



福岛核事故泄漏的大气放射性核素监测及其对西安地区的影响

刘龙波^{①*}, 武山^①, 曹军骥^②, 解峰^①, 师全林^①, 张昌云^①, 唐寒冰^①, 何小兵^①, 张蓉^②, 陈莉云^①, 韦冠一^①, 张志弘^①, 张佳媚^①, 党海军^①

① 西北核技术研究所, 西安 710024;

② 中国科学院地球环境研究所, 西安 710075

* 联系人, E-mail: lomboliu@live.cn

2012-05-16 收稿, 2012-09-04 接受

摘要 2011年3月日本福岛核电站受海啸冲击后发生了严重核事故, 并造成放射性核素的大量泄漏. 事故发生后, 在西安开展了3个月的大气放射性核素监测, 获得了 ^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs 和 ^{133}Xe 等核素的浓度数据, 并结合切尔诺贝利核事故后西安的监测数据及其他国家和地区的监测数据对本次监测结果进行了讨论, 分析了泄漏核素到达西安的可能路径. 从传输路径分析来看, 福岛泄漏核素的扩散主要受西风影响, 但在太平洋局部出现的反气旋和源项的连续释放特点, 使泄漏核素到达中国的大气传输路径比较复杂.

关键词

福岛核事故
放射性核素
大气辐射监测
传输路径

2011年3~4月的日本福岛核事故是继1986年切尔诺贝利核事故后的又一次具有全球重要影响的核事故. 3月11日, 9级地震及其引发的海啸损坏了福岛核电站的反应堆的冷却系统, 致使堆内温度失控. 3月12~15日, 堆内产生的大量氢气排放到厂房内, 1~4号反应堆相继发生爆炸, 导致大量的放射性核素直接释放到大气中. 4月12日, 日本政府宣布福岛核泄漏的事故等级(The International Nuclear and Radiological Event Scale, INES)为7级, 与切尔诺贝利核事故相同.

福岛核事故发生后, 日本本土大气中随即探测到放射性核素, 美国^[1]和加拿大^[2,3]等北美国家、希腊^[4]和德国^[5]等欧洲国家^[6]、俄罗斯(亚洲区域)^[7]、中国、韩国^[8]以及越南^[9]等亚洲国家先后开始密切关注释放到大气中的放射性核素的扩散情况. 气体裂变产物放射性氙同位素尤其是 ^{133}Xe 是核泄漏的重要指

示核素, 但由于技术和设备的限制, 只有部分地区对其进行了监测^[10]. ^{131}I , ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 等核事故特征核素因其较易监测而且对人体有直接的健康影响, 是监测的主要对象. 自3月15日开始, 上述各国均陆续在当地大气中监测到超过本底的 ^{131}I . 从放射性核素出现的峰值时间来看^[11,2,3,9], 这些放射性核素主要随着西风带环流传过太平洋向北美洲传输, 而后到达欧洲、亚洲. 除了各国的监测体系外, 《全面禁止核试验条约》组织(Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization, CTBTO)筹委会在全球建立的国际监测系统(International Monitoring System, IMS)^[11]中, 有63个放射性气溶胶监测台站和27个惰性气体氙监测台站也进行了监测, 结果显示, 福岛核事故后两周内, 北半球所有台站和南半球的3个台站都监测到了高于本底的放射性核素^[1]. 从监测数据来看, 大部分地区的 ^{131}I 浓度在3月底至4月初达到最大, 从4月

1) Stoeckler U, Nikkinen M, Gheddou A. Detection of radionuclides emitted during the Fukushima nuclear accident with the CTBT radionuclide network. 2011 Monitoring Research Review: Ground-Based Nuclear Explosion Monitoring Technologies. 2011

引用格式: 刘龙波, 武山, 曹军骥, 等. 福岛核事故泄漏的大气放射性核素监测及其对西安地区的影响. 科学通报, 2013, 58: 372-378

英文版见: Liu L B, Wu S, Cao J J, et al. Monitoring of atmospheric radionuclides from the Fukushima nuclear accident and assessing their impact on Xi'an, China. Chin Sci Bull, 2013, 58, doi: 10.1007/s11434-012-5521-4

中旬开始逐渐减小至本底水平。在各地监测的同时,日本 Chino 等人^[12]和瑞典的 Stohl 等人^[13]运用大气输运模拟计算,研究了释放核素的总量和释放速率随时间的变化过程。

