

〔美〕戈德堡 〔日〕堀部纯男 猿桥胜子 编



同位素海洋化学

海洋出版社

同位素海洋化学

[美]戈德堡

编

[日]堀部纯男 猿桥胜子

黄奕普 施文远 邹汉阳

译

龚书椿 程汉良

海洋出版社

1990年·北京

内 容 简 介

本书汇集了十个国家的五十一名当代著名同位素海洋学家的最新研究成果。研究对象涉及海洋环境中的水圈、生物圈、岩石圈和大气圈中的放射性核素和稳定同位素。研究内容不仅涉及这些核素在海洋中的分布及其迁移变化规律,而且讨论了这些核素的行为及其规律与海洋学其他分支的密切联系及其应用。是一本专门论述海洋中同位素行为及其应用的权威著作。对海洋中水体的运动、海洋生物的生产力、沉积物的沉积速率、锰结核的成因及其生长速率、古海平面的变化、海水古温度、放射性废物的排放标准及环境保护等方面的研究都有重要的参考价值。可供从事海洋、同位素、环境保护的科技人员以及大专院校的海洋、核科学、地球化学和环境科学等专业的师生参考。

责任编辑 朱志军

责任校对 刘兴昌

同位素海洋化学

[美]戈德堡 [日]堀部纯男 猿桥胜子 编
黄奕普 施文远 邹汉阳 龚书椿 程汉良 译

*

海洋出版社出版 (北京市复兴门外大街1号)

新华书店北京发行所发行 北京印刷一厂印刷

开本: 787×1092 1/16 印张: 20 字数: 500千字

1990年1月第一版 1990年1月第一次印刷

印数: 1—500

*

ISBN 7-5027-0018-8/O·4 ¥: 12.30元

译者序

本书是为庆贺日本著名的地球化学家、海洋学家三宅泰雄 (Yasuo MIYAKE) 教授七十寿辰而出版的国际上第一本专门论述海洋中的同位素或核素行为及其应用的权威著作。本书由十个国家的五十一名著名的海洋学家撰文，由美国科学院院士 E. D. 戈德堡和日本的堀部纯男、猿桥胜子汇编成册。它汇集了当代著名同位素海洋学家在该领域的最新的科研成果。

三宅泰雄教授是“同位素海洋学”领域中最重要开拓者和奠基人之一。早在1908年，即居里夫妇发现放射性之后的十年，Joly就发现在海洋沉积物中含有放射性的镭。但在而后的近半个世纪中，海洋学家仅对海洋中某些天然放射性核素进行过局部的研究。1954年，三宅泰雄教授在美军的太平洋核实验基地比基尼 (Bikini) 岛附近发现高得惊人的人工放射性污染物，其后他和他的同事不断跟踪人工放射性的污染中心，发现这些放射性污染物随北赤道流从东向西流至菲律宾和台湾附近海域，然后随黑潮北上到日本近海。污染物质的迁移途径与水文学家关于北赤道流和黑潮的观测和分析的结论完全吻合。三宅泰雄的这一重要发现引起国际海洋界的极大轰动。促进了海洋学家对海洋中放射性核素的研究，推动了同位素海洋学的发展。随后的三十年中，由他创立和指导的日本气象研究所地球化学研究室，对大气、海洋中的天然、人工的放射性核素和稳定同位素进行了长期的、系统的、卓有成效的研究。1967年，三宅泰雄教授首次明确提出，把海洋研究中不仅着眼于元素而且着眼于同位素或核素的研究领域称之为同位素海洋学 (Isotope Oceanography) 或核海洋学 (Nuclear Oceanography)，从而在海洋科学中开辟了一个崭新的领域。

