

核电站周边海域鱼类与表层沉积物中的放射性水平调查

可愚^{1,2}, 刘湘根^{1,2}, 谭赛章^{1,2}, 杨涛^{1,2}, 黄远洲^{1,2}, 魏天琦^{1,2}, 蒋晓山^{1,2}

(1. 国家海洋局东海环境监测中心 上海 201206;

2. 自然资源部生态监测与修复技术重点实验室 上海 201206)

摘要: 为科学评价核电站对周边海域生态环境的影响, 文章选取 4 座我国沿海已运营的核电站即田湾核电站、秦山核电站、宁德核电站和福清核电站为研究对象, 分别于 2016 年 6—9 月和 2017 年 4—7 月调查其周边海域鱼类和表层沉积物中主要放射性核素的比活度, 并分析表层沉积物的来源。研究表明: 核电站的运营未对周边海域鱼类和表层沉积物中的放射性水平造成影响, 且鱼类中的¹³⁷Cs 和²²⁶Ra 比活度远低于国家规定的食品检出限值要求; 表层沉积物中的²³⁸U、²²⁶Ra 和²²⁸Ra 比活度基本随纬度降低而逐渐增大,¹³⁷Cs 比活度与早期文献测定结果相比随时间逐渐衰减; 根据表层沉积物中的²²⁶Ra/²³⁸U 平均值可知表层沉积物来源有所不同, 且²²⁶Ra 与²²⁸Ra 比活度的相关性越高, 表层沉积物的来源越单一。

关键词: 核电站; 放射性核素; 比活度; 表层沉积物; 鱼类

中图分类号: P76; P734.2+4; P736.4

文献标志码: A

文章编号: 1005-9857(2022)08-0091-08

Radioactive Level in Fishes and Surface Sediments from the Coastal Areas of Nuclear Power Plants

KE Yu^{1,2}, LIU Xianggen^{1,2}, TAN Saizhang^{1,2}, YANG Tao^{1,2}, HUANG Yuanzhou^{1,2},
WEI Tianqi^{1,2}, JIANG Xiaoshan^{1,2}

(1. East China Sea Environmental Monitoring Center, SOA, Shanghai 201206, China;

2. Key Laboratory of Ecological Monitoring and Restoration Technology, MNR, Shanghai 201206, China)

Abstract: To evaluate the effects of operating nuclear power plants on the ecological environment in the surrounding sea areas, 4 nuclear power plants which had been operated along the coast of China, namely Tianwan Nuclear Power Plant, Qinshan Nuclear Power Plant, Ningde Nuclear Power Plant and Fuqing Nuclear Power Plant, were selected as research objects. The specific activity of main radionuclides in fish and surface sediments in the surrounding sea areas was determined from June to September of 2016 and from April to July of 2017 respectively, and the sources of surface sediments were analyzed. The results showed that the operation of nuclear power plant had not affected the radioactivity level of fish and surface sediments in surrounding

收稿日期: 2021-12-09; 修订日期: 2022-08-07

基金项目: 国家重点研发计划重点专项项目(2018YFC1407405).

作者简介: 可愚, 工程师, 研究方向为海洋环境放射性监测与评价以及同位素海洋化学

sea areas, and the specific activity of ^{137}Cs and ^{226}Ra in fish was much lower than the detection limits of national food. Specific activity of ^{238}U , ^{226}Ra and ^{228}Ra in surface sediments increased gradually with the decrease of latitude, and that of ^{137}Cs decreased with time compared with the results of earlier literature. According to the average $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ value of surface sediments, the sources of surface sediments in different areas were different, and the higher the correlation between ^{226}Ra and ^{228}Ra specific activity, the more single the source of surface sediments.

Keywords: Nuclear power plants, Radionuclides, Specific activity, Surface sediments, Fishes

0 引言

随着近年来我国的能源结构调整,积极发展核电已成为我国优化电力结构的选择之一^[1]。由于核电站的迅速发展,核设施正常运转下的流出物和温排水等污染物以及可能发生的核事故使我国近海生态环境面临的压力日益增加。2011 年日本福岛第一核电站发生爆炸,致使日本西北附近太平洋海域受到严重的放射性污染,核电站对周边海域生态环境的影响以及相关生态环境安全问题成为备受关注的基础性问题。

姚沛林等^[2]监测 2005—2014 年田湾核电站的环境辐射水平,谷韶中等^[3]监测秦山核电基地的环境辐射水平,张合金^[4]监测宁德核电厂外围环境的 γ 辐射水平,王艳飞^[5]监测福清核电站的环境辐射水平。然而目前对比多座核电站放射性水平的研究屈指可数,且对于生物体中放射性水平的调查也较有限。本研究选取田湾核电站、秦山核电站、宁德核电站和福清核电站 4 座我国沿海已运营的核电站为研究对象,分别于 2016 年 6—9 月和 2017 年 4—7 月调查其周边海域鱼类和表层沉积物中主要放射性核素的比活度,从而评价其放射性水平,调查结果可为评价核电站对周边海域生态环境的影响提供数据支持。