国家环保部于 2011 年 3 月 26 日首次发布消息,称在黑龙江省多地监测到了放射性核素 ^{131}I , 其环境辐射水平仍处于本底范围。随后连续数日发布了各地对 ^{131}I 的监测结果,并连续每日发布全国省会城市和部分地级市辐射环境实时空气吸收剂量率监测值。直至 5 月 21 日,监测结果表明,我国上述主要城市的环境辐射水平一直处于本底水平范围内(http://www.mep.gov.cn/gkml/hbb/qt/201105/t20110521_210981.htm)。研究工作方面,乔方利等人^[14]报道了对泄漏核素大气扩散的预测,王海洋等人^[15]提出了泄漏源项的估计,张文杰等人²⁾和周程等人^[16]分别报道了在北京和南京对气溶胶中放射性核素的监测结果。本文汇总了在西安对大气气溶胶和惰性气体氙的核素监测结果,并对监测结果进行对比分析,探讨其输送路径。

1 监测过程

福岛核事故发生后,从 3 月 23 日到 6 月 30 日我们在西安市东郊(距市中心 20 km)开展了取样监测。3 月 23 日至 4 月 15 日为连续监测,以后由于相关核素浓度显著降低,且福岛核电站再无爆炸或起火等事件发生,监测频率改为每周一次。监测方法参考 IMS 的监测规范^[17,18]。

1.1 大气气溶胶中放射性核素监测

使用自行研制的气溶胶采样器进行取样,采样流量 450 m³/h, 24 小时取样空气体积大于 10000 m³。采样器的基本原理及性能测试参见文献[19]。使用 NF 聚丙烯纤维滤材取样,对 0.2 μm 气溶胶的捕集效率为 90%^[20]。取样后滤材放入专用模具中,用自动压片机压成圆片,用 HPGe γ 谱仪(相对效率 60%, 能量分辨率为 1.94 keV(1332.5 keV))进行相关放射性核素的测量,重点测量易挥发、半衰期适中的裂变产物核素,如 ^{131}I , ^{132}Te , ^{132}I 和 ^{137}Cs 等。

相关核素的活度 A 由式(1)^[21]计算得到:

$$A = \frac{N}{t_1 \varepsilon_i p_i K_c}, \quad (1)$$

式中, N 为由 GammaVision 解谱软件通过计数相加法自动扣除本底后得出的净峰面积; t_1 为样品测量活时间, s; ε_i 为所测 γ 能峰的探测效率; p_i 为所测 γ 能峰的分支比; K_c 为测量期间的衰变校正因子, 有

$$K_c = \frac{1 - \exp(-\lambda t_m)}{\lambda t_m}, \quad (2)$$

式中, t_m 为样品测量实时间, s; λ 为该放射性核素的衰变常数, s⁻¹。

相关核素在大气中的浓度为

$$C = \frac{A}{V \xi K_w K_s}, \quad (3)$$

式中, C 为相关核素的在大气中的活度浓度, Bq/m³; V 为标准温度和压力下的取样体积, m³; ξ 为取样效率, 气溶胶取样一般为 1; K_s 为取样期间的衰变校正因子, 有

$$K_s = \frac{1 - \exp(-\lambda t_s)}{\lambda t_s}, \quad (4)$$

式中, t_s 为取样持续时间, s;

K_w 为取样结束到开始测量期间的衰变校正因子, 有

$$K_w = \exp(-\lambda t_w), \quad (5)$$

式中, t_w 为从取样结束到开始测量的时间间隔, s。

当样品中待测核素的活度小于最小可探测活度 (Minimum Detectable Activity, MDA) 时, 以小于最小可探测浓度 (Minimum Detectable Concentration, MDC) 作为浓度测量结果。MDA 由式(6)^[18]计算得到

$$\text{MDA} = \frac{L_d}{t_1 \varepsilon_i p_i K_c} = \frac{2.71 + 4.65 \sqrt{\mu_B}}{t_1 \varepsilon_i p_i K_c}, \quad (6)$$

式中, μ_B 为在测量的能量范围内本底测量标准偏差, 有 $\mu_B = \sum \text{ROI}$, ROI 为能量范围内 $\pm 1.25 \text{FWHM} (\pm 3\sigma)$ 的区域。

MDC 的计算^[18]为将式(6)得到的 MDA 作为活度 A 代入式(3)即可。所测主要核素的半衰期和 γ 射线能量见表 1。根据 IMS 台站的监测规范, 气溶胶样品取样后放置 24 h 才开始测量, 以使天然氡子体充分衰变, 减小对其他核素的测量干扰。当待测核素浓度

2) 张文杰, 白志鹏, 孟凡, 等. 日本地震引发的放射性核素对我国北方区域影响初步分析. 第 18 届中国大气环境科学与技术大会 2011. 杭州

表 1 主要核素半衰期和γ射线能量值

	¹³¹ I	¹³² Te	¹³² I	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs	⁷ Be	¹³³ Xe
半衰期	8.02 d	76.8 h	2.29 h	30.1 a	2.07 a	53.3 d	5.24 d
衰变常数(d)	0.0864	0.217	7.28	6.32×10 ⁻⁵	9.20×10 ⁻⁴	0.013	0.132
γ射线能量(keV)	364.5	228.2	667.7	661.6	604.7	477.6	81

较高时,可以适当缩短放置时间. 根据样品中待测核素活度情况,测量时间为 2~24 h. 各核素的活度浓度均按各自的衰变常数推算到取样开始时刻. 在取样、放置和测量均为 24 h,取样体积 10000 m³的条件下,¹³¹I 和 ¹³⁷Cs 的 MDC 分别为 5.4 和 4.3 μBq/m³.

