H等多种核素排入海洋的总量。根据《国际核与辐射事件分级手册》(2008版),日本福岛核事故被定为7级特大核事故。

2011年4月初,首次发现福岛第一核电站高放射性污水泄漏造成临近海域海水放射性污染。事故前,海水中<sup>137</sup>Cs浓度大约为1~3 mBq/L,事故后距离核电站30 km海水中<sup>137</sup>Cs浓度达到10 Bq/L,

收稿日期:2021-02-11;修回日期:2021-06-15

基金项目:国家重点研发计划项目(2017YFC1405003,2016YFC1402500)

作者简介:陈灿,副研究员,研究方向为辐射防护与环境保护,电子信箱:chencan@tsinghua.edu.cn

引用格式:陈灿,李俊峰,王建龙.福岛核事故后的海洋放射性排放和监测研究进展[J].科技导报,2022,40(17):105-112;doi:10.3981/j.

issn.1000-7857.2022.17.009

表1 福岛第一核电站主要放射性核素  
向环境的释放量估算(单位:PBq)

核素 种类	反应堆 1~3 号 核素积存量	大气 释放	向海洋的释放	
			直接	间接(大气 沉降为主)
<sup>131</sup> I	6000	100~500	10~20	60~100
<sup>137</sup> Cs	700	6~20	3~6	5~8

距离核电站不足 500 m 范围内海水 <sup>134</sup>Cs、<sup>137</sup>Cs 曾一度达到 68000 Bq/L, <sup>131</sup>I 超过 10 万 Bq/L(2011 年 3 月 26 日到 4 月 8 日)<sup>[2,5]</sup>。东电公司 2011 年 4 月 2 日放射性废液泄漏总量约为 520 m<sup>3</sup>, 总活度约 4.7 PBq, 其中 <sup>131</sup>I、<sup>134</sup>Cs、<sup>137</sup>Cs 的活度浓度分别为 5.4×10<sup>6</sup>、1.8×10<sup>6</sup>、1.8×10<sup>6</sup> Bq/cm<sup>3</sup>。之后还发生了数次放射性污水向海洋排放的事件以及多起核电厂内的放射性污水泄漏事件。

## 1.2 海洋放射性污染特点

日本福岛核事故对海洋的放射性污染表现出如下特点。

1) 短时、大量放射性物质进入海洋, 大量释放在数天、数周内完成<sup>[2]</sup>。1986 年切尔诺贝利核事故放射性物质总量(物质释放总量估算约 5200 PBq) 约 90% 以上沉积于欧洲大陆。日本福岛核事故放射性物质释放总量中大约 80% 沉积于太平洋, 主要污染北太平洋, 19% 沉积于日本大陆, 1% 沉积于其余欧亚大陆国家, 因此被称为史上最严重的海洋放射性污染事故<sup>[2-4]</sup>。

2) 福岛核事故期间、事故处理过程中/事故之后的恢复阶段产生了大量放射性污染水。不仅在核应急早期因泄漏造成海洋放射性污染, 而且储存的大量含氚及其他任何残留放射性核素的污染水构成了液态放射性物质向环境释放的隐患, 是事故

后恢复阶段面临的主要环境问题, 受到世界关注<sup>[1-4]</sup>。初步估算, 福岛核事故当时产生近 20 万 t 放射性废水<sup>[7]</sup>。福岛第一核电站放射性废液来源包括: 堆芯冷却水; 场内高放射性废液储罐; 场内放射性积水; 放射性废液处理后的含氚废水; 每日大量地下水流入厂房或周边产生放射性污水。上述污水对海洋环境带来潜在威胁<sup>[5,7-8]</sup>。

3) 海水中的放射性物质被北太平洋环流快速传输至很远的地方, 且被高度稀释。所有模型研究表明海洋中 <sup>137</sup>Cs 的活度非常低<sup>[1]</sup>。海水中 <sup>137</sup>Cs 随离开福岛第一核电站的距离而显著降低, 这意味着日本附近洋流有迅速稀释扩散与输运能力, 同时也带来了采样分析的困难。

## 1.3 海洋放射性监测

福岛核事故后, 日本及其他多个国家开展了海洋环境放射性监测<sup>[9]</sup>, 这里主要介绍日本早期开展的海洋放射性监测工作。表 2<sup>[5,10]</sup>列出了监测的样品类型、监测范围、监测频次和监测核素种类等海洋核应急监测数据信息。海洋监测范围按区域分为 4 类<sup>[5,10]</sup>: 附近海域(距福岛第一核电站 30 km 范围海域)、沿岸海域(距离福岛县、宫城县、茨城县及部分岩手县海域海岸线约 30 km 的海域)、近海海域(距离海岸线 30~90 km 海域)以及外海海域(距离海岸线约 90~280 km 及其外侧的海域)。

