



论 文

中国南海北部放射性 ^{129}I 的来源、传输和扩散侯锦校^{1,2}, 王妍芸¹, 刘佳林^{1,2}, 刘起¹, 侯小琳^{1*}

1. 中国科学院地球环境研究所, 黄土科学全国重点实验室, 陕西省加速器质谱技术及应用重点实验室, 西安加速器质谱中心, 西安 710061

2. 中国科学院大学, 北京 100049

* 通讯作者, E-mail: houlx@ieecas.cn

收稿日期: 2025-01-25; 收修改稿日期: 2025-06-23; 接受日期: 2025-06-30; 网络版发表日期: 2025-08-15

国家自然科学基金重点项目(22341603)、中国科学院重点部署项目(ZDBS-SSW-DQC003)、中国科学院国际合作项目(132B61ZYLH20230013)和陕西省自然科学基金基础研究计划项目(2024JC-YBQN-0308)资助

摘要 随着我国沿海核电站的快速建设和周边国家频繁的核活动, 我国核环境安全威胁日益加剧. 人工放射性核素在我国边缘海中的分布规律和传输机制是制定海洋核污染应对策略的理论基础. ^{129}I 是人类核活动释放的重要长寿命放射性核素之一, 因其高水溶性和易挥发性, 成为水溶性放射性污染物在边缘海传输扩散机制研究的优良示踪剂. 本研究通过系统采集我国南海北部海域海水样品, 使用我们实验室已经建立的海水中超微量 ^{129}I 和 ^{127}I 的准确分析技术, 获得了该海域海水中 ^{129}I 和 ^{127}I 的水平和分布. 结合海水中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比值分布规律, 研究了南海北部海域人工放射性核素 ^{129}I 的传输特征, 揭示河流的陆源输入是珠江入海口海域 ^{129}I 水平明显升高的主要原因(珠江河口区 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值为 $6.0\times 10^{-11}\sim 38\times 10^{-11}$, 开阔海域表层海水 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值为 $4.0\times 10^{-11}\sim 6.6\times 10^{-11}$), 同时稳定碘同位素(^{127}I)在河口区域明显降低. 在开阔海域, $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值在次表层出现峰值. 通过估算该海域 ^{129}I 的储量分布, 定量解析了不同输入方式对该海域 ^{129}I 的贡献, 发现洋流输入>河流输入>直接大气沉降. 该研究成果将对边缘海事故工况下核污染的扩散路径和影响范围预测及环境辐射安全评估提供科学支撑.

关键词 ^{127}I , ^{129}I , $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$, 南海北部, 核活动

1 引言

面对能源转型与气候变化的双重挑战, 发展核电不仅是应对能源与环境问题的关键举措, 更是保障国家能源安全, 推动经济高质量发展的重要战略选择. 截至2024年8月, 中国沿海地区核准在运和在建的核电机组102台, 总装机容量世界第一. 随着核电事业迅速发展, 我国海洋放射性污染风险激增.

南海是西太平洋边缘面积最大的半封闭边缘海, 洋流复杂且水体交换缓慢, 海水中污染物不易扩散, 生态环境脆弱(张君珏等, 2018). 截止目前南海北部沿岸在运核电站6座, 在建核电厂3座, 成为我国沿海核电站分布的密集区域. 南海是我国的重要渔场, 沿海省份近两亿人口, 珠江三角洲更是重要的经济中心, 一旦出现核事故, 将面临严峻的风险挑战. 因此, 亟待开展海洋放射性研究. 然而, 早期的研究主要集中在该区域的放

中文引用格式: 侯锦校, 王妍芸, 刘佳林, 刘起, 侯小琳. 2025. 中国南海北部放射性 ^{129}I 的来源、传输和扩散. 中国科学: 地球科学, 55(9): 3040–3050, doi: [10.1360/SSTe-2025-0018](https://doi.org/10.1360/SSTe-2025-0018)

英文引用格式: Hou J, Wang Y, Liu J, Liu Q, Hou X. 2025. Sources, transport, and migration of ^{129}I in the northern South China Sea. Science China Earth Sciences, 68(9): 2913–2923, <https://doi.org/10.1007/s11430-025-1639-1>

放射性水平(如 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 $^{239,240}\text{Pu}$ 等)以及年代学和沉积动力学研究(Dong等, 2010; Lin等, 2019; Guo等, 2020), 该区域其他重要放射性核素的分布、传输和储量估算仍不清楚.

人为 ^{129}I 是 ^{235}U 与 ^{239}Pu 热中子诱发裂变的一种长寿命(半衰期为 1.57×10^7 年)核素, 主要在核反应堆中产生(Hou和Hou, 2012). ^{131}I 是一种因高放射毒性而备受关注的放射性核素, 其在核事故中与 ^{129}I 一起大量释放. 碘是一种亲生物的元素, 其在藻类中的富集系数甚至高达10万, 并且可以在哺乳动物的甲状腺中蓄积(Hou等, 2000; IAEA, 2004). 因此, 放射性碘是辐射防护中最受关注的核素之一. 由于 ^{131}I 极短的半衰期(8天), 短时间内容易衰变殆尽, 不利于测定与评估. 因与 ^{131}I 相似的化学性质与环境行为, 长寿命 ^{129}I 成为重建 ^{131}I 等放射性污染物危害的有利工具. ^{129}I 由于其活跃的生物地球化学行为, 包括高水溶性、亲生物性以及长半衰期等特征成为研究放射性污染物迁移和转化机制的理想示踪剂. 前人研究了 ^{129}I 在中国边缘海的分布和运输路径, 如东海和南海西部地区(Liu等, 2016; Zhang等, 2022). 然而, 南海北部地区 ^{129}I 的报道十分有限. 此外, 以往的研究大多定性地追踪 ^{129}I 的传输特征, 对 ^{129}I 的定量评估尚未报道.

本工作拟通过对南海北部海水中 ^{129}I 及 ^{127}I 的分析, 研究其分布规律和传输方式, 示踪放射性污染物在我国南海北部的传输与扩散路径, 为未来可能的核事故下我国海洋环境辐射安全应对提供理论基础.

2 材料与方法

2.1 样品采集

研究区域及采样分布如图1所示, 本研究采样站位共计53个, 其中30个站位样品于2022年8月份采集(航次编号: NORC2022-07), 23个站位样品于2023年6~7月份采集(航次编号: NORC2023-07), 除珠江口三个站位为表层采样站位(站位: 045、046、047), 其余站位均为剖面采样站位. 所有样品均通过搭载国家自然科学基金委组织的共享航次获得, 包括河水样品4个, 海水样品204个, 其中表层海水50个, 剖面海水样品154个. 表层海水样品通过潜水泵采集, 剖面样品通过CTD(Conductivity, Temperature, and Depth)采样装置采集, 并实时测量了海水的理化指标. 本研究采集的所

有海水样品均第一时间在科考船上使用 $0.45\mu\text{m}$ 滤膜过滤去除悬浮颗粒物, 再转移至2L聚乙烯塑料瓶中密封避光储存, 带回实验室进行碘的分离纯化.

2.2 样品分析

海水中 ^{127}I 的测定: 取约1.0mL过滤后的海水样品, 用1% $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 稀释50倍, 使用ICP-MS/MS(Agilent 8800)测定 ^{127}I 的浓度, 使用 $2.0\text{ng mL}^{-1}\text{CsNO}_3$ 作为内标溶液用于监控测量效率. 该分析方法对 ^{127}I 的探测限为 0.020ng mL^{-1} , 低于所测样品中 ^{127}I 浓度1~2个数量级(Hou等, 2007).