在气溶胶取样的质量控制方面,可以使用 ⁷Be. 大气中 ⁷Be 主要产生于平流层和对流层顶,以气溶胶的形式存在于大气中. 由于其浓度变化主要受当地太阳辐射以及气溶胶沉降过程的影响,因此相对稳定,在大气放射性气溶胶的监测中常作为系统运行状态的指示性核素,在某一监测地点的长期监测的质量控制中意义重大. 本次监测到 ⁷Be 的浓度在 3.81~12.24 mBq/m³,与常印忠等人^[22]2002 年监测的西安同期的 2~12 mBq/m³ 相同. 这说明本次监测的系统状态正常.

1.2 大气放射性氙监测

使用自行研制的大气氙取样器进行取样: 空气压缩机抽取大气,初步除去水分和二氧化碳等杂质后,用活性炭吸附柱低温吸附氙,加热(200℃)脱附,再经小吸附柱进一步分离除去氢等杂质,纯化浓缩氙. 24 小时获取的总氙量不小于 4 mL,有效空气取样体积约 50 m³. 获取的氙样品先用低能平面 HPGe γ 谱仪系统进行放射性氙同位素的测量,由式(1)测得某种放射性氙同位素的活度,计算公式同式(1). 谱仪系统对于 ¹³³Xe 81 keV γ 射线的探测效率为 50%. 然后用四极杆气体质谱计 QMS 测量样品中的总氙浓度^[23],根据样品中氙的浓度和大气中氙的稳定同位素的浓度比值计算取样效率. 对大气中放射性氙同位素的活度浓度的计算公式原理与式(3)相同,但习惯上以样品气体积,而不是取样空气体积作为取样体积的基础. 这样,对大气中某种放射性氙同位素的活度浓度的计算见式(7):

C_x = (AC₀P₀T) / (V_sC_sPT₀K_wK_s), (7)

式中, C_x 为大气中放射性氙同位素的活度浓度, Bq/m³; A 为样品中放射性氙同位素的活度, Bq; C_s 为样品气中氙浓度, 10⁻⁶ v/v; V_s 为样品气体体积, m³; P 为样品气体压力, kPa; T 为样品气体温度, K; P₀ 为标准状况大气压, 101.325 kPa; T₀ 为标准状况温度, 273.15 K; C₀ 为标准状况大气中氙浓度, 0.087×10⁻⁶ v/v.

气体核素的 MDA 的计算同式(6), MDC 的计算需要结合式(6)和(7), 原理与气溶胶样品中核素的 MDC 计算相同. 在取样 24 h, 制源 3 h, 测量 24 h 的情况下, 系统对 ¹³³Xe 的 MDC 为~0.2 mBq/m³.

2 监测结果与讨论

2.1 核素浓度及变化

(i) 气溶胶形态的放射性核素. 本研究从 3 月 23 日开始在西安开展监测, 即在气溶胶样品中监测到了浓度显著高于 MDC 的 ¹³¹I. 后续的监测还发现了 ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, ¹³²I 和 ¹³²Te 等核素. 需要说明的是, 上述核素中, 除了 ¹³⁷Cs 由于半衰期较长, 过去核事故使大气中存在一个很小的本底浓度(比如欧洲大气中的本底浓度在 0.001 mBq/m³ 以下^[5])外, 其他核素的半衰期较短, 在没有新增源项的情况下本底浓度基本可以忽略. 本次监测到的 ¹³¹I, ¹³⁷Cs 和 ¹³⁴Cs 的活度浓度随日期的变化见图 1, 其他核素的浓度则很快衰减至 MDC 以下. 从图 1 可以看出, ¹³¹I 分别在 3 月 25 日和 4 月 5 日出现峰值, 浓度分别为 3.92 和 1.66 mBq/m³; 4 月 6 日以后, ¹³¹I 呈现明显的指数下降过程, 至 4 月 27 日接近 MDC.

所有放射性核素本身有半衰期, 如果其在大气中稳定存在, 没有新的来源, 则其浓度衰减也会呈现指数关系, 浓度衰减系数应当为其衰变常数(见表 1). 若以如式(8)所示公式对 4 月 6 日以后 ¹³¹I 的活度浓度的数据拟合, 得到 ¹³¹I 浓度的浓度衰减系数 k(¹³¹I) 为 0.227 d⁻¹, R² 为 0.9657(见图 1).