不同事故进程下, 海水采样分为表层(海面下 1~5 m)、中层(2011 年 4—7 月, 沿岸海域采取水深的中间位置, 7 月以后采集海面下 100 m 和 200 m 处)、下层(海底以上 10~20 m), 采样量为 0.5~60 L。海底泥采集从海底表面到 3 cm 深的湿重约 2~2.5 kg 的样品<sup>[5,10]</sup>。

事故早期, 泄漏点附近海水中的放射性水平较

表2 福岛核事故后日本早期开展的海洋核应急监测

介质	监测范围	监测频次	监测核素
海水	附近海域	约 1 次/天~1 次/2 周	全部监测点分析 <sup>134</sup> Cs、 <sup>137</sup> Cs, 部分监测点分析 <sup>131</sup> I、 <sup>89</sup> Sr、 <sup>90</sup> Sr、 <sup>238</sup> Pu、 <sup>(239+240)</sup> Pu、总 α、总 β、 <sup>3</sup> H; 部分监测点增加 <sup>54</sup> Mn、 <sup>60</sup> Co、 <sup>144</sup> Ce。检测到 <sup>238</sup> Pu 监测点追加 <sup>234</sup> U、 <sup>235</sup> U、 <sup>238</sup> U、 <sup>241</sup> Am、 <sup>242</sup> Cm、 <sup>(233+244)</sup> Cm 分析
	沿岸海域	约 1 次/周~1 次/月(部分监测点只实施 1 次监测)	
	近海海域	约 1 次/2 月(部分监测点只实施 1 次监测)	
	外海海域	约 1 次/3 月或随时(部分监测点只实施 1 次监测)	
海底泥	附近海域	约 1 次/月	全部监测点分析 <sup>134</sup> Cs、 <sup>137</sup> Cs; 部分监测点分析 <sup>131</sup> I、 <sup>89</sup> Sr、 <sup>90</sup> Sr、 <sup>238</sup> Pu、 <sup>(239+240)</sup> Pu, 部分追加 <sup>89</sup> Sr、 <sup>90</sup> Sr、 <sup>238</sup> Pu、 <sup>(239+240)</sup> Pu、 <sup>242</sup> Cm、 <sup>(233+244)</sup> Cm 的分析
	沿岸海域	约 1 次/月(部分 1 次监测)	
	近海海域	约 1 次/2 月	

高,检测限高,取 1~2 L 海水用高纯锗  $\gamma$  谱仪直接测量 1~4 h 可以获得铯活度浓度。事故中后期,海水中的放射性活度浓度逐渐降低,需要对海水富集后测量,检出限随之下降。2011 年 3—5 月、2011 年 5—7 月, $^{131}\text{I}$  检出限从 11 Bq/L 下降到 4 Bq/L, $^{134}\text{Cs}$  检出限从 10 Bq/L 下降到 6 Bq/L, $^{137}\text{Cs}$  检出限从 10 Bq/L 下降到 9 Bq/L。

2010 年福岛第一核电站近海海域的本底值大约为:海水中  $^{137}\text{Cs}$  为 1~2 mBq/L,海底泥中  $^{137}\text{Cs}$  约 0.7 Bq/kg(干重);海产品中  $^{137}\text{Cs}$  约为 0.8 Bq/kg(鲜重)。福岛事故后,外海海域  $^{137}\text{Cs}$  浓度 2 年内降低 1~2 个数量级并接近本底水平。福岛县近海海域在核事故早期,表层海水  $^{131}\text{I}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  浓度分别短暂上升至 161、172、186 Bq/L(2011 年 4 月 15 日,在距离核电站 30 km 外的某近海监测点)。随后 5 月,海水  $^{131}\text{I}$  浓度快速下降至低于检出限(2011 年 5—7 月, $^{131}\text{I}$  检出限设为 4 Bq/L),这与 I 的半衰期以及大量释放停止有关。2 年内近海海水中 Cs 的浓度降低 1~2 个数量级,大部分监测点  $^{137}\text{Cs}$  浓度已接近海水中的本底水平。 $^{90}\text{Sr}$  分析耗时长,监测的部分样品分析结果表明,2011 年 8—11 月  $^{90}\text{Sr}$  浓度是本底值的 2~4 倍(2010 年福岛第一核电站海域  $^{90}\text{Sr}$  浓度范围为 0.98~1.3 mBq/L)。福岛县等沿岸海域海水(采样点是福岛核电站机组排水口附近点),在 2011 年 3 月高值达到近 10 万 Bq/L,之后迅速降低 3~4 个数量级,到 2012 年降到 10 Bq/L 以下,之后缓慢降低。