海水中 ^{129}I 的测定: 取500mL水样, 加入100Bq的 ^{125}I 示踪剂, 对于珠江口海域有机质含量较高的海水样品, 加入5g氧化剂 $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_8$, 溶解后加入 $3\text{mol L}^{-1}\text{HNO}_3$ 调节pH值小于2, 置于 60°C 加热板上20h分解水样中有机碘组分, 再使用溶剂萃取法分离无机碘(Buraglio等, 2000; Chen等, 2014); 对于开阔大洋的海水, 其有机碘含量很小, 直接使用溶剂萃取法分离碘. 具体分离方法为: 将水样转移至分液漏斗, 加入 0.50mg 载体碘(Woodward Company, Colorado, USA, $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值小于 2.0×10^{-14}), 1.0mL的 1mol L^{-1} 的 NaHSO_3 溶液, 再用 $3\text{mol L}^{-1}\text{HNO}_3$ 调节pH值小于2, 将所有碘转化为碘化物. 加入50mL的 CCl_4 , 再加入1.5mL的 $1\text{mol L}^{-1}\text{NaNO}_2$ 溶液, 将碘离子氧化为 I_2 并萃入有机相 CCl_4 中. 分离无机相, 并向 CCl_4 中加入10mL超纯水以及1mL的 1mol L^{-1} 的 NaHSO_3 溶液, 将有机相中的 I_2 还原为碘离子并反萃至水相. 重复上述萃取和反萃步骤, 纯化碘. 将反萃液转移至15mL离心管, 加入 0.5mL 的 1mol L^{-1} 的 AgNO_3 溶液, 离心分离生成 AgI 沉淀. 将 AgI 沉淀在 60°C 下烘干后, 与铈粉(325目, Alfa Aesar, Karlsruhe, 德国)按照1:5比例混合均匀, 将混合物压入专用铜靶中, 在西安加速器质谱中心3MV加速器质谱上测定靶源中 ^{129}I . 所有样品中碘的化学回收率均大于70%. 使用超纯水作为流程空白, 采用相同的制样流程分析其中 ^{129}I . 测得流程空白的 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值均小于 5.0×10^{-13} , 比样品中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 水平低一个数量级以上.

3 结果与讨论

3.1 南海北部海水中 ^{129}I 与 ^{127}I 浓度及其分布特征

分析结果发现, 珠江入海口区域 ^{127}I 的浓度范围为

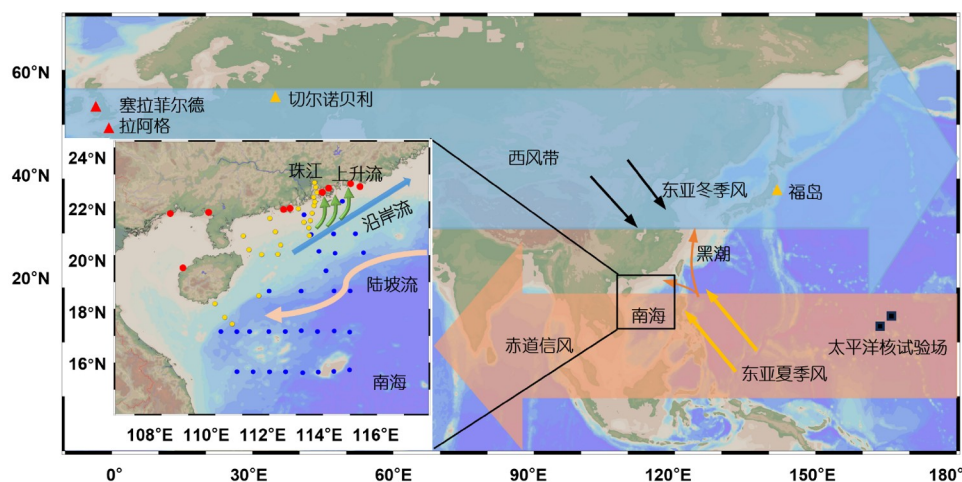


图1 南海北部海水采样站位及该区域主要大气环流和洋流

蓝色圆点为2022年海水采样站位;黄色圆点为2023年海水采样站位; ^{129}I 源项主要核设施地点(红色圆点为核电站,红色三角分别为英国塞拉菲尔德和法国拉阿格核燃料后处理厂,黄色三角为前苏联在乌克兰的切尔诺贝利核电厂以及日本福岛核电厂),该区域的主要大气环流(西风带、赤道信风、东亚夏季风、东亚冬季风)和地区洋流(黑潮、陆坡流、沿岸流、上升流)也在图中标示(舒业强等, 2018; 林旭等, 2024)

$10.5\sim 46.0\mu\text{g L}^{-1}$, 介于淡水($1\sim 10\mu\text{g L}^{-1}$)与开阔海域海水(约 $60\mu\text{g L}^{-1}$)之间(Hou等, 2009b). 结合海水盐度测量结果,发现该海域呈现明显的咸淡水交互特征.南海北部开阔海域, ^{127}I 浓度为 $46.4\sim 69.0\mu\text{g L}^{-1}$,与报道的南海西部海水中 ^{127}I 的浓度范围基本一致($44.5\sim 66.0\mu\text{g L}^{-1}$),高于东海($45.1\sim 54.7\mu\text{g L}^{-1}$)和黄海($36.5\sim 46.6\mu\text{g L}^{-1}$)海水中 ^{127}I 的浓度(Liu等, 2016; 刘丹, 2017).这主要与东海海域较浅的水深和较大的淡水稀释有关.

珠江河口区 ^{129}I 的浓度范围为 $1.5\times 10^7\sim 3.4\times 10^7\text{ atoms L}^{-1}$ (原子/升),与长江入海口 ^{129}I 水平($1.2\times 10^7\sim 4.0\times 10^7\text{ atoms L}^{-1}$)接近.南海北部表层海水中 ^{129}I 水平为 $1.0\times 10^7\sim 1.5\times 10^7\text{ atoms L}^{-1}$,明显低于河口区,与东海表层海水中 ^{129}I 浓度($0.73\times 10^7\sim 1.5\times 10^7\text{ atoms L}^{-1}$)接近(刘丹, 2017).剖面海水中 ^{129}I 浓度为 $0.050\times 10^7\sim 1.5\times 10^7\text{ atoms L}^{-1}$,呈现随深度逐渐降低的趋势,与已报道南海西部 ^{129}I 水平基本一致($0.040\times 10^7\sim 1.6\times 10^7\text{ atoms L}^{-1}$ (Zhang等, 2022)),低于黄渤海海域($2.5\times 10^7\sim 4.2\times 10^7\text{ atoms L}^{-1}$)的一半以下.

珠江河口区 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值为 $6.0\times 10^{-11}\sim 38\times 10^{-11}$,显著低于长江河口区($10\times 10^{-11}\sim 12\times 10^{-10}$)比值(独立样本 t 检验, $p=0.04$).考虑到它们的 ^{129}I 水平接近,珠江口相对较低的 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比值主要是样品 ^{127}I 浓度高于长江口所致(附图S1).这可能与季风降雨有关,研

究表明,我国碘量较高的土壤主要集中在沿海地区,土壤碘主要来自大气干湿沉降,通过降水等淋溶作用进入河水(Kadowaki等, 2018; Lin, 2023).珠江流域受东亚夏季风控制,可能受到更多来自海洋大气中的碘(Wang等, 2023),通过降水载带至河流中使其拥有相对较高的碘浓度.南海北部表层海水 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值为 $4.0\times 10^{-11}\sim 6.6\times 10^{-11}$,与东海表层 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值($3.2\times 10^{-11}\sim 13\times 10^{-11}$)以及南海东北部表层 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值(5.1×10^{-11})接近,剖面海水 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值为 $0.15\times 10^{-11}\sim 6.6\times 10^{-11}$,其中1500m水深处达到 1.5×10^{-12} ,接近人类核活动前的水平,与已报道南海西部($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$: $0.12\times 10^{-11}\sim 6.8\times 10^{-11}$)与东北部($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$: $0.12\times 10^{-11}\sim 4.4\times 10^{-11}$)剖面海水水平基本一致(Burr等, 2020; Zhang等, 2022).