C_t(Y) = C₀(Y)exp[-k(Y)t], (8)

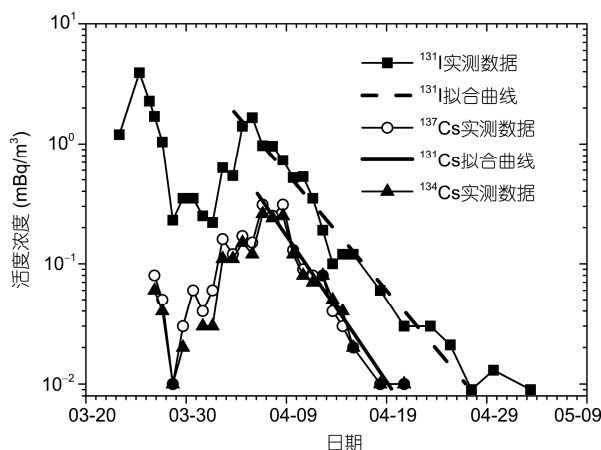


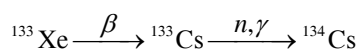
图1 大气气溶胶中主要核素的活度浓度变化

式中, $C_0(Y)$ 和 $C_t(Y)$ 分别表示核素 Y 在 0 时刻和 t 时刻的浓度, Bq/m^3 ; $k(Y)$ 为核素 Y 的浓度衰减系数, d^{-1} .

$k(^{131}I)$ 0.227 d^{-1} 显著大于 ^{131}I 的衰变常数 0.0864 d^{-1} , 说明大气中 ^{131}I 浓度的衰减除了自身衰变外, 还有沉降或大气扩散稀释作用. 如果将 ^{131}I 浓度全部校正到 4 月 6 日, 即排除自身衰变的影响, 则大气中浓度的衰减系数为 0.141 d^{-1} .

本研究观测到的 ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 的浓度变化趋势与 ^{131}I 相似, 最大值分别为 0.26 和 0.31 mBq/m^3 , 出现在 4 月 6 日. ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 的浓度变化几乎完全一致, 而其最大值比 ^{131}I 滞后 1 天, 可能是由于 ^{131}I 部分以气态存在, 大气中的扩散速度较快的缘故. 同样对 4 月 6 日以后 ^{137}Cs 浓度的数据拟合可以得到, 其浓度衰减系数 $k(^{137}Cs)$ 为 0.251 d^{-1} (R^2 为 0.9061), 远大于其自身的衰变常数 $6.32 \times 10^{-5} d^{-1}$, 也大于排除了衰变影响的 ^{131}I 的浓度衰减系数 0.141 d^{-1} . 这说明在西安监测到的放射性核素的浓度变化中, ^{137}Cs 比 ^{131}I 的浓度衰减更快, 这可能是由于碘作为挥发性核素, 即使沉降也容易再蒸发返回大气, 也可能是铯和碘所在颗粒粒径不同, 因而在大气中的沉降速度不同. 详细地分析这些核素的沉降机理还需要沉积样品的数据.

在核事件性质判断方面, $^{134}Cs/^{137}Cs$ 可以作为事件性质的一个判据^[18]. 在反应堆中, ^{133}Xe 衰变成稳定核素 ^{133}Cs , 而 ^{133}Cs 可以被活化成 ^{134}Cs . 核反应过程为:



反应堆中的活化产物 ^{134}Cs 会不断累积, 使其活度与裂变产物 ^{137}Cs 的活度相当, 而核爆炸产生的 ^{134}Cs 非常少, 因此通常认为 ^{134}Cs 可以作为核反应堆

事故的特征核素. 1986 年切尔诺贝利事故后监测的 $^{134}Cs/^{137}Cs$ 为 0.58, 本次监测的平均值为 0.88, 说明 ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 的浓度相当, 其源项是比较典型的反应堆事故.

(ii) 气态放射性核素. 核事故释放的气体核素一般有 Xe 和 Kr 的放射性同位素, 其中 ^{133}Xe , ^{131}Xe , ^{131m}Xe 和 ^{135}Xe 等放射性氙同位素的半衰期均较短, 可以反映近期大气中放射性核素情况, 是气体核素监测的主要对象. 图 2 是 3 月 27 日~6 月 10 日连续监测的 ^{133}Xe 的浓度变化曲线, 监测中发现的最大值是 3 月 27 日的 5.5 Bq/m^3 , 其后于 3 月 30 日和 4 月 5 日两次出现极大值 1.0 和 0.88 Bq/m^3 , 其中 4 月 5 日的峰值出现时间与 ^{131}I 相同. 4 月 5 日以后 ^{133}Xe 的浓度指数下降, 拟合得到浓度衰减系数 $k(^{133}Xe)$ 为 0.130 d^{-1} , 与其衰变常数 0.132 d^{-1} 吻合, 说明 ^{133}Xe 浓度的下降主要是自身衰变引起的. 很可能是此后再无大量的 ^{133}Xe 释放到大气, 同时北半球大气中的 ^{133}Xe 已经均匀, 进一步的扩散引起的稀释效应不明显.