## 2 海洋核应急监测主要内容

### 2.1 海洋核应急监测中关注的核素及监测项目

#### 1) 严重事故情况下放射性核素的释放。

在反应堆严重事故情况下,燃料元件、控制棒及其他结构材料发生破损或熔化,大量放射性物质释放,主要是裂变产物和结构材料活化产物。释放的裂变产物包括惰性气体、卤素、碱金属、碱土金属等。在严重事故情况下,放射性核素释放行为大体分为 2 组。第一组,挥发性裂变产物:惰性气体、氦、氙、I、Cs 与溴和铷,有时释放 Te。第二组,挥发性较小的其他裂变产物与燃料的活化腐蚀产物<sup>[11]</sup>。强挥发性放射性物质,100% 从燃料元件内释出,包括惰性气体(如  $^{85}\text{Kr}$ 、 $^{133}\text{Xe}$ )、I 和 Cs(如  $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ ) 3 类。中等挥发性气体如 1%~20% 的 Te、Sr、Br 可能从燃料元件内释出;非挥发性元素有少量释出。事故发生后的前几天和几星期,最大的剂量贡献来自  $^{131}\text{I}$ 、 $^{132}\text{I}$ 、 $^{132}\text{Te}$ 、 $^{103}\text{Ru}$ 、 $^{140}\text{Ba}$  和  $^{141}\text{Ce}$  这些短寿命核素。其他裂变产物和堆芯结构材料活化腐蚀产物主要以气溶胶形态存在并可转移到地坑水中,有  $^{60}\text{Co}$ 、 $^{58}\text{Co}$ 、 $^{59}\text{Fe}$ 、 $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{51}\text{Cr}$ 、 $^{65}\text{Zn}$ 、 $^{95}\text{Zr}$ 、 $^{110}\text{mAg}$ 、 $^{124}\text{Sb}$ 、 $^{57}\text{Co}$ 、 $^{113}\text{Sn}$  和  $^{117\text{m}}\text{Sn}$ 。在排放液体中可能含有  $^{95}\text{Zr}$ 、 $^3\text{H}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{89}\text{Sr}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 、 $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{60}\text{Co}$ <sup>[12-13]</sup>。

每种核素重要性不同<sup>[14]</sup>。从放射毒理学出发,I 与 Cs 最重要。在事故早期阶段,半衰期为 8.02 d 的短寿命  $^{131}\text{I}$  会对甲状腺产生很高的当量剂量。半衰期分别为 2.06 年和 30.17 年的较长寿命  $^{134}\text{Cs}$  和  $^{137}\text{Cs}$  通过外照射和内照射对当量剂量和有效剂量均有贡献。 $^{137}\text{Cs}$  可能在环境中长期存在,可能持续造成辐射影响<sup>[4,8]</sup>。

#### 2) 监测项目。

开展核应急监测要考虑核事故早中晚期不同特点<sup>[15]</sup>,主要监测介质、监测核素、监测频次等见表 3。

在核事故早期,主要测量受大气沉降影响较大的海洋上空大气/表层海水中  $^{131}\text{I}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、总  $\beta$ 、 $^3\text{H}$ 。在核事故中后期,监测介质扩大包括表层及深

表 3 核事故早中晚期海洋放射性监测比较

核事故阶段	主要监测介质	主要监测核素种类	监测频次
核事故早期	海洋上空大气/表层海水以及海水中可食生物	$^{131}\text{I}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、总 $\beta$ 、 $^3\text{H}$	每天采集,必要时分析
核事故中后期	重点监测海水(表层和深层海水)、海底泥(沉积物)、海洋可食生物	$^{131}\text{I}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{106}\text{Ru}$ 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 、 $^{14}\text{C}$ ,重点为 $^{131}\text{I}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 以及 $^{90}\text{Sr}$ 等核素	中期监测频次为每周或每月采样分析;后期监测频次恢复到常规监测

层海水、沉积物、海洋生物等,主要监测 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{106}\text{Ru}$ 、 $^{110m}\text{Ag}$ 、 $^{14}\text{C}$ 等<sup>[16]</sup>。

针对事故期间公众防护决策最迫切需要的放射性监测数据,海洋核应急早期重点监测海洋上空大气、表层海水以及海水中可食生物中的 $\gamma$ 能谱( $^{131}\text{I}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ )。核事故中后期阶段重点监测海水(表层和深层海水)、海底泥(沉积物)、海洋可食生物中的 $\gamma$ 能谱( $^{131}\text{I}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ )以及 $^{90}\text{Sr}$ 。其余放射性核素的监测,根据监测目的及监测条件,适当增加。

《海洋环境放射性核素监测技术规程》(HY/T 235—2018)提供了 $\gamma$ 能谱法快速测定核事故状态下海水中 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{110m}\text{Ag}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{58}\text{Co}$ 、 $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{65}\text{Zn}$ 、 $^{144}\text{Ce}$ ,以及气溶胶中 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{131}\text{I}$ 、 $^{110m}\text{Ag}$ 的方法。生态环境部辐射环境监测技术中心开展了海洋环境中放射性污染快速监测方法和标准规范研究,包括“核事故中海水剂量率在线连续性监测技术规范”“海水中人工放射性 $\gamma$ 核素监测技术规范”和“海水中人工放射性核素铯-90监测技术规范”。