3.2 南海北部 ^{129}I 的主要来源

南海北部表层海水中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值($10^{-10}\sim 10^{-11}$)高于人类核活动前海水(1.5×10^{-12})1~2个数量级(Moran等, 1998; Snyder等, 2010),表明该海域明显受到了人类核活动的影响.考虑全球核活动的分布及其 ^{129}I 排放,该海域 ^{129}I 的可能来源有:全球大气核武器试验、欧洲核燃料后处理厂、切尔诺贝利和福岛核事故、沿海运行的核电站.

核武器试验: 1945~1980年全球大气核武器试验共

释放了50~150kg的 ^{129}I (Aldahan等, 2007), 其中大部分进入了平流层, 继而在全球沉降(UNSCEAR, 2000). 1946~1962年间, 位于马绍尔群岛附近的太平洋核武器试验场(Pacific Proving Grounds, PPG; 图1)共进行了105次核试验, 总裂变当量为27.63Mt TNT当量, 比同期其他核试验的总裂变当量高出近两倍(14.78Mt (UNSCEAR, 2000)). 试验产生的大量放射性物质, 包括 ^{129}I , 在局地沉降并进入水体中, 进入北赤道暖流的污染海水在菲律宾群岛附近分叉, 部分北向流动, 形成黑潮, 其在流经吕宋海峡时, 会有部分流入南海海域(高淑敏等, 2023). 已有研究发现PPG释放的钚同位素经黑潮输送至南海海域(Wu等, 2014). 碘因其高水溶性和在海洋中的保守性, PPG释放的 ^{129}I 易随洋流运动传输至我国南海海域. 研究发现采集自关岛及南海西沙、越南昆岛、菲律宾沿海的珊瑚样品中均显著记录了来自PPG的 ^{129}I 峰值信号(Bautista等, 2016; Chang等, 2016), 证实PPG产生的 ^{129}I 可传输至南海海域.

另外赤道信风也会将大气中高挥发性的 ^{129}I 长距离输送, 研究发现, PPG核试验期间(1956~1960年)菲律宾内陆湖泊的沉积物样品观测到了显著增加的 ^{129}I 水平(增长了3倍(Zhang等, 2018)), 表明赤道信风可以将PPG产生的 ^{129}I 输送至南海及周边地区. 因此, 除了全球沉降外, PPG释放的 ^{129}I 也会通过洋流运动及信风传输等环境过程进入南海北部海域, 成为重要来源之一. 然而这些1980年前传输并直接沉降在南海海域的 ^{129}I , 大部分可能会随洋流扩散至较大范围, 且扩散至深层海水, 并有一部分通过颗粒物沉降并保留至沉积物中, 仍然保留在上层水体中的 ^{129}I 有限.

切尔诺贝利和福岛核事故: 1986年切尔诺贝利核事故向环境中排放了约1.3~1.6kg的 ^{129}I (Hou等, 2009b; Sakaguchi等, 2018), 主要沉降在北半球高纬度地区. 我国黄海沉积物(36.09°N, 120.24°E)中也记录了其释放的 ^{129}I 信号(Fan等, 2016), 但南海珊瑚时间序列样品并未发现该记录(Bautista等, 2016; Chang等, 2016), 表明切尔诺贝利释放的 ^{129}I 对低纬度地区环境 ^{129}I 贡献极小. 2011年发生的福岛核事故向环境中释放了大约1.2kg的 ^{129}I , 导致福岛近岸海水中高的 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值(2.2×10^{-9}), 但福岛核事故排放的 ^{129}I 主要随着西风带向东传输, 大部分沉降至北太平洋海域. 通过对福岛核事故后东海和南海海水中 ^{129}I 水平分析, 证明福岛核事故排放的 ^{129}I 对我国边缘海影响极小(Liu等, 2016; Zhang

等, 2022), 对我国南海北部海域 ^{129}I 的贡献十分有限.

沿海核电站: 南海沿岸大亚湾、阳江、昌江等核电站周围的表层土壤中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 的分析结果表明, 与同纬度远离核设施区域的土壤 ^{129}I 比较, 无明显差异. 采集于南海沿岸核电站附近的表层海水中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 水平也处于区域背景水平(He等, 2011; 刘丹, 2017), 表明该地区核电站对 ^{129}I 的贡献可以忽略.

核燃料后处理厂: 人类核活动产生的 ^{129}I 主要存在反应堆核燃料元件中, 核燃料后处理厂将其中的 ^{129}I 释放至环境. 虽然到目前仅有少量使用后的乏燃料进行了后处理, 但释放的 ^{129}I 成为目前环境 ^{129}I 的主要来源. 在所有运行的核燃料后处理厂(Nuclear Fuel Reprocessing Plants, NFRPs)中, 位于欧洲的两座NFRPs(英国塞拉菲尔德, 法国拉阿格)由于其较大的处理能力, 向环境释放的 ^{129}I 量最大. 其向环境中释放的气态 ^{129}I 在20世纪60年代一度高达 100GBq a^{-1} , 相当于大气核武器试验产生的 ^{129}I 的10~100倍(Reithmeier等, 2006; Bautista等, 2016). 自1996年以来, 这两座主要的NFRPs向大气中释放的 ^{129}I 急剧减少至 30GBq a^{-1} , 但向海洋排放的液态 ^{129}I 却从50年代的 20GBq a^{-1} 迅速增加至2000年的 2200GBq a^{-1} (Hou等, 2007). 排放的 ^{129}I 经洋流扩散进入大西洋和北冰洋等海域, 进入海水中的 ^{129}I 通过二次释气进入大气环境中(Reithmeier等, 2006; Aldahan等, 2007; Zhang等, 2016). 欧洲大气环境中的 ^{129}I 通过西风带可以传输至中国北方、日本乃至美国地区(Hou等, 2009b; Toyama等, 2013). 西风以及东亚冬季风的相互作用可以将大气中的 ^{129}I 传输至中低纬度地区. 研究发现1980年大气核试验终止后, 南海地区时间序列样品中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值仍存在上升现象(Bautista等, 2016; Chang等, 2016; Zhang等, 2018), 主要归因于欧洲NFRPs的释放及其长距离传输. 综上, 欧洲NFRPs排放的 ^{129}I 的长距离传输是目前南海 ^{129}I , 特别是表层海水中 ^{129}I 的主要来源.

3.3 南海北部海域 ^{129}I 的储量与输入方式

3.3.1 南海北部水柱中 ^{129}I 储量

从表层到底层海水柱中 $^{129}\text{I}(\text{atoms m}^{-2})$ 的储量可使用以下公式估算(Wang等, 2019):

$$I_x = \sum_{i=1}^{n-1} \frac{1}{2} \left({}^{129}\text{C}_{i+1} + {}^{129}\text{C}_i \right) (d_{i+1} - d_i) + {}^{129}\text{C}_1 d_1 + {}^{129}\text{C}_n (d_b - d_n),$$

式中, n 为采样深度. $^{129}\text{C}_i$ 表示在深度 i 米水深处海水中的 ^{129}I 浓度(atoms m^{-3}). d_i 和 d_b 分别表示海水第 i 次采样深度(m)和海底总深度(m).