从对人类安全的影响来看, 上述核素的影响差别较大: ^{131}I 容易沉积并转移到人体中, 对人类健康的影响较大, 但其半衰期较短, 因此是事故后短期监测的主要对象; ^{137}Cs 的半衰期较长, 沉积到地面后会造成地面的长期污染, 并可能通过再悬浮重新进入大气环境, 因此是需要长期进行环境辐射监测的核素. ^{133}Xe 为惰性气体, 吸入后在体内的停留时间较短, 对人类健康的直接影响相对较小, 但其气体性质使其容易被释放, 对事故的发生比较灵敏, 因此在事故监测中具有重要意义. 从本次在西安对福岛核事故引起的大气放射性核素的监测结果来看, 根据环境

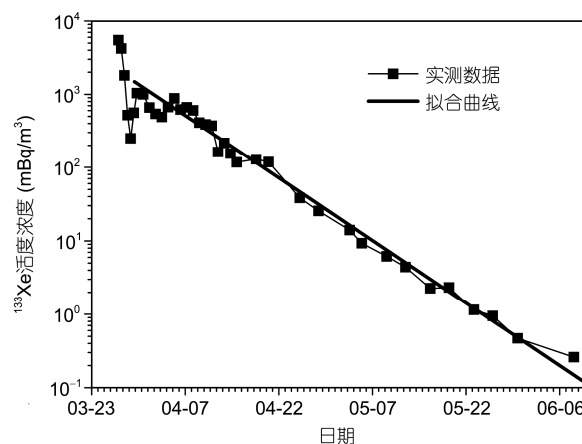


图2 大气中 ^{133}Xe 的活度浓度变化

辐射的国家标准^[24], 这些大气放射性核素的浓度造成的附加年最大吸收有效剂量远远低于自然辐射本底造成的公众年有效剂量, 与国家环保部发布的公告结论一致, 对西安的环境辐射水平没有显著影响。

2.2 与切尔诺贝利事故的比较分析

1986 年的切尔诺贝利事故向大气中释放了大量放射性核素(见表 2), 对全世界的环境放射性水平产生了重要的影响, 有关的研究工作迄今仍然在继续进行。此次日本福岛核电站的核泄漏, 从估算的放射性核素泄漏量(表 2)来看, 主要核素的泄漏量确实与切尔诺贝利事故相当。将本次在西安监测到的大气中放射性核素与切尔诺贝利事故后在西安^[26]监测到的结果对比发现: 在核素种类方面, 本次监测到的核素种类较少, 只有 ^{131}I , ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 等易挥发性核素, 而切尔诺贝利事故后还监测到了 ^{143}Ce , ^{140}Ba 和 ^{140}La 等核素; 在放射性核素浓度水平上, 本次监测到的浓度也比 1986 年的低 10~100 倍。这些特点在其他区域的监测中也得以体现, 比如本次欧洲监测到的浓度比切尔诺贝利事故期间低 100~1000 倍^[6]。

以上的差别可能是由于事故的性质以及释放过程的差异造成的。切尔诺贝利事故为反应堆爆炸, 后引发堆芯熔化及石墨起火, 估计^[26]堆内核材料中, 气体裂变产物 ^{133}Xe 等 100% 泄漏, 易挥发性核素 ^{131}I 有 50%~60% 泄漏, 易挥发性核素 ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 等有 20%~40% 泄漏, ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{144}Ce 等非挥发性裂变产物核素以及超铀核素有 ~3.5% 泄漏。福岛核事故主要为氢气爆炸和乏燃料池起火, 温度较低, 因此以易挥发性核素为主。另外, 切尔诺贝利地处欧亚大陆中部, 事故中放射性核素的主要释放时间为 10 天, 此后的小量释放持续约 40 天, 事故期间风向以东风和北风为主, 因此前苏联及欧洲大部均受到影响^[26]。而福岛地处太平洋西海岸, 事故期间以西风为主, 泄漏的核

素主要向太平洋方向扩散^[13], 因此在大陆腹地实际监测到的浓度较低。

2.3 与其他地区的监测结果比较

据目前的估计^[12,13], 福岛核事故的释放从 3 月 15 日持续到 4 月 5 日以后, 历时 20 余天, ^{131}I 的释放速率在 $10^{11}\sim 10^{16}$ Bq/h。3 月 15~25 日左右为持续释放, 26~27 日出现较低值, 3 月 30~31 日出现较大值, 随后逐渐减小。福岛核事故发生以后, 世界各地都开展了对大气放射性核素的监测。对监测结果按地域划分, 大致有如下几种情况:

(1) 日本。据 CTBTO 在日本高崎(在福岛西南方向 200 km)的 38 号台站的监测结果^[1], 3 月 12 日开始测到 ^{134}Cs , ^{136}Cs , ^{137}Cs , ^{131}I , ^{132}I , ^{133}I , ^{132}Te , $^{136\text{m}}\text{Ba}$ 和 ^{133}Xe , 3 月 16 日 ^{131}I 和 ^{137}Cs 的浓度达到最大, 分别为 15 和 5.6 Bq/m³。 ^{133}Xe 的最大浓度超过 100 Bq/m³。时间序列方面, 核素浓度在 3 月出现几次峰值, 4 月浓度比较稳定, 5 月开始逐渐下降, 到 5 月底, ^{131}I 和 ^{137}Cs 浓度在 1 mBq/m³ 左右。

(2) 北美。美国^[1,27]自 3 月 15 日开始监测到异常, 是日本本土以外较早监测到放射性核素的国家。核素种类与日本本土相同, ^{131}I 最大浓度为 30 mBq/m³, ^{133}Xe 最大浓度为 17 Bq/m³。时间序列方面, 由于距离日本比较近, 受到核素传输的持续显著影响, 无明显峰值, 但从 3 月底开始就呈现缓慢下降趋势。加拿大^[2,3]情况与美国相似。

(3) 欧洲^[5]。监测到的大气气溶胶放射性核素种类较少(放射性氙同位素结果尚未见报道), 主要有 ^{131}I , ^{134}Cs 和 ^{137}Cs , 另有痕量的 ^{132}Te 和 ^{132}I 。 ^{131}I 的时间序列显示了两个峰值, 第一个在 3 月 28~30 日陆续到达欧洲各国, 第二个峰值比较集中, 在 4 月 3~5 日。从浓度来看, ^{131}I 的两个峰值浓度均在 1~6 mBq/m³。

(4) 亚洲其他国家。越南^[9]自 3 月 27 日监测到 ^{131}I , ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 。时间序列方面只出现一个单峰, 4 月 10 日 ^{131}I 和 ^{137}Cs 的峰值分别为 0.93 和 0.036 mBq/m³。韩国^[8]监测的放射性核素到达时间为 3 月 28 日, 且只有一个 ^{131}I 峰值为 3.12 mBq/m³(4 月 6 日)。逆向轨迹分析显示, 到达韩国的气团先经过了北京。

与上述地区相比, 此次在西安对特征核素 ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{131}I 和 ^{133}Xe 都进行了监测。受传输时间及传输过程中的沉降、扩散、衰变过程的影响, 核素浓度水平远低于日本和美国, 而与欧洲的相当。从放射性核

表 2 福岛核事故与切尔诺贝利核事故向环境中泄漏的放射性核素估计量的比较(单位: Bq)^{a)}

核素	福岛	切尔诺贝利 ^[25]
^{131}I	1.5×10^{17} ^[12]	1.76×10^{18}
^{134}Cs	—	5.4×10^{16}
^{137}Cs	1.3×10^{16} ^[12] 3.58×10^{16} ^[13]	8.5×10^{16}
^{133}Xe	1.67×10^{19} ^[13]	6.5×10^{18}

a) “—”表示未见报道

素出现的时间及峰值出现时间看,日本最早监测到放射性核素,其次是北美,然后是亚洲内陆的西安出现峰值,最后才是欧洲.西安 ^{131}I 峰值出现的时间(3月25日)早于欧洲3~4天,因此到达西安的放射性核素气团不可能是随西风带经欧洲传来的,那么放射性核素是以何途径传到西安的呢?

2.4 核素到达西安的传输路径分析

福岛事故泄漏核素最早开始于3月12日,而西安地处中国中部地区,位于福岛以西约2800 km,在3月25日,即事故发生后13天就监测到了 ^{131}I 的第一个浓度峰值.福岛核事故泄漏的核素通过何种途径到达西安,是对福岛泄漏核素监测的重要问题.西班牙 Lozano 等人^[28]使用 HYSPLIT (the Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory)模式分析了福岛泄漏核素云团到达欧洲的传输路径,但未涉及对亚洲及中国的影响.乔方利等人^[14]用自主研发的程序对泄漏核素通过大气传输的影响范围进行了预测,在其模拟计算中假设源项为单位浓度的“一次性”释放,在其影响区域的表述中使用了“全场浓度最高浓度10%的浓度等值线”.而本文中对区域影响的界定以实测大气中核素浓度高于MDC作为依据,与乔方利等人的模拟计算结果无法直接比较.邝飞虹等人^[29]用自主研发的模式对传输路径进行了分析,结果表明:泄漏放射性核素主要向东、南、北3个方

向漂移扩散进入太平洋,其中进入太平洋向北扩散的一支云团进入俄罗斯后又向西随后向南折回,流经我国东北、东部地区;同时,向南扩散的一支云团将逐渐变为向西南方向扩散,越过菲律宾后向西偏北方向移动,经我国南海进入海南地区.若按此途径,福岛释放的核素有可能从南北两个方向进入我国内陆地区.