无论海洋核事故处于早期还是中后期,均需要采集海洋中的可食生物或水产品。采样点一般应包括核电站附近野生类和当地渔民的养殖场。可食生物或水产品中需要检测标志性放射性核素 $^{131}\text{I}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 活度浓度。标志性放射性核素 $^{131}\text{I}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 更容易识别,可代表存在的所有其他放射性核素,避免了开展昂贵又费时的综合同位素分析<sup>[17]</sup>。

## 2.2 监测范围及监测布点

可以根据海流、实时风向、核素在海洋中的扩散模拟预测结果、核应急监测特点、核应急工作人员辐射防护准则等,选定监测要素、监测站点、监测人员装备及指导监测人员返回<sup>[18]</sup>。放射性物质释放后,风向和扩散模型在初始分配用于场外监测和采样的资源方面具有一定指导作用。但是,根据IAEA核应急经验,环境监测和采样仍应在核电厂附近的各个方向进行,而不仅仅是模型标示的区域<sup>[1]</sup>。根据“《核动力厂核事故环境应急监测技术规范》(HJ1128—2020)”<sup>[19]</sup>,可在核动力厂排放口布设水体放射性自动监测系统,进行总 $\alpha$ 、总 $\beta$ 及放射性核素在线直接测量。可适当在滨海核电厂取水口、

排水口、周围大型排污口、海湾出口、养殖区集中区、环境敏感区增设针对性采样点。在早期阶段,海上重点监测范围为5 km,根据放射性污染情况,监测半径可逐步扩大至30 km;对热功率 $\geq 1000$  MW的反应堆严重事故引起的大量放射性释放的情况,中、后期阶段的监测范围应考虑扩展至300 km。

核应急辐射监测对海洋的监测布点原则为:在海洋核应急早期,“在5 km监测范围内接近密远疏的原则,扇形布点,进行海水和海洋可食生物监测。根据污染情况,监测范围扩展至30 km,按16个方位划定的每个海上扇区至少布设一个海水采样分析点位,必要时在海水采样同点位进行沉积物采样”<sup>[19]</sup>;在海洋核应急中、后期阶段监测中,应综合各种情况,监测范围有必要逐次向(30~90) km、(90~300) km扩展<sup>[19]</sup>。

## 2.3 海洋放射性监测设备

放射性监测常用的测量仪器包括 $\gamma$ 谱仪、 $\alpha$ 谱仪、液闪计数器、 $\alpha/\beta$ 计数器,见表4<sup>[15-16]</sup>。核素测量可以使用质谱仪(等离子体质谱仪、加速器质谱仪等)、光谱仪、激光荧光分析仪、原子吸收分光光度计等。应急监测设备应包括 $\beta/\gamma$ 剂量率仪、 $\gamma$ 谱仪、个人剂量计、表面污染监测仪以及空气取样器等<sup>[15-16]</sup>。

在海洋放射性监测网系统中,欧美国家建立了主要以NaI晶体探测器为核心的监测系统,包括美国、希腊、日本、比利时、德国和韩国<sup>[20]</sup>。例如德国用碘化钠探测器直接测量海水中总的 $\gamma$ 辐射。

目前国际上发展了拖曳式海床 $\gamma$ 谱仪测量系统,该系统安装在潜水艇、无人遥控潜水器,以及海洋浮标上进行就地监测的 $\gamma$ 探测系统,实现海洋在线连续实时监测<sup>[21-25]</sup>。不仅有走航式连续 $\gamma$ 监测系统(船载或水下 $\gamma$ 监测系统),而且还包括走航式 $\alpha/\beta$ 计数监测系统<sup>[26]</sup>。

应发展海洋高盐腐蚀环境下密封性好、通信可靠、性能稳定的海洋在线实时放射性监测设备,研发具有自主知识产权的、先进/快速/立体/实时监测设备/系统,发展海上核应急总体装备技术及水平。