已获得的海水剖面中 ^{129}I 水平分布表明, 南海海水 ^{129}I 在1500m以下已达到核前水平, 表明人类核活动产生的 ^{129}I 主要分布在1500m以上的海水层中(Zhang等, 2022). 因此, 本工作水柱中 ^{129}I 的储量估算仅考虑1500m水深以上. 海水深度由陆架区到开阔海域不断增加, ^{129}I 的储量也随之增加, 导致不同区域 ^{129}I 储量差异可能较大. 为估算海水柱中 ^{129}I 的储量, 结合南海海底地形条件, 研究海域被划分为陆架区(水深25.4~140m)、陆坡区(水深50.0~872m)、海盆区(水深79.0~1500m)三个区域(图2), 其中海盆区大部分站位水深大于1000m, 个别站位靠近西沙群岛附近水深较浅. 采用国家地理信息公共服务平台(天地图)估算出不同水域总面积, 陆架区为 $12.4 \times 10^{10} \text{m}^2$, 陆坡区为 $3.80 \times 10^{10} \text{m}^2$ 、海盆区为 $18.5 \times 10^{10} \text{m}^2$, 总面积为 $34.7 \times 10^{10} \text{m}^2$.

据报道, 南海上层(0~750m)水体平均停留时间为3年, 中层水体(750~1500m)平均停留时间为43年(Liu和Gan, 2017). 考虑到站位水深及水体停留时间, 将海盆区 ^{129}I 的储量分为上层和中层分别计算. 计算结果表明, 陆架区 ^{129}I 的储量为 $0.31 \times 10^{12} \sim 1.73 \times 10^{12} \text{atoms m}^{-2}$, 平均值为 $(0.88 \pm 0.06) \times 10^{12} \text{atoms m}^{-2}$. 陆坡区 ^{129}I 的储量为 $1.5 \times 10^{12} \sim 11 \times 10^{12} \text{atoms m}^{-2}$, 平均值为 $(4.6 \pm 0.3) \times 10^{12} \text{atoms m}^{-2}$. 海盆区上层 ^{129}I 的储量为 $0.93 \times 10^{12} \sim 7.3 \times 10^{12} \text{atoms m}^{-2}$, 平均值为 $(5.0 \pm 0.04) \times 10^{12} \text{atoms m}^{-2}$. 海盆区中层 ^{129}I 的储量为 $1.8 \times 10^{12} \sim 7.7 \times 10^{12} \text{atoms m}^{-2}$, 平均值为 $(4.1 \pm 0.02) \times 10^{12} \text{atoms m}^{-2}$, 不同站位水柱通量见图2所示.

研究表明, 南海北部陆架区 ^{129}I 的储量与我国东海浅水区(水深27~65m) ^{129}I 的储量($0.23 \times 10^{12} \sim 0.79 \times 10^{12} \text{atoms m}^{-2}$)以及南印度洋(水深0~100m)的 ^{129}I 储量($0.60 \times 10^{12} \sim 0.80 \times 10^{12} \text{atoms m}^{-2}$)近似(Povinec等, 2011; Wang等, 2019), 这主要是由于其海水深度以及海水 ^{129}I 浓度接近. 陆架区 ^{129}I 储量低于黄渤海(水深2.0~69m) ^{129}I 的储量($1.2 \times 10^{12} \sim 4.3 \times 10^{12} \text{atoms m}^{-2}$), 这主要是由于黄渤海 ^{129}I 浓度($3.6 \times 10^7 \sim 13 \times 10^7 \text{atoms L}^{-1}$)更高所致(Liu等, 2025). 陆架陆坡区 ^{129}I 储量接近北太平洋(水深0~800m)海水储量($5.0 \times 10^{12} \sim 9.1 \times 10^{12} \text{atoms m}^{-2}$), 这主要是由于南海与北太平洋海水 ^{129}I 水

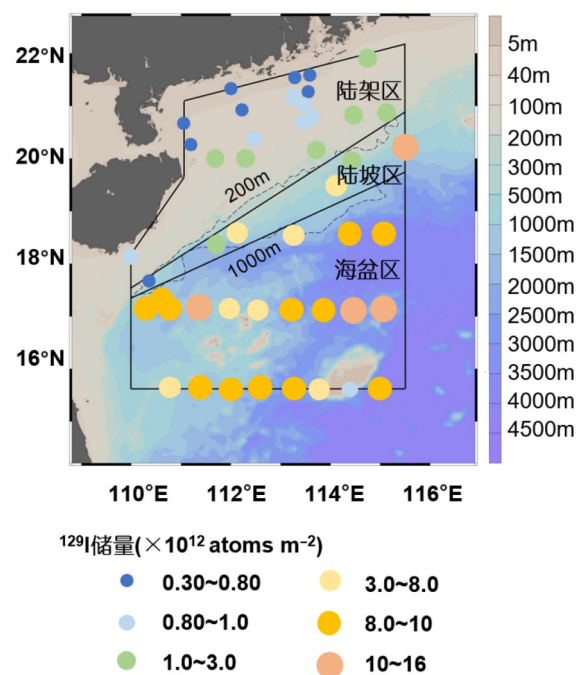


图2 南海北部海域海水中 ^{129}I 的储量分布

平($0.20 \times 10^7 \sim 2.1 \times 10^7 \text{atoms L}^{-1}$)接近(Qi等, 2023). 整个南海北部海水柱 ^{129}I 的储量远远小于波罗的海($60 \times 10^{12} \sim 70 \times 10^{14} \text{atoms m}^{-2}$)与北冰洋 ^{129}I ($4.9 \times 10^{14} \sim 9.3 \times 10^{14} \text{atoms m}^{-2}$)的储量(Alfimov等, 2004)), 这主要是由于欧洲两个核燃料后处理厂排放的大量 ^{129}I 经洋流输送导致波罗的海和北冰洋海水中 ^{129}I 浓度高于我国南海海域2个量级以上.

海水 ^{129}I 随着水团运动输入与输出, 因此需要考虑水体停留时间, 水柱储量除以水体停留时间为水柱中 ^{129}I 的年储量. 计算得到陆架区 ^{129}I 的年储量为 $(3.7 \pm 0.3) \times 10^{22} \text{atoms a}^{-1}$, 陆坡区 ^{129}I 的年储量为 $(5.8 \pm 0.3) \times 10^{22} \text{atoms a}^{-1}$, 海盆区上层 ^{129}I 的年储量为 $(31 \pm 2) \times 10^{22} \text{atoms a}^{-1}$, 海盆区中层 ^{129}I 的年储量为 $(1.8 \pm 0.08) \times 10^{22} \text{atoms a}^{-1}$, 故南海北部海域水柱中 ^{129}I 的总年储量为 $(42 \pm 3) \times 10^{22} \text{atoms a}^{-1}$.

3.3.2 不同输入方式对水柱中 ^{129}I 的贡献

南海海域海水中 ^{129}I 主要来源于直接大气沉降、河流输入以及洋流输入进入南海北部海域. 由于缺乏南海地区($15.7^\circ \sim 22.7^\circ \text{N}$)大气 ^{129}I 沉降数据, 本工作采用南海海域附近台湾岛以东石垣岛(24.3°N , 124.1°E)

1996~2003年期间的 ^{129}I 的年平均沉降数据(1.39×10^{10} atoms $\text{m}^{-2} \text{a}^{-1}$)进行计算(Toyama等, 2013). 近年来已报道的南海地区珊瑚、内陆湖泊沉积物柱样品中, $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 年代记录表明自20世纪90年代后该区域大气沉降 ^{129}I 水平大致稳定, 未呈现明显的升高趋势(Bautista等, 2016; Chang等, 2016; Zhang等, 2018), 其次, 通过对不同年份采集的南海开阔海域表层海水 ^{129}I 水平报道, 表明近年南海海域 ^{129}I 的输入未见明显升高(Yi等, 2018; Burr等, 2020; Zhang等, 2022). 因此, 采用稍早的大气沉降数据计算基本是合理的. 研究区总面积为 $34.7 \times 10^{10} \text{m}^2$, 计算得到 ^{129}I 大气沉降量为 $(0.48 \pm 0.005) \times 10^{22} \text{atoms a}^{-1}$. 需要指出全球大气 ^{129}I 沉降随着纬度降低而减小, 使用纬度稍高的石垣岛 ^{129}I 沉降通量数据可能会高估南海北部地区大气沉降带来的贡献.