本研究使用 HYSPLIT 分析了核泄漏气团到达西安前后不同海拔的后向轨迹及福岛核泄漏期间气团的前向轨迹.结果表明,尽管事故期间西安、福岛的主导风向都受西风带的影响,但西风带主要控制了海拔3 km以上的高空,而近地面(海拔约1.5 km)会出现短期的反气旋(如图3所示),从而使污染气团未经过北美和欧洲就直接到达中国内陆,与到达欧洲各国的时间相当甚至更早.结合核素到达各地的时间,可以推测,福岛泄漏核素受西风影响扩散到太平洋后,可能出现分叉,部分会向北或南运动,进而在东亚北部和南部向西运动.这可能是泄漏核素到达西安和欧洲的时间相当的主要原因.

3 结论与展望

福岛核事故后,在西安开展了3个月的大气放射性核素监测,获得了 ^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs 和 ^{133}Xe 等核素的浓度数据,从监测结果来看,这些核素所造成附加年有效吸收剂量远低于自然辐射本底造成的公众年

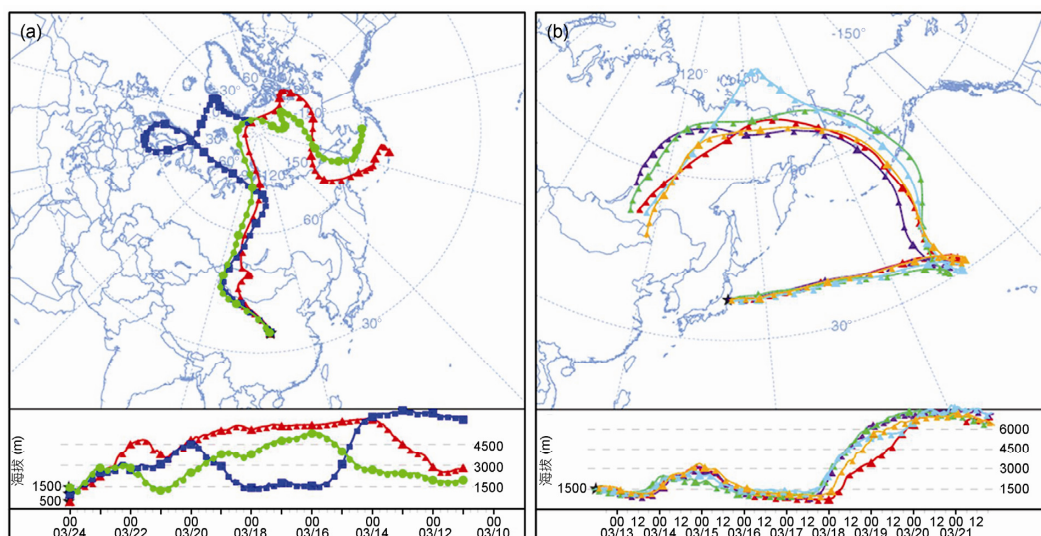


图3 西安核素污染气团的 HYSPLIT 轨迹图

(a) 终点为西安(3月24日0时UTC)的背向轨迹图; (b) 起点位于福岛(3月12日10~14时UTC)的前向轨迹图

吸收剂量, 对当地的环境辐射没有显著影响. 从传输路径分析来看, 福岛泄漏核素的扩散主要受西风影响, 但在太平洋局部出现的反气旋和源项的连续释

放特点, 使泄漏核素到达中国的大气传输路径变得比较复杂. 这需要在未来核事故的监测和预警研究中重点关注.