核应急监测设备的开发和使用,尽量与常规监测系统及设备兼容,但是在设计上,仍需针对核应急特点,在响应时间、测量量程、备用电源、可达性、

表4 主要放射性监测设备

种类	主要用途
$\gamma$ 谱仪	快速定性定量分析具有 $\gamma$ 辐射的放射性核素的基本手段,可以确定核素组成、污染程度,可以测量大部分海洋放射性监测关注的核素,包括 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 等
$\alpha$ 谱仪	可以测量 $^{210}\text{Po}$ 、 $^{234}\text{Th}$ 、 $^{232}\text{Th}$ 、 $^{230}\text{Th}$ 、 $^{229}\text{Th}$ 、 $^{234}\text{U}$ 、 $^{238}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$ 等,射线穿透能力低,对制样要求较高
液体闪烁能谱仪/ 计数器	测量 $^3\text{H}$ 和 $^{14}\text{C}$ 等低能 $\beta$ 射线的强度及核素活度
$\alpha/\beta$ 计数器	可以测量总 $\beta$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 等,计数器价格低、保养简单。总 $\beta$ 放射性是判断海洋环境放射性是否异常的一项比较简便的指标,海水样品经沉淀富集后用 $\beta$ 计数器检测。海水中的 $^{131}\text{I}$ ,用离子交换树脂富集后采用 $\beta$ 计数法测量。海水中的 $^{90}\text{Sr}$ 采用离子交换法或萃取剂萃取进行化学分离、精制后,用 $\beta$ 计数器计数测量

抗异常环境条件等多方面考虑。自动监测网站的测读、记录和发送等(包括对气象参数)应按相关程序规定转入频度更高的应急模式<sup>[15]</sup>。

海洋辐射探测器是实现海洋放射性实时监测的核心<sup>[27]</sup>。中国需要进一步完善和优化用于海洋辐射环境监测的具有自主知识产权的探测器及分析解谱技术,并结合无人机、无人船、浮标、新型大容量快速富集技术的联用,开展海试研究、提升仪器性能。海洋放射性实时在线监测技术,世界范围内数十个国家对其开展了研究,部分成熟的水下 $\gamma$ 能谱仪得到运用。国内亦开展了相关研究工作。武汉第二船舶设计研究所(中船719所)开发了海水低放射性核素监测仪,可搭载浮标使用,将NaI闪烁体探测器安装在浮标体下面不锈钢壳内,探头距海水表面约2~3 m,可实现对海洋环境辐射 $4\pi$ 角度测量,辐射测量范围 $5\times 10^2\sim 1\times 10^7\text{ Bq/m}^3$ ,被测能量范围可达到0.08~2.5 MeV。山东省科学院海洋仪器仪表研究所与其他单位合作研制了基于NaI(Tl)探测器的海洋放射性在线监测装置,包括基于大浮标的海洋放射性原位监测系统以及适合无人机/船等多平台多场景快速布放的新型应急快速跟踪监测漂流浮标系统<sup>[28]</sup>。苏州热工研究院设计了一种基于滨海核电站海上 $\gamma$ 辐射剂量率的智能化自动监测系统,并与防城港核电站合作于2018年在防城港核电厂排水口附近海域投放了一套海域辐射自动连续监测系统,开展了海水、空气中 $\gamma$ 辐射剂量率及有关气象参数的监测<sup>[29]</sup>。清华大学报道了一套基于NaI(Tl)闪烁体的海水放射性监测装置样机<sup>[30]</sup>。但仍需要加大研发力度,优化产

品及性能,在海域监测中推广应用<sup>[30]</sup>。

#### 2.4 监测方式、监测方法及监测网络

海水放射性监测方式有2类:一类是现场船舶采样后送实验室(包括陆地实验室、船载移动实验室)分析;另一类是在线实时连续监测,例如海水放射性核素自动富集实时监测系统、无人机/船自动监测系统、原位监测<sup>[31-35]</sup>。

国际上,一些发达国家已建立了较完整的海洋放射性监测网络,部分实现海洋放射性在线连续监测。德国利用环境放射性监测综合测量和信息实现海域日常性监测及事故监测,包括离岸监测站、岸基监测站和移动测量船。

20世纪60年代,中国开始近海海域放射性监测工作。1984年,中国组建了“全国海洋污染监测网”。中国海洋辐射监测力量仍较为薄弱,与发达国家有较大差距,而且各地区海洋放射性监测能力差异较大<sup>[33-34]</sup>。目前,国内主要还是采用现场采样送实验室分析的方法,这种方法可靠,但是耗时长、对人员要求高、应急性较差<sup>[25]</sup>。与陆地辐射监测比较,陆地辐射监测是固定式大规模区域覆盖,而海上目前多依赖移动舰船海水取样等方式,覆盖区域有限。中国需要发展海洋环境辐射实时在线监测技术及装备,用于日常监管以及核应急时可开展基于无人机的放射性水平监测浮标的快速布放和自组织自愈无线传感网的构建、无人船搭载核辐射探测设备进行海水放射性核素自动富集实时监测等。

中国已积累了大量非事故条件下的海洋放射性监测数据,包括海洋污染基线调查、海洋放射生态调查、核电站环境影响评价及海洋放射性环境调

查等,但数据零散不集中。加强海洋辐射监测网以及建设海洋放射性数据库,对于海域辐射后果评价、海域辐射环境安全保障、有效开展海上核应急准备和响应行动具有重要意义<sup>[31-36]</sup>。