海洋表层沉积物中的 ^{238}U 、 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 是天然衰变系放射性核素,对其进行研究有助于示踪表层沉积物的海洋学过程,因此受到海洋学家的重视。在测定鱼类和表层沉积物中的放射性核素时,采用高纯锗(HPGe) γ 能谱法的实验过程简单,且引入偶然误差的概率小,因此该方法在海洋学研究中被广泛应用^[6]。本研究采用 γ 能谱法测定放射性核素的比活度,进一步分析 4 座核电站周边海域表层

沉积物的来源。

1 材料与方法

1.1 研究海域

田湾核电站位于江苏北部沿海,距离连云港市区(新浦)28 km,目前已运营 6 台机组,装机容量为 660 万 kW;秦山核电站位于浙江秦山沿海,目前已运营 9 台机组,装机容量为 630 万 kW;宁德核电站位于福建宁德沿海,距离福鼎市区南部约 32 km,目前已运营 4 台机组,装机容量为 436 万 kW;福清核电站位于福建中部沿海,目前已运营 5 台机组,装机容量为 552 万 kW。

1.2 样品来源和处理

鱼类样品为从核电站周边地区渔民收购的当地海域优势鱼种,带回实验室去除表面泥沙杂质,经 105 °C 烘干、300 °C 碳化、450 °C 灰化 24 h、行星球磨机研磨、混匀和 80 目过筛,使用 $\varphi 75 \times 50$ mm 的聚丙烯塑料样品盒密封封装。

表层沉积物样品来自核电站周边海域,基于核电站取水口和排水口的位置,根据周边海域的水动力扩散模型,在不同扩散方向和梯度上设置采样站位。使用表层泥器(抓泥斗)采集样品,现场使用聚乙烯自封袋封装,带回实验室经 105 °C 烘干、磨细、混匀和 80 目过筛,使用 $\varphi 75 \times 50$ mm 的聚丙烯塑料样品盒密封封装。

鱼类和表层沉积物样品均放置 100 d 以上,以保证样品中的 ^{238}U 与子体衰变平衡^[7]。

1.3 样品分析

测定样品使用的高纯锗(HPGe) γ 能谱仪产自美国 CANBERRA 公司,探头型号为 BE5030,在 0.03~2 MeV 能量区间的本底为 0.7 cps,测定样品中的 ^{238}U 、 ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 、 ^{40}K 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 、 ^{58}Co

和⁶⁰Co 共 9 种放射性核素,样品测量时间均为 80 000 s。使用中国计量科学研究院生产的⁶⁰Co 点源(编号 C61204)作为仪器能量刻度源,鱼类样品的测定使用中国计量科学研 究院 校 准 源 (编 号 SH16122201)作为仪器效率刻度源,表层沉积物样品的测定使用中国计量科学研 究院 校 准 源 (编 号 7NCJ/P-0107)作为仪器效率刻度源。

根据放射性核素活度计算使用谱线(表 1),参照已有研究方法^[6-9]进行相关计算,计算结果校正至采样日期。

2 结果与讨论

2.1 鱼类

2016—2017 年 4 座核电站周边海域鱼类中的放射性核素比活度如表 2 所示。

表 1 放射性核素活度计算使用谱线		keV
核素	能量	
⁴⁰ K	1 460.81	
¹³⁷ Cs	661.66	
¹³⁴ Cs	604.69	
²²⁶ Ra *	609.31	
	295.21	
²²⁸ Ra *	351.92	
	338.32	
²³⁸ U	911.60	
	63.29	
^{110m} Ag	657.74	
⁵⁸ Co	810.75	
⁶⁰ Co	1 332.48	