除了直接大气沉降外, 沉降至地表的 ^{129}I 易于通过降雨的冲刷淋滤等过程汇集进入河流, 再由河流搬运至海洋, 从而成为边缘海海域 ^{129}I 的主要的输入方式之一. 珠江片河流泥沙公报2022(<https://www.pearlwater.gov.cn/index.html>)表明, 珠江的流域面积为45.37万平方公里, 是珠江片流域淡水输入量及泥沙输入量最大的河流, 也是该海域 ^{129}I 的最大河流输入贡献源. 其他河流(如韩江等)的年径流量之和不足珠江($2.98 \times 10^{11} \text{m}^3$)的10%, 对南海河流输入来源的 ^{129}I 贡献较小, 在此没有考虑. 基于珠江河水中溶解态 ^{129}I 的浓度为 $1.8 \times 10^{10} \sim 3.0 \times 10^{10} \text{atoms m}^{-3}$, 平均浓度为 $2.3 \times 10^{10} \text{atoms m}^{-3}$, 计算获得珠江输入南海海域的 ^{129}I 为 $(0.67 \pm 0.02) \times 10^{22} \text{atoms a}^{-1}$. 由于颗粒态 ^{129}I 仅占河流输入 ^{129}I 总量的3%(Wang等, 2019), 且主要贡献在河口陆架区沉积物中, 因此河流输入颗粒态 ^{129}I 对水柱中 ^{129}I 储量贡献有限.

洋流输入也会输送大量 ^{129}I 至边缘海地区, 成为 ^{129}I 储量的主要贡献之一(Wang等, 2019). 在水团的驱动下, 南海海水经吕宋海峡、台湾海峡、卡里马塔海峡等通道与外界进行水体交换(王东晓等, 2019), 海水 ^{129}I 经以上主要通道输送. 水柱中总 ^{129}I 年储量减去大气沉降 ^{129}I 年储量与河流输入的 ^{129}I 年储量为洋流输入 ^{129}I 年储量, 洋流输入 ^{129}I 年储量约为 $(41 \pm 3) \times 10^{22} \text{atoms a}^{-1}$, 即洋流输入 ^{129}I 贡献约为97%, 河流输入 ^{129}I 贡献约为1.6%, 直接大气沉降输入 ^{129}I 贡献约为1.1%(图3). 关于南海附近地区(菲律宾Pampanga)地下水(深

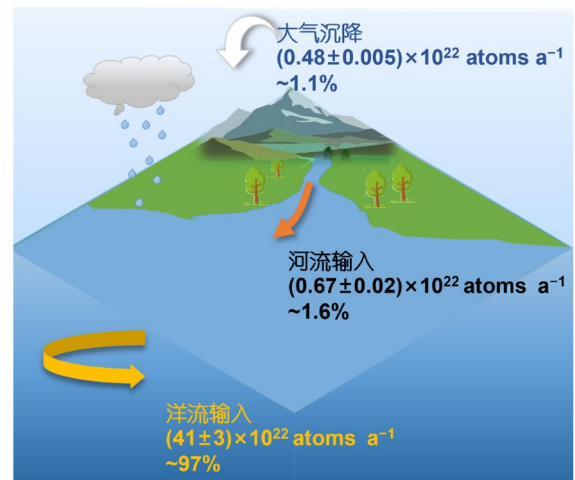


图3 南海北部海域水体中 ^{129}I 的输入方式及其贡献量

度: 6.0~175m)的报道指出, 该区域 ^{129}I 水平(未受海水入侵影响的地下水)接近核前时代海水 ^{129}I 水平(Tan等, 2020). 因此, 可以推测, 地下水 ^{129}I 对海水 ^{129}I 输入的贡献是十分有限的.

3.4 南海北部 ^{129}I 的传输与扩散

3.4.1 珠江河口区陆源 ^{129}I 传输特征

珠江河口区 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值高于开阔海域一个数量级, 表明该海域 ^{129}I 水平可能受到淡水输入的影响. 珠江口区域海水中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值和 ^{127}I 浓度分别与盐度呈显著性正相关($R^2=0.88, 0.94$; 如图4c、4d所示), 由于珠江河水相对于开放海域海水的高 ^{129}I 低 ^{127}I 浓度和低盐度的特点, 表明珠江淡水输入是河口区 ^{129}I 的主要来源, 珠江冲淡水与海水水团的相互作用是河口区 ^{129}I 、 ^{127}I 和 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 分布的主要动力学因素. $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值的分布(图4a)表明, 携带高浓度 ^{129}I 的珠江冲淡水向外输送呈现出羽状分布, 随着离岸距离的增加, 海水的 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值迅速降低至开阔海域水平. 珠江口陆架区域海水中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值与离岸距离分析(图5)发现, 高浓度 ^{129}I 淡水水团的扩散范围约为100km. 珠江入海口 ^{129}I 的分布受该海域的风场和水团运动等环境驱动因素综合影响(舒业强等, 2018). 有模拟发现在珠江流量达到峰值的夏季, 冲淡水在西南季风作用下在河口区呈现羽状分布(Wong等, 2003). 在风力的驱动下, 表层冲淡水的向南传输受到阻碍, 主要集中于河口陆架区表层范围(骆明钧等, 2024). 风力是控制

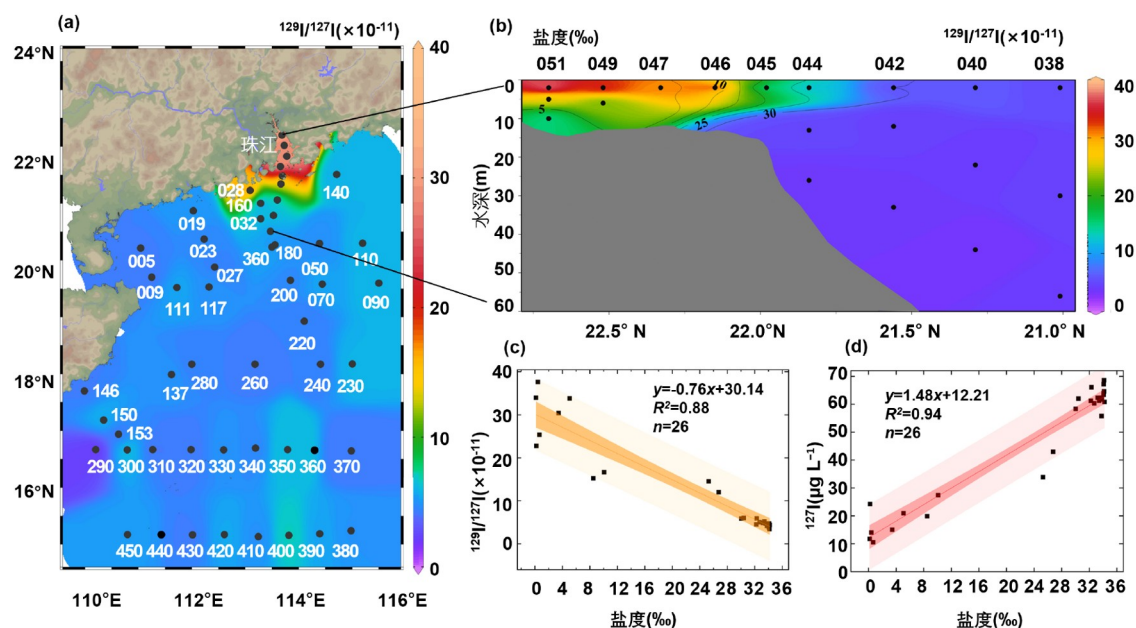


图4 南海北部海域海水 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值与盐度关系

(a) 南海北部海域表层海水 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值(白色数字为各站位编号); (b) 珠江河口区断面盐度分布(黑色数字)与 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子值; (c) 珠江河口区 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值与盐度关系; (d) 珠江河口区 ^{127}I 浓度与盐度关系