核应急早期,除了泄漏点附近海水中放射性水平较高时可以直接采样测量外,核事故中后期海水放射性核素浓度降低,需要进行大体积水样富集后再用 $\gamma$ 谱仪分析,例如磷酸铵法或亚铁氰化钾进行吸附富集后再进行测量。海洋的放射性,无论海水、沉积物还是海洋生物等介质中放射性是低水平或极低水平,即使是事故后海域放射性监测,因洋流迅速稀释扩散,要找到可直接测量放射性的海水样品,也较为困难。海水中又含有高盐等大量干扰离子,一般需富集分离后再用计数法测量。放射性计数方法是目前和未来一段时间内海洋放射性监测的主流方法,成熟技术<sup>[33-36]</sup>。自然资源部第一海洋研究所研发了一款水体放射性快速监测仪,采用了可以高效富集铯的滤芯材料<sup>[37]</sup>。监测仪安装在调查船实验室内,水泵将海水抽上来,样芯富集放射性核素后将海水排回大海。该监测仪在2016年黄海海域开展了10 d走航式监测,获得22个富集样芯,每个样芯都富集了800 L海水中的放射性铯元素。样芯经高纯锗伽玛谱仪直接测量,即可获得海水中放射性铯比活度,再结合位置信息,可以描述调查区域放射性铯分布状况。针对不同放射性核素,需要针对性开发适合这些核素的高选择性吸附、萃取、沉淀、离子交换的药剂及高效吸附材料。新材料、纳米技术的发展,为设计制备用于海水中放射性核素的高效富集、快速监测提供了新材料和新方法。针对核素富集检测需求,北京航空航天大学、武汉理工大学等多家单位开展了铯、铯、钴等多种稳定同位素吸附材料的研制工作。高选择性吸附材料的设计制备及研究工作仍然是海洋放射性核素监测中的一项重要基础研究工作<sup>[36]</sup>。

## 2.5 监测数据指导核应急响应

海洋核应急监测是场外核应急监测的一部分,是对海洋环境进行的非常规性监测。核应急监测的首要目标是保护公众,目的是为实施紧急防护行动、掌握环境影响及剂量评价以及信息公开提供监

测数据<sup>[39]</sup>。

场外核应急防护行动通过2种方法开展:一是根据应急分级系统在预先建立的应急区域内实施初始响应行动;二是一旦监测结果可用,则根据监测结果并与预先确定的操作干预水平 OILs 进行比较后启动相应的防护行动。防护行动包括:隐蔽、撤离、碘预防、停止和替代食品与饮水等紧急防护行动,以及临时避迁、永久再定居、停止和替代食品与饮水等较长期防护行动<sup>[38-40]</sup>。

环境监测的另一重要功能是由于评估核事故源项,从而进一步指导核应急响应行动。日本利用改进后的环境应急剂量预测系统(SPEEDI)和环境监测资料,对放射线物质大气释放量进行了反向计算,获得放射线物质大气释放量。切尔诺贝利和福岛第一核电站事故表明,能触发场外紧急防护行动的放射性释放位置、大小和时间难以预测。用计算模型获得的放射性核素的影响范围及程度,其预测结果非常不确定且需要基于监测结果不断地修正<sup>[38]</sup>。如何基于有限的应急监测数据去重构整个区域的辐射场,是海洋与陆地辐射监测的主要区别以及难点之一。基于辐射场实测值的源项反演技术正在发展。

放射性核素在海洋中的准确移动很难单独通过测量进行评价,可以利用一些海洋输运模型对海洋弥散进行估计。福岛核事故后多国学者及组织使用一些海洋模型估算了海洋中<sup>137</sup>Cs等核素的活度浓度<sup>[1-4]</sup>。日本原子能机构(JAEA)结合海洋核素扩散模型研究基础,开发了一套海洋环境放射性短期应急评价系统,结合大气扩散预测系统,可综合预测空气和海洋中的环境污染<sup>[41]</sup>。生态环境部核与辐射安全中心开发了核电厂海域放射性后果评价系统,可对不同核电厂址核事故下液态放射性物质的排放进行污染物输运路径模拟<sup>[42]</sup>;自然资源部第三海洋研究所设计了一款海洋放射性监测预警技术支持平台,可以查看部分滨海核电厂及邻近海域环境变化,模拟放射性核素在海洋环境中的迁移扩散、制定和生成海上应急监测方案、审核与评价海洋放射性监测数据以及开展海洋生物辐射风险评估等<sup>[43]</sup>。生态环境部辐射环境监测技术中