注: * 表示使用多条谱线计算结果的加权平均值。

表 2 2016—2017 年 4 座核电站周边海域鱼类中的放射性核素比活度

			Bq/kg _鲜				
样品来源	种名	产地	²³⁸ U	¹³⁷ Cs	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	⁴⁰ K
2016 年 田湾核电站	长蛇鲻	高公岛	0.21±0.01	0.036±0.009	0.15±0.02	0.41±0.04	76.9±3.2
	舌鳎	高公岛	0.25±0.01	0.049±0.008	0.13±0.01	0.26±0.03	68.5±2.9
	鲆鱼	连岛	0.28±0.01	0.057±0.009	0.10±0.01	0.22±0.03	70.3±2.9
	舌鳎	连岛	0.20±0.01	<0.024	0.17±0.02	0.40±0.03	67.8±2.8
	长蛇鲻	赣榆	0.32±0.01	0.036±0.009	0.13±0.01	0.46±0.03	70.5±2.9
	舌鳎	赣榆	0.26±0.01	0.039±0.008	0.17±0.02	0.47±0.03	54.8±2.3
	皮氏叫姑鱼	徐圩	0.29±0.01	0.037±0.009	0.14±0.01	0.52±0.04	71.7±3.0
2017 年 田湾核电站	小黄鱼	赣榆	0.14±0.01	0.017±0.005	0.48±0.02	0.30±0.03	22.2±0.5
	鲻	赣榆	0.16±0.01	0.027±0.005	0.58±0.02	0.24±0.03	27.2±0.6
	白姑	高公岛	0.22±0.01	0.020±0.005	0.76±0.03	0.33±0.03	42.8±0.9
	鲛鱼	高公岛	0.16±0.01	0.025±0.005	0.44±0.02	0.35±0.04	55.0±1.2
	白姑	徐圩	0.43±0.01	<0.016	1.55±0.04	0.37±0.02	43.3±0.9
	鲛鱼	连岛	0.49±0.01	0.107±0.008	1.78±0.04	0.41±0.03	42.5±0.9
	白姑	连岛	0.21±0.01	<0.016	0.77±0.03	0.26±0.01	44.5±1.0
2016 年 秦山核电站	鲻鱼	乍浦	<0.042	<0.030	0.44±0.02	0.92±0.05	70.4±2.9
	鲻鱼	沈家门	0.34±0.01	<0.032	0.48±0.03	1.11±0.06	66.4±2.8
	鲻鱼	蟹浦	0.13±0.01	<0.024	0.53±0.03	1.15±0.06	29.5±1.2
	鲻鱼	澈浦	0.43±0.01	<0.029	0.62±0.03	1.23±0.06	42.4±1.8
2017 年 秦山核电站	鲻鱼	乍浦	0.38±0.01	<0.031	0.80±0.03	0.51±0.05	67.2±1.5
	鲻鱼	沈家门	0.35±0.01	<0.030	0.77±0.03	0.48±0.04	62.2±1.4
	鲻鱼	澈浦	0.40±0.02	<0.036	0.89±0.04	0.44±0.04	71.2±1.6
	鲻鱼	澈浦	0.39±0.02	<0.032	0.79±0.03	0.41±0.04	67.5±1.5
2016 年 宁德核电站	眼斑拟磁鱼	附近海域	0.10±0.01	0.015±0.005	0.04±0.01	0.13±0.02	37.1±1.6
	鲆鱼	附近海域	0.17±0.01	0.014±0.003	0.03±0.01	0.07±0.01	25.5±1.1
	真鲷	附近海域	0.22±0.01	0.011±0.004	0.05±0.01	0.10±0.02	31.0±1.3

续表 2

样品来源	种名	产地	^{238}U	^{137}Cs	^{226}Ra	^{228}Ra	^{40}K
2017 年 宁德核电站	花鲈	牛郎岗	0.04 ± 0.01	<0.013	0.10 ± 0.01	0.24 ± 0.04	22.4 ± 0.5
	鳎鱼	上黄岐	0.07 ± 0.01	<0.014	0.24 ± 0.02	0.28 ± 0.02	20.0 ± 0.5
	眼斑拟石首鱼	三沙镇	0.04 ± 0.01	<0.013	0.14 ± 0.01	0.20 ± 0.02	18.8 ± 0.4
2016 年 福清核电站	红鱼	附近海域	0.10 ± 0.01	0.013 ± 0.005	0.07 ± 0.01	0.14 ± 0.02	33.2 ± 1.4
	鳎鱼	附近海域	0.18 ± 0.01	0.015 ± 0.003	0.05 ± 0.01	0.11 ± 0.01	22.8 ± 1.0
	真鲷	附近海域	0.23 ± 0.01	0.010 ± 0.004	0.08 ± 0.01	0.19 ± 0.02	25.2 ± 1.1
2017 年 福清核电站	红古鱼	江镜农场	0.10 ± 0.01	0.029 ± 0.006	0.23 ± 0.02	0.35 ± 0.04	44.0 ± 1.0
	白鲈鱼	工程排水口	0.13 ± 0.01	<0.019	0.35 ± 0.02	0.38 ± 0.04	45.3 ± 1.0
	平均值		0.23 ± 0.12	0.031 ± 0.023	0.43 ± 0.42	0.41 ± 0.29	47.3 ± 19.2
	范围		$<0.04 \sim 0.49$	$<0.010 \sim 0.107$	$0.03 \sim 1.78$	$0.07 \sim 1.23$	$18.8 \sim 76.9$