近二、三十年来，同位素海洋化学领域的研究发展非常迅速。它的研究对象涉及海洋环境中的水圈、生物圈、岩石圈以及大气圈中的天然、人工放射性核素和稳定同位素；它的研究内容不仅涉及这些核素在海洋中的分布与变化规律，而且讨论了这些核素的行为及其规律性与海洋学其他分支学科的密切联系。由于稳定同位素和放射性核素本身固有的物理化学特性，使它可做为海洋研究的示踪剂和计时钟。同时也由于质谱技术和核物理测量技术的发展，使海洋学家有可能准确测定在海洋和大气中含量极低的稳定同位素和放射性核素的含量，研究它们的行为和规律，从而为海洋科学提供了新的强有力的研究手段，推动海洋科学的发展。迄今为止，同位素海洋学在海洋中水体的运动、海洋环流模式、水团的划分、海洋初级生产力、海洋沉积速率、深海锰结核的成因及生长速率、古海平面的变化、海水古温度、利用海洋处置放射性废物及海洋环境保护……等一系列海洋学问题的研究上，都获得了可喜的成果，成为当代海洋科学中一个十分活跃和富有成果领域。

鉴于近几年来，国内同位素海洋学有了较大的发展，迫切需要既能反映同位素海洋学概貌，又能反映国际海洋界在这个领域的研究动态和最新成果的著作，我们特将此书译出。该书对我国的海洋科技工作者具有一定的参考价值，同时可做为有关的海洋院校和核科学专业师生的教学参考书。

参加本书翻译工作的有黄奕普（序言、第十八、二十、廿一、廿二章）；施文远（第十五、十六、十七、十九章）；邹汉阳（第一、二、三、五章）；龚书椿（第四、六、八、十、十三章）和程汉良（第七、九、十一、十二、十四章）。全书由黄奕普、施文远统校。限于水平，译文疏漏不当之处在所难免，敬请读者指正。

译 者

一九八五年二月于厦门

序 言

三宅泰雄 (Yasuo MIYAKE) 是一位权威的地球化学家。地球上的固、液、气体等部分他都研究过。作为地球化学这一学科某些方面的先驱者，他有机会选择最新的课题和创造新方法。他的研究结果往往是重要的、具有重大价值的。他是首先认识到研究核弹产生的放射性核素的重要性的学者之一。在他的研究中，强调了大气和河流在把天然的和人工的放射性引入海洋方面的作用，并为他在世界各地的同行们更广泛的研究打下了基础。由于他和菅原健 (K. Sugawara) 教授、石橋雅义 (M. Ishibashi) 教授的研究活动，使日本在海洋学的研究方面保持领先的地位。不仅如此，他已形成一个卓越的学派并为他的研究室培养了许多有才华的同事。

三宅教授1908年生于冈山市。他父亲是第六国立大学的教授 (Ishiro MIYAKE)，1901年耶鲁大学授予他实验心理学博士。

三宅泰雄1931年毕业于东京帝国大学 (现在的东京大学)，毕业论文是关于含铀、钍和稀土的新的放射性矿物的研究。他从事的领域是无机化学。

毕业后他最先任北海道帝国大学 (现在的北海道大学) 的研究助理 (1931—1935)，以后 (1935—1946) 任中央气象观测站的首席化学家。根据他关于北太平洋西部海洋化学的研究，1940年东京帝国大学授予他博士学位。从1946至1969年，他一直任气象研究所地球化学研究室的主任。1957年他成为东京教育大学的无机化学教授，同时兼任气象研究所地球化学研究室的主任。1972年退休。1956年他应邀任加利福尼亚大学斯克里普斯海洋研究所和加州理工学院的访问教授。

他一直竭诚地在为日本和国际上的同行们服务，先后被选为日本地球化学学会的会长 (1967—1971) 和日本海洋学会会长 (1975—1979)，并被选为日本科学委员会的委员 (1966—1978)。此外，他还担任过海洋研究科学委员会的委员 (1957—1978)，并在其他国际学术团体任职，如国际大地测量及地球物理学联合会 (IUGG)、美国农业与农业化学研究理事会 (CACR)、国际海洋物理科学协会 (IAPSO)、国际气象学与大气物理学协会 (IAMAP) 以及太平洋科学协会。1966—1971年，他是太平洋科学协会海洋科学常务委员会的主席。

他的渊博学识在他的著作《地球化学原理 (Elements of Geochemistry)》中得到证明。该书1954年先以日文出版，1965年经修订以英文版发行，1969年又以俄文版发行。