心开发了人工放射性核素跟踪监测软件系统平台,可以完成辐射监测数据、仪器位置状态等信息的实时显示,并具有数据模拟和演示功能。建议进一步开发优化具有海洋核素扩散模拟预测、海洋应急监测、可提出核应急防护行动建议等综合功能的海上核应急辅助决策支持系统,有助于提升海上核应急辅助决策水平,完善目前以陆域大气扩散预测为主的核事故后果评价/核应急辅助决策支持系统。

### 3 结论

日本福岛核事故促使各国对核电事故的发生和应急进行深刻总结和反思。现有核应急体系、辐射环境监测体系(监测网等)主要围绕陆域开展,海洋辐射监测力量较为薄弱、自动化程度低。如何加强海洋核应急辐射监测能力建设是其中的重要内容。中国需要加强研究海洋核应急监测布点、改进取样及分析技术,丰富和完善海洋核应急监测方案;加强海洋核应急实时监测技术及装备的研发、优化及推广工作;加强海水中目标核素快速高效富集浓缩材料、核素海洋模拟扩散模型等相关的基础性研究工作;发展海洋核应急辅助决策支持系统,提高海上核应急响应水平,最大限度避免放射性排放对海洋环境的影响。

#### 参考文献(References)

- [1] International Atomic Energy Agency. The Fukushima Dai-ichi accident report by the Director General[R]. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2015.
- [2] Du Bois P B, Laguionie P, Boust D, et al. Estimation of marine source-term following Fukushima Dai-ichi accident[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2012, 114(S1): 2-9.
- [3] 李冰, 陈莹莹, 余少青, 等. 福岛第一核电站事故后放射性废液的泄漏/排放及辐射影响评估[J]. *辐射防护*, 2021, 32(6): 336-347.
- [4] 林武辉, 陈立奇, 余雯, 等. 福岛核事故源项评价[J]. *中国科学: 地球科学*, 2015, 45(12): 1875-1885.
- [5] 环境保护部(环境保护部核与辐射安全监管二司, 环境保护部核与辐射安全中心). 日本福岛核事故[M]. 北京: 中国原子能出版社, 2014.
- [6] UNSCEAR. Levels and effects of radiation exposure due to the nuclear accident after the 2011 great east-Japan earthquake and tsunami[R]. New York: UNSCEAR, 2013.
- [7] 赵博, 马如冰. 内陆核电厂严重事故工况下确保水资源安全的应急预案研究[M]//潘自强, 主编. 内陆核电厂及核能发展中的几个重要安全、环境问题研究. 北京: 中国原子能出版社, 2015: 193-219.
- [8] Burns P C, Ewing R C, Navrotsky A. Nuclear fuel in a reactor accident[J]. *Science*, 2012, 335(6073): 1184-1188.
- [9] 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.
- [10] Nuclear Regulation Authority Japan. Readings of sea area monitoring[EB/OL]. [2021-05-11]. <https://www.nsr.go.jp/english/>.
- [11] 云桂春, 成徐州. 压水反应堆水化学[M]. 哈尔滨: 哈尔滨工程大学出版社, 2009.
- [12] 唐森铭, 商照荣. 近海辐射环境与生物多样性保护[J]. *核安全*, 2009(2): 1-10.
- [13] 蒋跃进. 福岛核电站核泄漏导致海洋放射性污染引发的启示和警示[C]//广东海事高级论坛. 广州: 广东省航海学会, 2012: 488-494.
- [14] Alpert D J, Chanin D I, Ritchie L T. Relative importance of individual elements to LWR accident consequence estimates assuming equal release fractions[J]. *Nuclear Safety*, 1987, 28(1): 77-86.
- [15] 夏益华, 陈凌, 马吉增, 等. 核应急监测分队手册[M]. 北京: 原子能出版社, 2009.
- [16] 余雯, 李奕良, 何建华, 等. 海洋核应急情况下的监测项目和检测方法[J]. *辐射防护*, 2013, 33(1): 49-53.
- [17] International Atomic Energy Agency. Operational intervention levels for reactor emergencies and methodology for their derivation[R]. Vienna: International Atomic Energy Agency, EPR NPP OILs, 2017.
- [18] International Atomic Energy Agency. Generic assessment procedures for determining protective actions during a reactor accident[R]. IAEA-TECDOC-955. Vienna: IAEA, 1997.
- [19] 核动力厂核事故环境应急监测技术规范(HJ1128-2020)[S]. 北京: 中华人民共和国生态环境部, 2020.
- [20] 王亮, 张春明, 刘永叶, 等. 加强海洋放射性监测网络建设[J]. *中国科技投资*, 2012(29): 54-56.
- [21] Jones D G. Development and application of marine gamma-ray measurements: A review[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2001, 53(3): 313-333.
- [22] Povinec P P. Recent developments in radioanalytical technologies for environmental investigations[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2013, 295(1): 537-544.
- [23] Thornton B, Ohnishi S, Ura T, et al. Continuous measurement of radionuclide distribution off Fukushima using a