注: $<$ 后的数值为检出限值;未检出数据未参与平均值计算。

2016—2017 年 4 座核电站周边海域鱼类中均未检出 ^{134}Cs 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 、 ^{58}Co 和 ^{60}Co , 检出限值分别为 $0.021 \text{ Bq/kg}_{\text{鲜}}$ 、 $0.022 \text{ Bq/kg}_{\text{鲜}}$ 、 $0.027 \text{ Bq/kg}_{\text{鲜}}$ 和 $0.030 \text{ Bq/kg}_{\text{鲜}}$ 。在检出的放射性核素中, 只有 ^{137}Cs 为人工放射性核素。姚沛林等^[2]曾测定田湾核电站周边海域鱼类中 ^{137}Cs 的比活度范围和平均值分别为 $0.053 \sim 0.125 \text{ Bq/kg}_{\text{鲜}}$ 和 $0.082 \text{ Bq/kg}_{\text{鲜}}$, 陈进兴等^[10]曾测定大亚湾核电站周边海域兰园鲈鱼中 ^{137}Cs 的比活度范围为 $0.069 \sim 0.210 \text{ Bq/kg}_{\text{鲜}}$, 而本研究的测定结果略低, 推断原因是不同鱼种对 ^{137}Cs

的富集能力不同。郑琪珊等^[11]测定福清核电站周边海域生物体中 ^{238}U 、 ^{137}Cs 、 ^{226}Ra 和 ^{40}K 的比活度范围分别为未检出 $\sim 1.095 \text{ Bq/kg}_{\text{鲜}}$ 、未检出 $\sim 0.073 \text{ Bq/kg}_{\text{鲜}}$ 、未检出 $\sim 0.090 \text{ Bq/kg}_{\text{鲜}}$ 和 $20.4 \sim 99.0 \text{ Bq/kg}_{\text{鲜}}$, 与本研究的测定结果相近。此外, 本研究测定的 ^{137}Cs 和 ^{226}Ra 远低于国家规定食品中 $800 \text{ Bq/kg}_{\text{鲜}}$ 和 $38 \text{ Bq/kg}_{\text{鲜}}$ 的检出限值要求^[12]。

2.2 表层沉积物

4 座核电站周边海域表层沉积物中的放射性核素比活度如表 3 至表 6 所示。

表 3 田湾核电站周边海域表层沉积物中的放射性核素比活度

年份	站位	比活度/($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$)					$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$
		^{238}U	^{137}Cs	^{226}Ra	^{228}Ra	^{40}K	
2016	T1	21.5 ± 3.5	1.05 ± 0.25	22.0 ± 1.0	37.0 ± 1.8	684 ± 29	1.02
	T2	21.8 ± 3.5	<0.69	24.8 ± 1.1	33.2 ± 1.6	642 ± 27	1.14
	T3	24.6 ± 3.7	0.72 ± 0.19	25.4 ± 1.1	34.4 ± 1.6	627 ± 27	1.03
	T4	20.9 ± 3.1	1.05 ± 0.25	25.3 ± 1.1	36.2 ± 1.7	676 ± 29	1.21
	T5	20.8 ± 3.1	<0.59	21.1 ± 0.9	28.0 ± 1.4	539 ± 23	1.01
	T6	22.5 ± 3.1	0.71 ± 0.19	23.0 ± 1.0	32.0 ± 1.5	594 ± 25	1.02
2017	T1	30.0 ± 4.4	1.03 ± 0.20	26.3 ± 0.8	45.7 ± 1.6	714 ± 29	0.88
	T2	27.5 ± 4.4	0.94 ± 0.18	24.9 ± 0.8	42.1 ± 1.4	723 ± 30	0.91
	T3	41.2 ± 5.9	<0.86	30.0 ± 0.9	58.2 ± 2.0	810 ± 33	0.73
	T4	26.1 ± 4.0	0.62 ± 0.15	23.1 ± 0.7	34.5 ± 1.2	578 ± 24	0.89
	T5	25.8 ± 3.9	0.49 ± 0.14	23.9 ± 0.7	36.9 ± 1.3	618 ± 25	0.93
	T6	22.9 ± 3.7	0.60 ± 0.13	22.5 ± 0.7	34.6 ± 1.2	609 ± 25	0.98
平均值		25.5 ± 5.7	0.80 ± 0.22	24.4 ± 2.4	37.7 ± 7.9	651 ± 74	0.96 ± 0.13