虽然他已从学术活动中正式退休，他仍然积极地从事研究工作。近年来他组织了地球化学研究协会，并为地球化学设立了“三宅奖金 (Miyake Prize)”。

他荣获过日本海洋学会 (1967)、日本气象学会 (1974) 和日本海水学会 (1977) 授予的奖金。此外，各国有关的学者还把专著《天然辐射环境 (The Natural Radiation Environment)》II，第1、2卷奉献给三宅教授和美国的摩根 (K. Z. Morgan) 教授，这是由于他们在天然和人工放射性方面取得了开创性研究成果。

从三宅泰雄的选集 (Geochemical Research of the Ocean and the Atmosphere, Geochemical Laboratory, Meteorological Research Institute, Tokyo, Japan, 1978, 850 pp.) 我们可以看出他的思想境界。首先, 他对涉猎的专门研究领域坚持不懈, 对和他合作的同事始终不渝, 数十年如一日。例如, 在海洋化学方面, 1939年他发表了海水的依数性。24年后, 他研究了洋面上碘的蒸气压。几十年来, 他的许多论文都是一直与一些杰出的同事如杉浦吉雄 (Y. Sugiura) 博士、猿桥胜子 (K. Saruhashi) 博士和杉村行勇 (Y. Sugimura) 博士合作发表的。这表明他对科学问题以及他的协作者怀有深厚的感情。

五十年代初期, 他开始涉足海洋环境中人工放射性的研究, 这也激励了世界各地一些有才华的科学家在他们易于到达的那部分海域进行类似的观测。在这些研究活动中, 三宅教授对“测量什么是重要的?”、“在何处进行这些研究?”这类问题总是要深思熟虑的。

这本书是很快编纂而成的。在三宅泰雄教授诞辰七十周年之际, 各国的同行为了向这位世界杰出的地球化学家表示庆贺, 在异常短的时间内就奉献了这许多论文。

编者们对名古屋大学的北野康 (Y. Kitano) 教授、鹿儿岛大学的杉浦吉雄教授和气象研究所的杉村行勇博士在筹划本书的出版方面所给予的协作表示感谢。

E. D. 戈德堡 (Edward D. GOLDBERG)

堀部纯男 (Yoshio HORIBE)

猿桥胜子 (Katsuko SARUHASHI)

1980年2月

目 录

第一部分 海洋环境中的人工放射性

- 第一章 地中海的 ^{241}Pu (2)
- 第二章 1972年北大西洋和巴伦支海水中放射性散落物的分布 (7)
- 第三章 日本周围沿岸表层海水中散落的放射性同位素 (15)
- 第四章 放射性核素在海水和沉积物中的分布 (22)
- 第五章 全球性放射性散落物的若干测量
——推测北太平洋控制某些表面污染物分散速率的特征 (32)
- 第六章 海洋微生物对放射性核素的富集作用 (73)
- 第七章 关于将放射性废物处置于北太平洋中的评价
——稳定流和上升流的影响 (82)

第二部分 海洋环境中的天然放射性

- 第八章 利用宇宙成因的 ^{32}Si 研究近岸水体的混合作用的可能性 (90)
- 第九章 南太平洋东部的 ^{210}Pb 和 ^{210}Po
——上升流对它们在水柱中分布的影响 (98)
- 第十章 西北太平洋的 ^{226}Ra 和 ^{210}Pb (102)
- 第十一章 用化学和物理方法测定贻贝的年龄 (118)
- 第十二章 太平洋海水中铀的含量以及 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 的放射性比值 (129)
- 第十三章 海水中的 ^{228}Ra (156)
- 第十四章 应用高分辨的 γ 能谱法直接和不破坏试样地测定海洋沉积物、锰结核和珊瑚的年龄 (165)