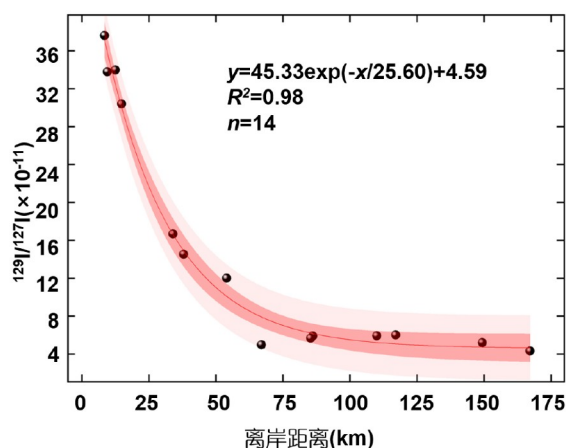


图5 南海北部珠江河口海域海水中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值随离岸距离变化

珠江冲淡水携带 ^{129}I 表层分布的主导因素。

珠江入海口断面 ^{129}I 浓度分布表明(图4b), 高水平 ^{129}I 水团主要出现在表层10m以内, 次表层海水 ^{129}I 浓度与开阔海域水平相接近, 表明珠江冲淡水主要分布在表层10m。这可能是由于冲淡水羽流层的浮力效应及近岸上升流的共同抑制作用导致冲淡水的垂向混合主要发生在表层海水(舒业强等, 2018), 进而使得冲淡

水携带的较高水平 ^{129}I 的垂向扩散范围十分有限。

3.4.2 开阔海域 ^{129}I 的分布特征与垂向扩散

南海北部开阔海域海水剖面中 ^{129}I 浓度与 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值(图6、图7和附图S2)呈现出由表层至次表层逐渐升高, 在混合层底及以下迅速降低的分布特征, 而 ^{127}I 浓度则随着深度的增加而持续增加, 这与报道的南海西部及北太平洋海域海水剖面的分布基本一致(Zhang等, 2022; Qi等, 2023)。次表层海水中较高的 ^{129}I 水平可能与碘的海洋生物化学行为有关, 大气沉降至表层海水的 ^{129}I , 以及河口高 ^{129}I 的表层水向外海的水平扩散会显著升高表层海水中 ^{129}I 水平, 而 ^{129}I 及海水的纵向迁移会使表层的 ^{129}I 向次表层和深层扩散。同时, 在海气界面处, 碘化物与臭氧反应产生的HOI和 I_2 不断释放到大气中(Carpenter等, 2013), 表层海水中高含量的浮游植物的生物活动产生的挥发性含碘有机化合物也会转移至大气中(Archer等, 2007), 在北欧大气中观测到的 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值与北海和挪威沿岸流表层海水中一致, 证明表层海水中碘的挥发是大气中碘的重要来源, 也是表层海水中碘降低的一个重要途径(Hou等, 2009a)。此外, 海洋浮游生物可以吸收海水中

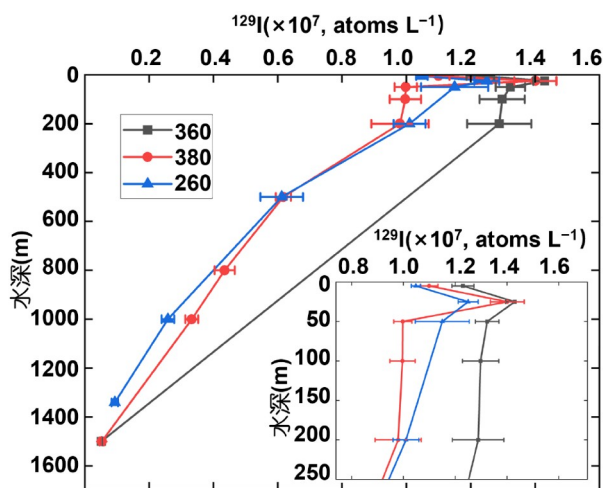


图 6 南海北部开阔海域部分站位(No. 260, 360, 380)海水 ^{129}I 浓度随深度变化

的无机碘并形成少量的颗粒态碘。这些颗粒态碘的下沉也会导致表层海水中碘丢失(Campos等, 1996)。

相较于表层海水, 次表层海水由于生物和化学作用减弱, 使得其中碘转化丢失较小。研究表明海水 ^{129}I 浓度总是低于同层位 $^{129}\text{IO}_3$ 浓度(Qi等, 2023), 随着水深碘酸盐占比增加, 整体呈现热力学更为稳定的状态, 相较于表层总 ^{129}I 量损失更少, ^{129}I 浓度逐渐累积导致其高于表层而形成峰值。由于水溶性 ^{129}I 在海水混合层以下的扩散非常缓慢, 导致次表层较高的 ^{129}I 不会因扩散而显著降低。因此, 表层 ^{129}I 损耗以及次表层的保守直接导致了 ^{129}I 浓度及 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值在次表层出现峰值。

南海海域不同站位 ^{129}I 的深度分布(图6、图7和附图S3)表明, 在1500m水深处 ^{129}I 的浓度接近人类核活动前海水的水平(^{129}I : $4.4 \times 10^5 \text{ atoms L}^{-1}$, $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$: 1.5×10^{-12} (Snyder等, 2010)), 表明人工 ^{129}I 在南海海域仅扩散至1500m水深。海水的位势密度异常与 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 的相关分析发现两者呈现显著相关($R^2=0.84$; 图7和图8), 表明 ^{129}I 的垂向扩散可能主要与海水的密度分层有关。大洋表面, 风和表面波等产生的湍流使得表层 ^{129}I 的弥散非常迅速; 而在混合层以下, ^{129}I 的弥散主要靠分子扩散和垂直方向上较弱的湍流扩散(Perianez, 2005; Qi等, 2023)。分子扩散与温度有关, 随着水深增加温度逐渐降低, 可能会减缓 ^{129}I 的扩散速率。密度分层导致湍流的扩散系数下降, 在稳定分层的状况下, 垂向混合作用减弱, 使得 ^{129}I 在水柱中的混合和扩散变得缓慢。因此, 海水的密度分层可能减缓了 ^{129}I 的垂向扩散。

4 结论

根据上述结果与讨论, 主要结论如下: (1) 我国南海北部海域 ^{129}I 水平与我国南海西部海域和东海海域接近; (2) 河流输入是河口和沿岸海域 ^{129}I 的主要来源, 但其主要分布在距离河口100km以内海域, 且主要分布于表层10m以上的海水中。洋流输入是南海北部海域海水中 ^{129}I 的主要输入方式, 不同贡献量依次为: 洋流输入>河流输入>直接大气沉降; (3) 夏季盛行的西南季风导致表层 ^{129}I 水团在河口陆架区呈现羽状分布特

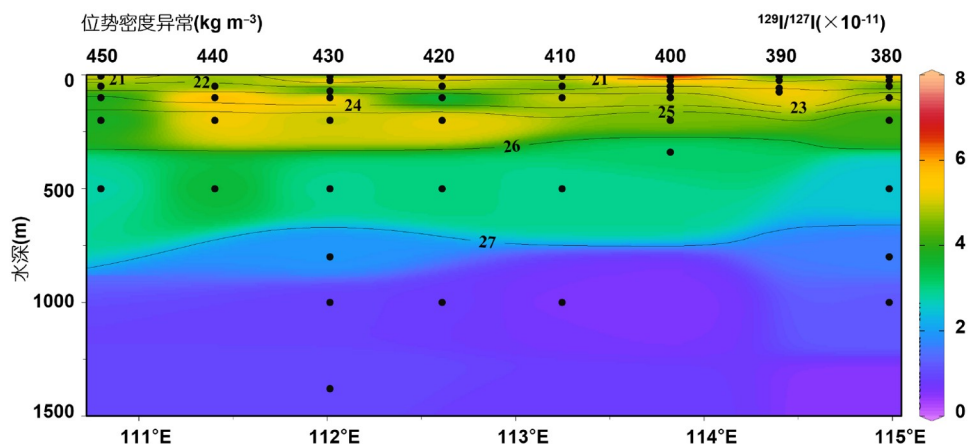


图 7 南海北部15.7°N断面海水中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值和位势密度异常(图中黑色数字)随海水深度的变化