注: $<$ 后的数值为检出限值;未检出数据未参与平均值计算。

表 4 秦山核电站周边海域表层沉积物中的放射性核素比活度

年份	站位	比活度/(Bq·kg ⁻¹)					²²⁶ Ra/ ²³⁸ U
		²³⁸ U	¹³⁷ Cs	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	⁴⁰ K	
2016	Q1	30.5±4.4	1.19±0.16	24.2±1.1	37.1±1.8	617±26	0.79
	Q2	27.1±3.8	0.65±0.16	25.8±1.1	35.0±1.7	578±25	0.95
	Q3	30.6±4.1	<0.45	25.8±1.1	36.5±1.7	514±22	0.84
	Q4	33.1±4.4	<0.59	26.0±1.1	36.6±1.7	469±20	0.79
	Q5	28.6±4.1	0.98±0.17	24.1±1.1	37.8±1.8	578±25	0.84
	Q6	29.8±4.2	<0.60	25.4±1.1	36.5±1.7	463±20	0.85
2017	Q1	36.8±5.3	1.33±0.18	25.5±0.8	52.1±1.8	705±29	0.69
	Q2	27.2±4.6	1.27±0.16	25.9±0.8	45.0±1.6	672±28	0.95
	Q3	41.0±5.2	0.86±0.17	28.9±0.8	49.4±1.7	595±25	0.70
	Q4	26.4±4.1	0.37±0.11	20.3±0.6	34.7±1.2	557±23	0.77
	Q5	38.6±5.7	1.33±0.20	26.8±0.8	44.8±1.6	741±31	0.69
	Q6	37.2±4.8	2.66±0.21	27.0±0.8	42.3±1.4	814±33	0.73
平均值		32.2±5.0	1.18±0.64	25.5±2.1	40.7±5.9	609±108	0.79±0.09

注: <后的数值为检出限值;未检出数据未参与平均值计算。

表 5 宁德核电站周边海域表层沉积物中的放射性核素比活度

年份	站位	比活度/(Bq·kg ⁻¹)					²²⁶ Ra/ ²³⁸ U
		²³⁸ U	¹³⁷ Cs	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	⁴⁰ K	
2016	N1	26.1±3.8	2.29±0.23	23.4±1.8	38.5±2.1	709±30	0.90
	N2	31.8±4.3	1.89±0.22	22.2±1.7	38.2±2.0	662±28	0.70
	N3	26.1±3.9	1.55±0.22	21.0±1.6	34.1±1.8	653±28	0.80
2017	N1	42.3±6.1	2.99±0.27	24.9±0.8	47.1±1.7	804±33	0.59
	N2	39.7±5.4	2.30±0.24	23.1±0.7	50.9±1.8	735±30	0.58
	N3	37.8±5.3	1.51±0.18	26.3±0.8	50.4±1.7	762±31	0.70
平均值		34.0±7.0	2.09±0.56	23.5±1.9	43.2±7.2	721±58	0.69±0.12

注: <后的数值为检出限值;未检出数据未参与平均值计算。

表 6 福清核电站周边海域表层沉积物中的放射性核素比活度

年份	站位	比活度/(Bq·kg ⁻¹)					²²⁶ Ra/ ²³⁸ U
		²³⁸ U	¹³⁷ Cs	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	⁴⁰ K	
2016	F1	26.6±3.9	0.95±0.14	24.9±1.1	35.6±1.7	611±26	0.94
	F2	39.5±4.9	1.41±0.19	27.5±1.2	41.4±2.0	687±29	0.70
	F3	32.5±4.6	1.14±0.19	25.8±1.1	41.8±2.0	662±28	0.79
	F4	48.6±6.6	1.52±0.18	25.7±1.2	40.9±2.0	684±29	0.53
	F5	34.3±4.7	1.06±0.18	23.4±1.1	39.1±1.9	645±27	0.68
2017	F1	37.1±5.2	1.00±0.16	26.7±0.8	45.6±1.5	738±30	0.72
	F2	48.8±6.5	1.51±0.21	27.6±0.9	49.0±1.7	777±32	0.57
	F3	44.8±5.9	1.14±0.21	27.1±0.8	48.5±1.7	710±29	0.60
	F4	47.8±6.3	1.16±0.24	29.0±1.0	51.8±1.8	782±32	0.61
	F5	31.8±4.9	1.39±0.20	23.3±0.7	49.1±1.6	637±26	0.73
平均值		39.2±8.0	1.23±0.21	26.1±1.8	44.3±5.3	693±58	0.67±0.12

注: <后的数值为检出限值;未检出数据未参与平均值计算。

2016—2017 年 4 座核电站周边海域表层沉积物中均未检出¹³⁴Cs、^{110m}Ag、⁵⁸Co 和⁶⁰Co,检出限值分别为 0.97 Bq/kg_干、0.59 Bq/kg_干、0.040 Bq/kg_干和 0.62 Bq/kg_干。表层沉积物中²³⁸U、¹³⁷Cs、