第三部分 海洋地球化学

- 第十五章 世界大洋表层水中的碳酸盐化学 (186)
- 第十六章 日本鹿儿岛湾海底火山的二氧化碳通量的估算 (208)
- 第十七章 海洋硫酸盐、蒸发岩和现代深海沉积物的间隙硫酸盐中 $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ 和 $^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$ 同位素比值的控制因素 (215)
- 第十八章 氮同位素的分馏及其在海洋环境的生物地球化学过程中的意义 (236)
- 第十九章 大西洋深海钻探计划沉积物岩芯中的铅同位素 (251)
- 第二十章 工业铅对天然铅在海洋生态系的营养钙途径中迁移的扰乱 (260)
- 第二十一章 海洋环境中铜、镉、铊、铅的同位素稀释质谱法测定 (277)
- 第二十二章 日本在同位素海洋化学方面的最新研究成果 (296)

第 一 部 分
海洋环境中的人工放射性

第一章 地中海的 ^{241}Pu

R. FUKAI, E. HOLM¹⁾ 和 S. BALLESTRA

摩纳哥公国, 国际原子能机构, 国际海洋放射性实验室

摘 要

测定了地中海表层海水和悬浮颗粒中 ^{241}Pu 的浓度。未过滤的海水 ^{241}Pu 的平均浓度为 7.3 ± 0.6 毫微微居里/升²⁾, $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 的放射性比值平均为 6.8 ± 0.5 。这一比值与总的放射性散落物中的比值相一致, 它为根据 $^{239+240}\text{Pu}$ 的垂直分布而提出的“地中海水柱中钚的垂直迁移是缓慢的”的论点提供证据。悬浮物中 $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 的放射性比值与海水中的比值并无明显的差别, 颗粒态的 ^{241}Pu 约占未过滤的海水中 ^{241}Pu 总量的4%。

1.1 前 言

如今存在于环境中的几种钚的同位素中, ^{241}Pu 的放射性最高。虽然1971年, 全球性的放射性散落物中, 平均的 $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比值小于0.01(Krey等, 1976), 而最近观测到的同一地区的 $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射性比值超过5(Holm和Persson, 1977; Holm和Persson, 1978)。然而, $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 的放射性比值是随环境中钚的来源和年龄而变化的, 在核设施运行或核事故的污染区中, 发现这个比值在3至35之间(Livingston等, 1975)。尽管 ^{241}Pu 具有较高的放射性, 但是迄今对环境中的 ^{241}Pu 的研究并不多。这可能是因为在环境中软 β 放射体的 ^{241}Pu 放射性活度太低, 以至通用的液体闪烁技术仍不容易测量。

倘若在排放时 $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 起始的放射性比值已知, 而且环境中的 ^{241}Pu 与其他钚的同位素的行为相似的话, 那么由于 ^{241}Pu 以14.2年的半衰期衰变为 ^{241}Am , 通过测定样品中的 ^{241}Pu 便可确定环境中钚的同位素混合物的“年龄”。由于 ^{241}Am 是由 ^{241}Pu 就地产生的, 所以测定 ^{241}Pu 的放射性活度, 对于弄清环境中 ^{241}Am 的分布和归宿也是重要的。

Livingston, Schneider和Bowen(1975)利用采自美国科德角(Cape Cod)地区与大西洋的沉积物和海洋生物, 研究了海洋环境中 ^{241}Pu 的分布。他们还测量了取自放射性污染区域的若干环境样品中的 ^{241}Pu 。然而对于污染的海水至今只报道过一个数值。

1) 瑞典隆德大学辐射物理系顾问。

2) 居里属应废除的常见计量单位, 法定计量单位应为贝可(1居里= 3.7×10^{10} 贝可), 为避免改动原书单位带来的一系列影响, 仍予保留。

本文作者以前研究过 ^{238}Pu 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 和 ^{241}Am 在地中海表层水中 (Fukai等, 1976) 和这些水体的悬浮颗粒中 (Holm等, 1980) 的分布。本文报道并讨论了以前研究的这些样品的 ^{241}Pu 的测量结果。