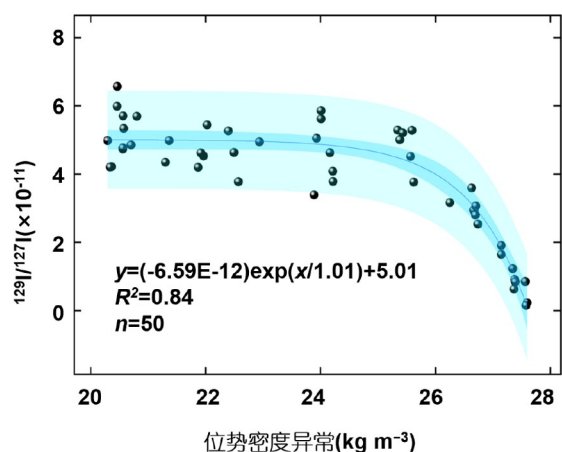


图8 南海北部海水中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值与位势密度异常指数相关性分析

征, 珠江 ^{129}I 水团的南向传输受到制约, 阻碍了其向外海的扩展. 垂直方向上, 由于淡水羽流的浮力效应和上升流的存在, ^{129}I 垂向扩散十分有限; (4) 开阔海域中, 表层 ^{129}I 的损耗与次表层 ^{129}I 的保守导致 ^{129}I 浓度以及 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比值在次表层呈现峰值.

致谢 感谢西安地球环境创新研究院张梦婷博士、唐露等采集海水样品, 姜欢协助完成样品中 ^{127}I 的ICP-MS/MS测定. 本研究的数据及样品采集由国家自然科学基金委员会共享航次计划项目(42149907, 42249907)资助. 航次NORC2022-07和NORC2023-07分别由“实验3”、“海科68”号科考船实施, 在此一并致谢.

补充材料 本文的补充材料见网络版<http://earthcn.sci-china.com>. 补充材料为作者提供的原始数据, 作者对其学术质量和内容负责.

参考文献

- 高淑敏, 韩树宗, 倪煜淮, 吴克俭, 刘增宏, 许建平. 2023. 西北太平洋黑潮水入侵南海的路径、成因及影响. *海洋湖沼通报*, 45: 163–172
- 林旭, 吴中海, 董延钰, 谢远云, 刘海金, 李兆宁. 2024. 新生代亚洲季风的演化过程. *地质力学学报*, 30: 673–690
- 刘丹. 2017. ^{129}I 在海洋环境中的示踪研究. 博士学位论文. 北京: 中国科学院大学. 22–50
- 骆明钧, 李骏旻, 丁扬, 张丛, 周玲玲. 2024. 基于FVCOM的夏季珠江冲淡水年际变化特征. *海洋科学进展*, 42: 221–237
- 舒业强, 王强, 姐婷婷. 2018. 南海北部陆架坡流系研究进展. *中国*

- 科学: 地球科学*, 48: 276–287
- 王东晓, 王强, 蔡树群, 尚晓东, 彭世球, 舒业强, 肖劲根, 谢晓辉, 张志伟, 刘志强, 兰健, 陈大可, 薛惠洁, 王桂华, 甘剑平, 解习农, 张锐, 陈慧, 杨庆轩. 2019. 南海中深层动力格局与演变机制研究进展. *中国科学: 地球科学*, 49: 1919–1932
- 张君珏, 苏奋振, 王雯玥. 2018. 南海资源环境地理研究综述. *地理科学进展*, 37: 1443–1453
- 张梦婷. 2021. 我国南海海域 ^{129}I 和 $^{239, 240}\text{Pu}$ 水平及环境示踪研究. 博士学位论文. 北京: 中国科学院大学. 20–46
- Aldahan A, Alfimov V, Possnert G. 2007. ^{129}I anthropogenic budget: Major sources and sinks. *Appl Geochem*, 22: 606–618
- Alfimov V, Aldahan A, Possnert G, Winsor P. 2004. Anthropogenic iodine-129 in seawater along a transect from the Norwegian coastal current to the North Pole. *Mar Pollut Bull*, 49: 1097–1104
- Archer S D, Goldson L E, Liddicoat M I, Cummings D G, Nightingale P D. 2007. Marked seasonality in the concentrations and sea-to-air flux of volatile iodocarbon compounds in the western English Channel. *J Geophys Res*, 112: C08009
- Bautista A T, Matsuzaki H, Siringan F P. 2016. Historical record of nuclear activities from ^{129}I in corals from the northern hemisphere (Philippines). *J Environ Radioact*, 164: 174–181
- Buraglio N, Aldahan A, Possnert G. 2000. Analytical techniques and applications of ^{129}I in natural water. *Nucl Instruments Methods Phys Res Sect B-Beam Interact Mater Atoms*, 172: 518–523
- Burr G S, Matsuzaki H, Wang B S, Kusuno H, Tokuyama H, Yamagata T, Yu T L, Wang S L, Chang C C, Jull A J T, Lo C H. 2020. Anthropogenic ^{129}I in the South China Sea and coastal waters around Taiwan. *Elem Sci Anth*, 8: 064
- Campos M L A M, Farrenkopf A M, Jickells T D, Luther III G W. 1996. A comparison of dissolved iodine cycling at the Bermuda Atlantic Time-series Station and Hawaii Ocean Time-series Station. *Deep-Sea Res Part II-Top Stud Oceanogr*, 43: 455–466
- Carpenter L J, MacDonald S M, Shaw M D, Kumar R, Saunders R W, Parthipan R, Wilson J, Plane J M C. 2013. Atmospheric iodine levels influenced by sea surface emissions of inorganic iodine. *Nat Geosci*, 6: 108–111
- Chang C C, Burr G S, Jull A J T, Russell J L, Biddulph D, White L, Prouty N G, Chen Y G, Shen C C, Zhou W J, Lam D D. 2016. Reconstructing surface ocean circulation with ^{129}I time series records from corals. *J Environ Radioact*, 165: 144–150
- Chen N, Hou X L, Zhou W J, Fan Y K, Liu Q. 2014. Analysis of low-level ^{129}I in brine using accelerator mass spectrometry. *J Radioanal Nucl Chem*, 299: 1965–1971
- Dong W, Zheng J, Guo Q, Yamada M, Pan S M. 2010. Characterization of plutonium in deep-sea sediments of the Sulu and South China Seas. *J Environ Radioact*, 101: 622–629