^{226}Ra 、 ^{228}Ra 和 ^{40}K 的比活度范围分别为 $20.8 \sim 48.8 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ 、 $< 0.37 \sim 2.99 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ 、 $20.3 \sim 30.0 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ 、 $28.0 \sim 58.2 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ 和 $462 \sim 814 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ ，平均值分别为 $32.2 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ 、 $1.25 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ 、 $25.0 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ 、 $41.1 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ 和 $659 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ ； $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的范围为 $0.53 \sim 1.21$ ，平均值为 0.81 。

4 座核电站周边海域表层沉积物中 ^{238}U 、 ^{137}Cs 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 和 ^{40}K 在 2016 年的平均比活度分别为 $28.9 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ 、 $1.21 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ 、 $24.3 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ 、 $36.5 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ 和 $615 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ ，2017 年的平均比活度分别为 $35.5 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ 、 $1.29 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ 、 $25.7 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ 、 $45.6 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ 和 $704 \text{ Bq/kg}_{\text{干}}$ ，由数据可得 2016 年的平均比活度略低于 2017 年，这可能与不同采样季节和不同海水盐度导致表层沉积物颗粒表面铀钍的吸附解析有关^[13]。

周边海域表层沉积物中 ^{238}U 、 ^{137}Cs 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 和 ^{40}K 的平均比活度，最高的核电站分别为福清、宁德、福清、福清和宁德，最低的核电站分别为田湾、田湾、宁德、田湾和秦山。

2.3 不同海域表层沉积物的放射性核素比活度对比

本研究测定的 4 座核电站周边海域表层沉积物中的放射性核素比活度与其他研究测定数据的对比如表 7 所示。

表 7 不同海域表层沉积物中的放射性核素比活度对比

海域	比活度/(Bq · kg ⁻¹)					$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$
	^{238}U	^{137}Cs	^{226}Ra	^{228}Ra	^{40}K	
渤海湾 ^[14]	16.2	14.10	25.2	—	710	1.56
胶州湾 ^[15]	39.2	3.28	26.5	40.3	688	0.68
田湾核电站	25.5	0.80	24.4	37.7	651	0.96
长江口 ^[16]	32.8	—	24.3	—	628	0.74
秦山核电站	32.2	1.18	25.5	40.7	609	0.79
宁德核电站	34.0	2.09	23.5	43.2	721	0.69
福清核电站	39.2	1.23	26.1	44.3	693	0.67
厦门潮间带 ^[17]	40.2	—	32.4	69.3	692	0.81
大亚湾 ^[18]	67.4	2.41	35.3	62.8	711	0.52
黄茅海-广海湾 ^[8]	77.4	1.52	36.6	58.1	571	0.47
阳江核电站 ^[19]	82.4	2.21	36.6	57.1	621	0.44
北部湾 ^[20]	35.4	1.16	27.7	44.9	538	0.78

注：—表示无相关数据；未标注参考文献的为本研究测定数据。

本研究测定的 4 座核电站周边海域表层沉积物中的 ^{238}U 、 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 基本随纬度降低而逐渐增大，但均在各海域的历史本底范围内。与已有文献的测定结果相比，本研究测定的 ^{137}Cs 比活度较低，推断原因为日本福岛事件对我国近海的影响有限，已存在的 ^{137}Cs 随时间逐渐衰减。

2.4 表层沉积物来源

2.4.1 ^{226}Ra 和 ^{238}U 的比活度比值

^{226}Ra 和 ^{238}U 均为 ^{238}U 系放射性核素，是衰变系中相对稳定的放射性核素。根据本研究测定的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的范围和平均值，2016—2017 年 4 座核电站周边海域表层沉积物中的 ^{226}Ra 和 ^{238}U 并未达到衰变平衡。陈敏等^[21] 提出我国近岸海域表层沉积物中的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 普遍存在不平衡现象，并认为这是由镭的易迁移性所导致的。

由表 7 可以看出，田湾、秦山、宁德和福清 4 座核电站周边海域表层沉积物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的平均值随纬度降低而逐渐减小，表明这些海域的表层沉积物来源有所不同。田湾核电站周边海域表层沉积物中的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 与渤海湾的数据均较高于其他海域，其原因可能是历史上的旧黄河口位于田湾核电站周边海域，旧黄河对黄海悬浮物的输入正是如今田湾核电站周边海域表层沉积物的主要来源，而如今黄河已改道渤海湾，对渤海悬浮物的输入是渤海湾表层沉积物的主要来源。秦山核电站周边海域表层沉积物中的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 与长江口的数据相近，Wang 等^[22] 认为杭州湾表层沉积物的来源为钱塘江和长江的悬浮物沉积，其中长江口的悬浮物输入占主要部分，印证上述数据相近的结果。