参考文献

- 1 Diazleon J, Jaffe D A, Kaspar J, et al. Arrival time and magnitude of airborne fission products from the Fukushima, Japan, reactor incident as measured in Seattle, WA, USA. *J Environ Radioact*, 2011, 102: 1032–1038
- 2 Sinclair L E, Seywerd H C J, Fortin R, et al. Aerial measurement of radioxenon concentration off the west coast of Vancouver Island following the Fukushima reactor accident. *J Environ Radioact*, 2011, 102: 1018–1023
- 3 Zhang W, Bean M, Benotto M, et al. Development of a new aerosol monitoring system and its application in Fukushima nuclear accident related aerosol radioactivity measurement at the CTBT radionuclide station in Sidney of Canada. *J Environ Radioact*, 2011, 102: 1065–1069
- 4 Manolopoulou M, Vagena E, Stoulos S, et al. Radioiodine and radiocesium in Thessaloniki, Northern Greece due to the Fukushima nuclear accident. *J Environ Radioact*, 2011, 102: 796–797
- 5 Pittauerová D, Hettwig B, Fischer H W. Fukushima fallout in Northwest German environmental media. *J Environ Radioact*, 2011, 102: 877–880
- 6 Masson O, Baeza A, Bieringer J, et al. Tracking of airborne radionuclides from the damaged Fukushima Dai-ichi nuclear reactors by European networks. *Environ Sci Tech*, 2011, 45: 7670–7677
- 7 Bolsunovsky A, Dementyev D. Evidence of the radioactive fallout in the center of Asia (Russia) following the Fukushima Nuclear Accident. *J Environ Radioact*, 2011, 102: 1062–1064
- 8 Kim C, Byun J, Chae J, et al. Radiological impact in Korea following the Fukushima nuclear accident. *J Environ Radioact*, 2012, 111: 70–82
- 9 Long N Q, Truong Y, Hien P D, et al. Atmospheric radionuclides from the Fukushima Dai-ichi nuclear reactor accident observed in Vietnam. *J Environ Radioact*, 2012, 111: 53–58
- 10 Bowyer T W, Biegalski S R, Cooper M, et al. Elevated radioxenon detected remotely following the Fukushima nuclear accident. *J Environ Radioact*, 2011, 102: 681–687
- 11 Medici F. The IMS radionuclide network of the CTBT. *Radiat Phys Chem*, 2001, 61: 689–690
- 12 Chino M, Hiromasa N, Haruyasu N, et al. Preliminary estimation of release amounts of ^{131}I and ^{137}Cs accidentally discharged from the Fukushima Daiichi nuclear power plant into the atmosphere. *J Nucl Sci Tech*, 2011, 48: 1129–1134
- 13 Stohl A, Seibert P, Wotawa G, et al. Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant: Determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition. *Atmos Chem Phys Discuss*, 2011, 11: 28319–28394
- 14 乔方利, 王关锁, 赵伟, 等. 2011年3月日本福岛核泄漏物质输运扩散路径的情景模拟和预测. *科学通报*, 2011, 56: 964–971
- 15 王海洋, 王晓霞, 黄树明, 等. 福岛第一核电厂事故源项估算及方法比较. *核安全*, 2011, 2: 14–19
- 16 周程, 张起虹, 蒋云平, 等. 日本核泄漏期间南京地区空气中放射性气溶胶的监测和评价. *环境监测管理与技术*, 2011, 23: 43–45
- 17 Preparatory Commission for the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization. Certification of IMS radionuclide stations (with Guidelines for station installation). 1999
- 18 张利兴, 朱凤蓉. 核试验放射性核素监测核查技术. 北京: 国防工业出版社, 2006. 72–74, 117
- 19 常印忠, 刘龙波, 王世联, 等. PMS-800大流量大气颗粒物采样器的研制. *辐射防护*, 2011, 31: 39–42
- 20 吴艳敏, 王旭辉, 刘龙波, 等. 高流速下气溶胶取样滤材的性能测试. *辐射防护*, 2009, 29: 13–17
- 21 吴治华, 赵国庆, 陆福全, 等. 原子核物理实验方法. 第三版. 北京: 原子能出版社, 1997. 272
- 22 常印忠, 王旭辉, 王世联, 等. 西安地区大气环境气溶胶样品中放射性核素监测. *核技术*, 2008, 31: 796–800
- 23 张子斌, GOETZ A, 韦冠一. 准确分析微量惰性气体的轻便四极杆质谱系统. *质谱学报*, 2004, 25: S203–S204
- 24 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局. 电离辐射防护与辐射源安全基本标准. GB18871-2002. 2002
- 25 Nuclear Energy Agency, the Organisation for Economic Co-operation and Development. Chernobyl: Assessment of Radiological and Health Impacts–2002 update of Chernobyl: Ten Years on. Paris: OECD, 2002
- 26 庞巨丰, 郑桂芳, 王亮, 等. 切尔诺贝利事故对西安地区环境的影响和卫生学评价. *核技术*, 1989, 12: 713–719
- 27 Biegalski S R, Bowyer T W, Eslinger P W, et al. Analysis of data from sensitive U.S. monitoring stations for the Fukushima Dai-ichi nuclear reactor accident. *J Environ Radioact*, 2011, 114: 15–21
- 28 Lozano R L, Hernández-Ceballos M A, Adame J A, et al. Radioactive impact of Fukushima accident on the Iberian Peninsula: Evolution and plume previous pathway. *Environ Int*, 2011, 37: 1259–1264
- 29 邝飞虹, 王世联, 刘龙波, 等. 日本福岛核电站事故泄漏放射性核素漂移扩散状况分析. *原子能科学技术*, 2012, 46: 1533–1536