- Fan Y K, Hou X L, Zhou W J, Liu G S. 2016. ^{129}I record of nuclear activities in marine sediment core from Jiaozhou Bay in China. *J Environ Radioact*, 154: 15–24
- Guo J, Costa Jr. O S, Wang Y H, Lin W H, Wang S P, Zhang B, Cui Y F, Fu H, Zhang L L. 2020. Accumulation rates and chronologies from depth profiles of ^{210}Pb and ^{137}Cs in sediments of northern Beibu Gulf, South China sea. *J Environ Radioact*, 213: 106136
- He C H, Hou X L, Zhao Y L, Wang Z H, Li H B, Chen N, Liu Q, Zhang L Y, Luo M Y, Liang W G, Fan Y K, Zhao X L. 2011. ^{129}I level in seawater near a nuclear power plant determined by accelerator mass spectrometer. *Nucl Instrum Meth A*, 632: 152–156
- Hou X L, Dahlgaard H, Nielsen S P, Ding W J. 2000. Iodine-129 in human thyroids and seaweed in China. *Sci Total Environ*, 246: 285–291
- Hou X L, Aldahan A, Nielsen S P, Possnert G, Nies H, Hedfors J. 2007. Speciation of ^{129}I and ^{127}I in seawater and implications for sources and transport pathways in the North Sea. *Environ Sci Technol*, 41: 5993–5999
- Hou X L, Aldahan A, Nielsen S P, Possnert G. 2009a. Time series of ^{129}I and ^{127}I speciation in precipitation from denmark. *Environ Sci Technol*, 43: 6522–6528
- Hou X L, Hansen V, Aldahan A, Possnert G, Lind O C, Lujanienė G. 2009b. A review on speciation of iodine-129 in the environmental and biological samples. *Anal Chim Acta*, 632: 181–196
- Hou X L, Povinec P P, Zhang L Y, Shi K L, Biddulph D, Chang C C, Fan Y K, Golser R, Hou Y K, Jeřkovský M, Tim Jull A J, Liu Q, Luo M Y, Steier P, Zhou W J. 2013. Iodine-129 in seawater offshore fukushima: Distribution, inorganic speciation, sources, and budget. *Environ Sci Technol*, 47: 3091–3098
- Hou X L, Hou Y K. 2012. Analysis of ^{129}I and its application as environmental tracer. *J Anal Sci Technol*, 3: 135–153
- IAEA. 2004. Sediment Distribution Coefficients and Concentration Factors for Biota in the Marine Environment. Technical Report. Vienna: International Atomic Energy Agency
- Kadowaki M, Katata G, Terada H, Suzuki T, Hasegawa H, Akata N, Kakiuchi H. 2018. Impacts of anthropogenic source from the nuclear fuel reprocessing plants on global atmospheric iodine-129 cycle: A model analysis. *Atmos Environ*, 184: 278–291
- Lin J R. 2023. Dissolved iodine in the Changjiang River Estuary, China. *Water Sci Technol*, 88: 1269–1279
- Lin W H, Yu K F, Deng F F, Wang Y H, Feng Y, Mo Z N, Ma H. 2019. Fingerprints of radionuclides in modern coral skeletons in the South China Sea. *China Environ Sci*, 39: 4279–4289
- Liu D, Hou X L, Du J Z, Zhang L Y, Zhou W J. 2016. ^{129}I and its species in the East China Sea: Level, distribution, sources and tracing water masses exchange and movement. *Sci Rep*, 6: 36611
- Liu J L, Zhao X, Chen N, Liu Q, Zhang M T, Zhang L Y, Novikau R, Hou X L. 2025. The transport, distribution, and budget of anthropogenic ^{129}I in the Bohai and North Yellow Seas, China. *J Hazard Mater*, 487: 137101
- Liu Z Q, Gan J P. 2017. Three-dimensional pathways of water masses in the South China Sea: A modeling study. *J Geophys Res-Oceans*, 122: 6039–6054
- Moran J E, Fehn U, Teng R T D. 1998. Variations in $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratios in recent marine sediments: Evidence for a fossil organic component. *Chem Geol*, 152: 193–203
- Perianez R. 2005. Modelling the Dispersion of Radionuclides in the Marine Environment. Berlin Heidelberg: Springer, 2: 27–28
- Povinec P P, Breier R, Coppola L, Groening M, Jeandel C, Tim Jull A J, Kieser W E, Lee S H, Liong Wee Kwong L, Morgenstern U, Park Y H, Top Z. 2011. Tracing of water masses using a multi isotope approach in the southern Indian Ocean. *Earth Planet Sci Lett*, 302: 14–26
- Qi Y Z, Matsuzaki H, Yamagata T, Nagai H. 2023. Iodine cycling in the subarctic Pacific Ocean: Insights from ^{129}I . *Geochim Cosmochim Acta*, 344: 12–23
- Reithmeier H, Lazarev V, Rühm W, Schwikowski M, Gäggeler H W, Nolte E. 2006. Estimate of European ^{129}I releases supported by ^{129}I analysis in an Alpine ice core. *Environ Sci Technol*, 40: 5891–5896
- Sakaguchi A, Inaba R, Sasa K, Matsunaka T, Hosoya S, Takahashi T, Honda M, Yamano H, Sasaki K, Yamasaki S, Watanabe T, Sueki K. 2018. Reconstruction of anthropogenic ^{129}I temporal variation in the Japan Sea using a coral core sample. *Mar Environ Res*, 142: 91–99
- Snyder G, Aldahan A, Possnert G. 2010. Global distribution and long-term fate of anthropogenic ^{129}I in marine and surface water reservoirs. *Geochem Geophys Geosyst*, 11: 2009GC002910
- Tan S P V, Bautista Vii A T, Mendoza N D S, Racadio C D T, Puthenpurekal M, Resurreccion A C, Matsuzaki H. 2020. Iodine-129 for determining the origin of salinity in groundwater in Pampanga, Philippines. *J Environ Radioact*, 218: 106239
- Toyama C, Muramatsu Y, Igarashi Y, Aoyama M, Matsuzaki H. 2013. Atmospheric fallout of ^{129}I in Japan before the fukushima accident: Regional and global contributions (1963–2005). *Environ Sci Technol*, 47: 130718124121008
- UNSCEAR. 2000. Sources and Effects of Ionizing Radiation. Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation to the General Assembly. Technical Report. New York: United Nations
- Wang J L, Fan Y K, Liu D T, Lu T, Hou X L, Du J Z. 2019. Spatial and vertical distribution of ^{129}I and ^{127}I in the East China Sea: Inventory, source and transportation. *Sci Total Environ*, 652: 177–188
- Wang W, Wang X Q, Zhang B M, Chi Q H, Liu Q Q, Zhou J, Cheng X

- B, Nie L S, Liu H L, Liu D S, Yan T T, Li L X. 2023. Spatial distribution of iodine in the pedosphere of China and its influencing factors. *J Geochem Explor*, 248: 107191
- Wong L A, Chen J C, Xue H, Dong L X, Guan W B, Su J L. 2003. A model study of the circulation in the Pearl River Estuary (PRE) and its adjacent coastal waters: 2. Sensitivity experiments. *J Geophys Res*, 108: 2002JC001452
- Wu J W, Zheng J, Dai M H, Huh C A, Chen W F, Tagami K, Uchida S. 2014. Isotopic composition and distribution of plutonium in Northern South China Sea sediments revealed continuous release and transport of Pu from the Marshall Islands. *Environ Sci Technol*, 48: 3136–3144
- Yi P, Chen X G, Wang Z X, Aldahan A, Hou X L, Yu Z B. 2018. Iodine isotopes ¹²⁹I and ¹²⁷I in the hydrosphere of Qinghai-Tibet region and South China Sea. *J Environ Radioact*, 192: 86–94
- Zhang L Y, Hou X L, Li H C, Xu X. 2018. A 60-year record of ¹²⁹I in Taal Lake sediments (Philippines): Influence of human nuclear activities at low latitude regions. *Chemosphere*, 193: 1149–1156
- Zhang L Y, Hou X L, Xu S. 2016. Speciation of ¹²⁷I and ¹²⁹I in atmospheric aerosols at Risø, Denmark: Insight into sources of iodine isotopes and their species transformations. *Atmos Chem Phys*, 16: 1971–1985
- Zhang M T, Hou X L, Zhang L Y, Qiao J X, Gao R Q, Liu Q. 2022. Distribution of anthropogenic ¹²⁹I in the Western South China Sea and its application for tracing the sources and movement of pollution. *Environ Sci Technol*, 56: 12298–12306

(责任编辑: 李超)