2.4.2 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 比活度的线性相关

^{226}Ra 和 ^{228}Ra 均为原生放射性核素，分别属于天然衰变系 ^{238}U 系和 ^{232}Th 系，是衰变系中相对稳定的放射性核素。Asikainen^[23] 认为放射性核素 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 广泛存在于地表岩石，其含量取决于岩石中铀和钍的含量。针对 ^{226}Ra 的研究表明，岩石风化后转为悬浮物，经由河流输入海洋，并最终变为海洋沉积物。本研究认为在一定海域范围内，如果沉积物来源较为单一，沉积物中的 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra

应具有较高的相关性;如果沉积物来源较为复杂,沉积物中的 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 的相关性较低。

4 座核电站周边海域表层沉积物中 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 比活度的线性相关如图 1 所示。

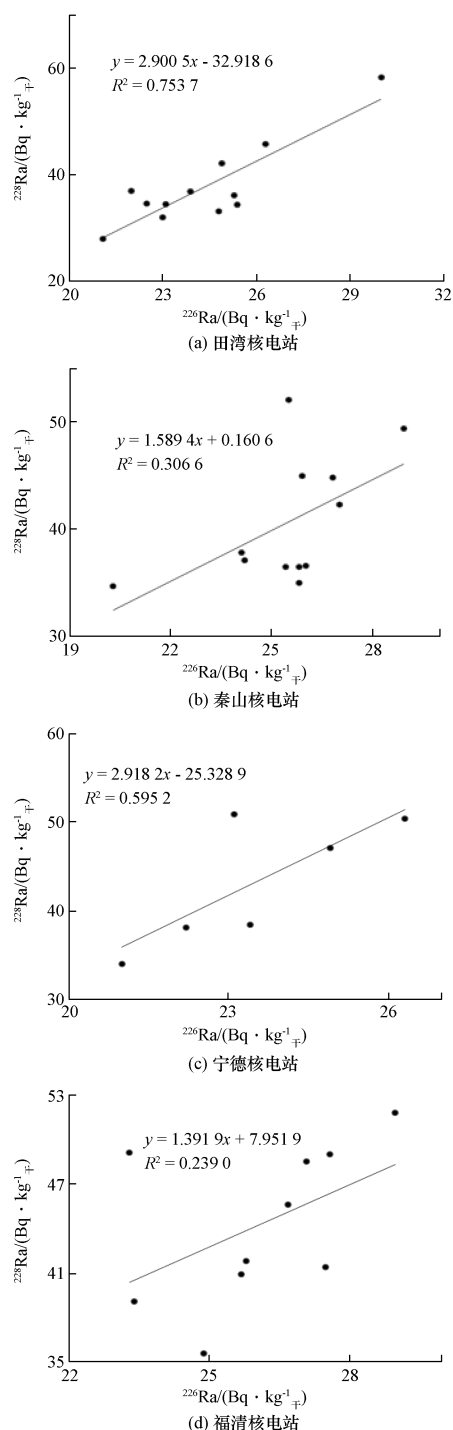


图 1 4 座核电站周边海域表层沉积物中 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 比活度的线性相关

田湾、秦山、宁德和福清 4 座核电站周边海域表层沉积物中 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 比活度的线性相关系数平方值(R^2)分别为 0.753 7、0.306 6、0.595 2 和 0.239 0, 原因为同一核电站周边海域的水动力情况相似。田湾核电站周边海域表层沉积物的来源为旧黄河口输出, 秦山核电站周边海域表层沉积物的来源为钱塘江和长江的悬浮物混合沉积, 因此秦山核电站周边海域表层沉积物中 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 比活度的相关性低于田湾核电站。宁德核电站周边海域没有较大河流输入, 有研究表明浙江福建近岸海域冬、春季的水流流向为自北向南^[24], 长江泥沙可以输送至台湾海峡^[25], 宁德核电站周边海域表层沉积物可能为长江的悬浮物输入沉积, 福清核电站周边海域北部受闽江和长江悬浮物混合沉积的影响, 因此福清核电站周边海域表层沉积物中 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 比活度的相关性低于宁德核电站。

3 结语

本研究选取 4 座我国沿海已运营的核电站为研究对象, 分别于 2016 年 6—9 月和 2017 年 4—7 月调查其周边海域鱼类和表层沉积物中主要放射性核素的比活度, 主要得到 3 点结论。① 4 座核电站周边海域鱼类和表层沉积物中主要放射性核素的平均比活度均在历史本底范围内, 表明核电站的运营未对周边海域鱼类和表层沉积物中的放射性水平造成影响。本研究测定的鱼类中的 ^{137}Cs 和 ^{226}Ra 比活度远低于国家规定的食品检出限值要求^[12]。② 4 座核电站周边海域表层沉积物中的 ^{238}U 、 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 比活度基本随纬度降低而逐渐增大, ^{137}Cs 比活度与早期文献测定结果相比随时间逐渐衰减。③ 4 座核电站周边海域表层沉积物中的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 平均值随纬度降低而逐渐减小, 表明这些海域的表层沉积物来源有所不同, 且 ^{226}Ra 与 ^{228}Ra 比活度的相关性越高, 海域表层沉积物的来源越单一。

参考文献

- [1] 黄杰, 梁雅惠, 孙战秀. 我国核电的沿海布局战略研究[J]. 海洋环境科学, 2014, 33(3): 482—486.
- [2] 姚沛林, 姜羲元, 邓治国, 等. 2005—2014 年田湾核电站环境辐射监测与评价[J]. 铀矿冶, 2015, 34(4): 282—289.