1.2 方 法

钚-241是通过测量钚的同位素混合物中的 ^{241}Pu 衰变产生的 ^{241}Am 来测定的, 钚的同位素混合物首先是电沉积在用于测量 ^{238}Pu 和 $^{239+240}\text{Pu}$ 的不锈钢测量片上。原来存在于样品中的镅-241, 在钚的混合物电沉积之前, 按先前描述过的程序 (Ballestra等, 1978) 分离掉。由于这些程序分离出完全没有镅的钚, 因此测量片上的 ^{241}Am 就相当于衰变的 ^{241}Pu 的量, 其衰变时间即从原先存在于样品中的 ^{241}Am 分离出钚起至为了测量 ^{241}Pu 而沥取测量片的时候止。对于低水平的环境样品, 为了保证准确测定测量片上产生的 ^{241}Am , 至少需要2年以上的生长时间。

经 ^{241}Am 的生长之后, 用8 M HNO_3 沥取镀钚的不锈钢片, 把生长的 ^{241}Am 连同钚, 以及来自测量片材料的Fe, Ni等一起溶解下来。加入约0.2 dpm ^{243}Am 作为产额示踪剂, 然后在硝酸-甲醇介质中用阴离子交换分离镅 (Holm和Fukai, 1976)。镅从1 M HNO_3 -93% CH_3OH 介质中吸附在AG 1 ($\times 4$, 100-200目) 树脂柱上, 接着用1.5 M HCl -86% CH_3OH 混合液淋洗镅, 使 ^{241}Am 与Ni、Fe以及钚的同位素完全分离开来。分离出的 ^{241}Am 电沉积在一个新的不锈钢片上 (Ballestra等, 1978)。用硅面垒探测器配合多道分析器的 α 谱仪进行测量。分离的化学产额通常是极好的, 往往超过90%。

根据 ^{241}Am 的放射性活度, 由下式计算出 ^{241}Pu 的放射性活度:

$$^{241}\text{Pu}_0 = \frac{\lambda_{\text{Pu}} - \lambda_{\text{Am}}}{\lambda_{\text{Am}}} \frac{^{241}\text{Am}_t}{(e^{-\lambda_{\text{Am}}t} - e^{-\lambda_{\text{Pu}}t})} = \frac{31.25^{241}\text{Am}_t}{(e^{-0.0015t} - e^{-0.0488t})}$$

式中 t ——表示从分离钚与初始存在的 ^{241}Am 时起至分离生长的 ^{241}Am 时所经历的时间 (年)。

$^{241}\text{Pu}_0$ ——表示在钚与初始存在的 ^{241}Am 分离时, ^{241}Pu 的放射性活度。

$^{241}\text{Am}_t$ ——表示分离出生长的 ^{241}Am 之后, 立即测定的 ^{241}Am 的放射性活度。

λ_{Pu} —— ^{241}Pu 的衰变常数。

λ_{Am} —— ^{241}Am 的衰变常数。

计算时 ^{241}Pu 和 ^{241}Am 所用的半衰期分别为14.2年和458年。

1.3 结果和讨论

为了准确测量, 必需保证回收足够的生长的 ^{241}Am , 为此我们将用于测量地中海不同站位的 $^{238}\text{Pu} + ^{239+240}\text{Pu}$ 的测量片按地理位置分组。一组多达4个测量片, 一起沥取和处理。这样, 每个 ^{241}Pu 的分析数据代表着0.4—0.7千升未过滤海水的含量或由11—14千升海水过滤出的悬浮物的含量。

从西部和蒂勒尼安 (Tyrrhenian) 海盆采集的未过滤的地中海表层水中 ^{241}Pu 的测定结果, 与过去报道的 $^{239+240}\text{Pu}$ 的结果 (Fukai等, 1976) 一起列于表1.1, 同时也列出

计算的 $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射性比值。 $^{239+240}\text{Pu}$ 的结果表明,在所研究的海域里钚的分布在一定程度上是均匀的,因此对于测量 ^{241}Pu 的样品的地理分组是正确的。根据地中海