- towed sea-bed gamma ray spectrometer[J]. Deep-Sea Research Part I-Oceanographic Research Papers, 2013, 79: 10-19.
- [24] 王立奎. 海洋核辐射监测方法及其典型应用[J]. 科技经济导刊, 2016(18): 89-90.
- [25] 凌鑫, 邹树梁, 李书帆. 国内外海上应急辐射监测比较研究[J]. 资源节约与环保, 2018(10): 98-99.
- [26] 张玉敏, 李红, 朱春来. 海洋核污染与放射性监测技术[J]. 舰船科学技术, 2010, 32(12): 76-79.
- [27] 陈立奇, 何建华, 林武辉, 等. 海洋核污染的应急监测与评估技术展望[J]. 中国工程科学, 2011, 13(10): 34-39.
- [28] 吴丙伟, 张颖颖, 刘岩, 等. 基于大浮标的海洋放射性原位监测系统研究[J]. 海洋技术学报, 2019, 38(3): 51-58.
- [29] 刘占阳, 胡澄, 孙雪峰, 等. 一种基于滨海核电站海上 $\gamma$ 辐射剂量率的智能化自动监测系统研究与设计[J]. 应用海洋学学报, 2020, 39(2): 273-278.
- [30] 曾志, 苏健, 衣宏昌, 等. 海水放射性监测装置研制及初步测试结果[J]. 辐射防护, 2012, 33(1): 46-53.
- [31] 邹暘, 邹树梁. 我国核应急发展现状与前沿动态研究[J]. 中国核电, 2020, 13(1): 114-119.
- [32] 张金涛, 张建岗. 福岛核事故后我国核应急技术与装备研发并进[J]. 中国核工业, 2016(5): 27-29.
- [33] 刘广山. 海洋放射性监测面临的挑战与对策——由日本福岛核电站事故引发的思考[C]//中国核学会2013年学术年会. 哈尔滨: 中国核学会, 2013: 8-14.
- [34] 钱锐, 孙国金, 黄仁杰, 等. 国内外近岸海域放射性监测比较及发展建议[J]. 环境影响评价, 2016, 38(5): 51-54.
- [35] 谢骏箭, 周鹏, 蔡建东, 等. 我国海洋核事故应急监测与环境评价所面临的问题及对策[J]. 海洋环境科学, 2015, 34(4): 622-629.
- [36] 刘广山. 日本福岛核电站事故后的海洋放射化学[J]. 核化学与放射化学, 2015, 37(5): 341-354.
- [37] 张旭东. 我国水体放射性核素监测领域添“利器”[N/OL]. [2021-01-12]. [http://www.xinhuanet.com/politics/2016-04/21/c\\_128918916.htm](http://www.xinhuanet.com/politics/2016-04/21/c_128918916.htm).
- [38] International Atomic Energy Agency. Actions to protect the public in an emergency due to severe conditions at a light water reactor[R]. Vienna: IAEA-EPR-NPP, 2013.
- [39] Food and Agriculture Organization of the United Nations, International Atomic Energy Agency, International Civil Aviation Organization, et al. Preparedness and response for a nuclear or radiological emergency. IAEA Safety Standards Series No. GSR Part 7[R]. Vienna: IAEA, 2015.
- [40] 于红, 刘咏梅. 国内核电厂应急照射情况下干预准则与IAEA相关导则的比较[J]. 核动力工程, 2015, 36(3): 50-53.
- [41] Kobayashi T, Kawamura H, Fujii K, et al. Development of a short-term emergency assessment system of the marine environmental radioactivity around Japan[J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2017, 54(5): 609-616.
- [42] 郭猜, 林权益, 岳会国, 等. 核电厂海域放射性后果评价系统[J]. 科技导报, 2017, 35(13): 45-51.
- [43] 倪甲林, 于涛, 刘双印, 等. 近岸海洋放射性监测预警技术支持平台的设计与研发[J]. 应用海洋学学报, 2020, 39(3): 444-451.

## Marine radioactivity emission and monitoring after Fukushima Daiichi Accident

CHEN Can, LI Junfeng, WANG Jianlong

Collaborative Innovation Center for Advanced Nuclear Energy Technology, INET, Tsinghua University, Beijing 100084, China

**Abstract** Marine radioactivity monitoring is an important scientific basis for the marine nuclear safety. The effluent released to marine and marine monitoring after Japan's Fukushima Daiichi accident were briefly reviewed. The marine radioactivity monitoring work were introduced, including monitoring contents, monitoring methods, monitoring equipment and monitoring data to guide nuclear emergency response. Recommendations on the development of national marine radioactivity detection technology were proposed.

**Keywords** nuclear accident; marine emergency radioactivity monitoring; nuclear emergency preparedness and response ●



(责任编辑 祝叶华)