- [3] 谷韶中,朱月龙.秦山核电基地辐射环境监测 20 年[J].辐射防护,2013,33(3):129—138.
- [4] 张合金,宁德核电厂外围环境 γ 辐射水平监测研究[J].海峡科学,2017(1):25—26.
- [5] 王艳飞.福清核电运行后的环境辐射水平调查[J].海峡科学,2017(7):37—40.
- [6] 刘广山,黄奕普,李静,等.不平衡铀系和钍系核素的 γ 谱测定[J].海洋学报(中文版),2003,25(5):65—75.
- [7] 国家海洋局.海洋环境监测规范放射性核素测定:HY/T 003.8—1991[S].北京:海洋出版社,1991.
- [8] 赵峰,吴梅桂,周鹏,等.黄茅海-广海湾及其邻近海域表层沉积物中 γ 放射性核素含量水平[J].热带海洋学报,2015,34(4):77—82.
- [9] ZHOU P, LI D, LI H, et al. Distribution of radionuclides in a marine sediment core off the waterspout of the nuclear power plants in Daya Bay, northeastern South China Sea[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2015, 145: 102—112.
- [10] 陈进兴,许丕安.大亚湾核电站周围海洋生物中放射性本底值的研究[J].海洋环境科学,1991,10(4):61—64.
- [11] 郑琪珊,卿云花,黄丽华,等.福清核电站周边地区食品放射性核素本底调查[J].海峡预防医学杂志,2018(1):75—77.
- [12] 卫生部.食品中放射性物质限制浓度标准:GB 14882—94[S].北京:中国标准出版社,1994.
- [13] 蔡平河,黄奕普,邱雨生.九龙江河口区水体中 U、Th 地球化学行为的研究[J].海洋学报(中文版),1996,18(5):52—60.
- [14] 李树庆,吴复寿,祝汉民,等.渤海沿海海域放射性水平及卫生评价[A].李树庆,祝汉民,吴复寿,等.中国近海放射性水平[M].北京:海洋出版社,1987:1—14.
- [15] 贾成霞,刘广山,徐茂泉,等.胶州湾表层沉积物放射性核素含量与矿物组成[J].海洋与湖沼,2003,34(5):490—498.
- [16] WANG J, DU J, BI Q. Natural radioactivity assessment of surface sediments in the Yangtze Estuary[J]. Marine Pollution Bulletin, 2016, 114(1): 602.
- [17] 陈锦芳,刘广山,黄奕普.厦门潮间带表层沉积物天然放射系不平衡研究[J].台湾海峡,2005,24(3):274—282.
- [18] 刘广山,周彩芸.大亚湾海洋生态环境放射性水平研究[A].侯秉政.中国青年学者论环境[M].北京:中国环境科学出版社,1996:800—804.
- [19] 吴梅桂,周鹏,赵峰,等.阳江核电站附近海域表层沉积物中 γ 放射性核素含量水平[J].海洋环境科学,2018,37(1):43—47.
- [20] 刘广山,黄奕普,陈敏,等.南海东北部表层沉积物天然放射性核素与 ^{137}Cs [J].海洋学报(中文版),2001,23(6):76—84.
- [21] 陈敏,黄奕普,林永革,等.中国近岸海域沉积物 ^{226}Ra 的分布特征[J].海洋学报(中文版),1997,19(6):84—93.
- [22] WANG J, DU J, BASKARAN M, et al. Mobile mud dynamics in the East China Sea elucidated using ^{210}Pb , ^{137}Cs , ^7Be , and ^{234}Th as tracers[J]. Journal of Geophysical Research Oceans, 2016, 121(1): 224—239.
- [23] ASIKAINEN M. Radium content and the $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ activity ratio in groundwater from bedrock[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1981, 45(8): 1375—1381.
- [24] DENG B, WU H, YANG S, et al. Longshore suspended sediment transport and its implications for submarine erosion off the Yangtze River estuary[J]. Estuarine Coastal and Shelf Science, 2017, 190(5): 1—10.
- [25] LIU J P, XU K H, LI A C, et al. Flux and fate of Changjiang River sediment delivered to the East China Sea[J]. Geomorphology, 2007, 85: 208—224.