表 1.1 地中海(未过滤)表层水中 $^{239+240}\text{Pu}$ 和 ^{241}Pu 的浓度

站 位	采 样 日期	氯 度 (%)	样品体积 (升)	$^{239+240}\text{Pu}$ (10^{-15} 居里/升)	合并的样品 体积 (升)	^{241}Pu (10^{-15} 居里/升)	$^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
43°39' N, 12°00' E	1975.7.2.	21.26	420	1.35±0.06	420	9.1±1.3	6.8±1.0
43°11' N, 06°32' E	1975.9.14.	—	210	0.91±0.07 ²⁾			
38°30' N, 06°30' E	1975.9.17.	20.56	180	0.77±0.06	600	6.6±0.9	7.9±1.1
37°30' N, 06°30' E	1975.9.18.	20.78	210	0.93±0.07			
37°30' N, 11°00' E	1975.9.20.	—	180	1.11±0.06			
38°40' N, 12°00' E	1975.9.20.	20.12	180	1.04±0.06	570	6.3±1.1	5.8±1.0
40°40' N, 11°40' E	1975.9.20.	20.18	210	1.09±0.09			
41°20' N, 11°30' E	1975.9.21.	21.11	210	0.95±0.09			
42°47' N, 09°25' E	1975.9.21.	21.13	210	1.1±0.1	620	7.0±1.3	6.8±1.0
43°55' N, 09°00' E	1975.9.22.	21.17	200	1.10±0.06			
					平均	7.3±0.6	6.8±0.5

1) 不确定度以 1σ 传播误差表示。

2) 此海水经HA微孔滤膜(孔径为0.45微米)过滤。

表 1.2 地中海表层水中颗粒态 $^{239+240}\text{Pu}$ 和 ^{241}Pu
(经孔径为0.45 μm 的HA微孔滤膜过滤)

站 位	采 样 日期	过 滤 体 积 (千升)	$^{239+240}\text{Pu}$		合并的过 滤 体 积 (千升)	^{241}Pu		$^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
			(10^{-18} 居里/升)	颗粒态 (%)		(10^{-18} 居里/升)	颗粒态 (%)	
43°11' N, 06° 32' E	1975.9.14.	4.54	43±4	4.5				
42°30' N, 06° 30' E	1975.9.14.	3.79	44±5	4.3 ¹⁾	12.1	220±60	3.1	4.8±1.3
42°47' N, 09° 25' E	1975.9.21.	2.08	40±5	3.6				
43°55' N, 09° 00' E	1975.9.22.	1.70	53±5	4.8				
41°30' N, 06° 30' E	1975.9.15.	4.54	27±2	2.6 ²⁾				
40°30' N, 06° 30' E	1975.9.16.	7.00	37±3	3.6 ²⁾	11.5	260±60	3.6 ²⁾	8.1±1.9
37°30' N, 11° 00' E	1975.9.20.	3.44	39±3	3.5				
38°40' N, 12° 00' E	1975.9.20.	2.35	35±2	3.4	13.5	360±50	5.7	9.5±1.1
40°40' N, 11° 40' E	1975.9.20.	7.68	41±3	3.8				
		平均	40±2 ³⁾	3.8±0.2 ³⁾	280±30	4.1±0.8 ³⁾		7.5±0.9

1) 不确定度以 1σ 传播误差表示。

2) 没得到未过滤海水的数值。该值系根据未过滤海水中的平均浓度为:

1.03±0.05毫微微居里 $^{239+240}\text{Pu}$ /升, 7.3±0.6毫微微居里 ^{241}Pu /升而计算的。

3) 不确定度以标准误差表示。

表层水中 ^{241}Pu 的平均浓度为 7.3 ± 0.6 毫微微居里/升的测定结果,得出 $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 的放射性比值平均为 6.8 ± 0.5 。1975年整个放射性散落物中 $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 的放射性比值约为7(Holm和Persson, 1977),此数值与地中海表层水的数值相当一致。1964年估算的1952—1954年间早期进行的“Mike”和“Bravo”核试验刚产生的散落物中 $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 的放射性比值估计为26—27(Hisamatsu和Sakanoue, 1978),而在1961—1962年间核试验产生的散落物中相应的比值为14—16(Holm和Persson, 1977)。如果我们假设在1961—1962年之后所产生的新鲜的散落物中 $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射性比值也是在15左右,那么,总的放射性散落物和地中海表层水中 $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比值的一致性意味

着存在于地中海表层水中的钚年龄约15年。因此可以认为地中海表层水中大部分钚的主要来源是1961—1962年的核爆炸。

Fukai, Holm和Ballestra (1979) 在位于研究海域的一个剖面(深达2000米)测定了 ^{238}Pu 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 和 ^{241}Am 的垂直分布, 结果证实地中海中钚的垂直迁移比大西洋(Noshkin和Bowen, 1973)要慢得多, 而且钚的总量大部分仍然是在地中海的上层500米中。Livingston, Casso, Bowen和Burke(1978)也发现地中海的钚有着相似的垂直分布。表明地中海的钚垂直迁移速率较慢的这些研究成果, 是和现时地中海表层水中的钚年龄较老的假设相一致的。

地中海表层悬浮物中 ^{241}Pu 的测量结果与 $^{239+240}\text{Pu}$ 的结果(Holm等, 1980)一起列入表1.2。根据未过滤海水中 $^{239+240}\text{Pu}$ 和 ^{241}Pu 的浓度, 也算出滤膜(孔径0.45微米)保留的百分数。该表指出地中海表层水中颗粒态 ^{241}Pu 的平均百分数是 $4.1 \pm 0.8\%$, 后者与颗粒态 $^{239+240}\text{Pu}$ 的百分数为 $3.8 \pm 0.2\%$ 相吻合, 这说明在海洋环境中, ^{241}Pu 的行为与 $^{239+240}\text{Pu}$ 的行为是相似的。在表1.2中, 悬浮物中 $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 的放射性比值的波动虽比未过滤海水中该比值的波动(表1.1)来得大, 但平均比值为 7.5 ± 0.9 。这个值和未过滤海水的平均比值 6.8 ± 0.5 并无显著的差别。因此, 不管是通过垂直的水团运动或是颗粒物质的下沉而使表层钚转移到深层, 在整个水柱的不同深度, $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射性比值预计都是在7左右。如果这符合实际, 那么假设钚有一适当的垂直迁移速率, 就有可能估算水柱不同深度处的 ^{241}Pu 随时间而产生的 ^{241}Am 的产额。不过这种考虑是以1961—1962年前后的核爆炸是可忽略不计的假设为依据的。在得出进一步的结论之前, 必须通过整个水柱中 ^{241}Pu 的实际测量来检验上述的假设。

参 考 文 献

- Ballestra, S., E. Holm and R. Fukai, Low-level determination of transuranic elements in marine environmental samples, in *Proc. of Symp. on the Determination of Radionuclides in Environmental and Biological Materials*, Oct. 1978, Pap. No. 15, Central Electricity Generating Board, London, 1978.
- Fukai, R., S. Ballestra and E. Holm, Americium-241 in Mediterranean surface waters, *Nature*, **264**, 739—740, 1976.
- Fukai, R., E. Holm and S. Ballestra, A note on vertical distribution of plutonium and americium in the Mediterranean Sea, *Oceanol. Acta*, **2**, 129—132, 1979.
- Hisamatsu, S. and M. Sakanoue, Determination of transuranium elements in a so-called "Bikini ash" sample and in marine sediment samples collected near Bikini Atoll, *Health Phys.*, **35**, 301—307, 1978.
- Holm, E., S. Ballestra, R. Fukai and T. M. Beasley, Particulate plutonium and americium in Mediterranean surface waters, *Oceanol. Acta*, **3**, in press, 1980.
- Holm, E. and R. Fukai, Determination of americium and curium by using ionexchange in nitric acid-methanol medium for, environmental analysis, *Talanta*, **23**, 853—855, 1976.
- Holm, E. and R. B. R. Persson, Pu-241 and Am-241 in the environment, in *Proc. 4th Intl. Congr. IRPA*, Paris, April 1977, vol. 3, 845—848, 1977.
- Holm, E. and R. B. R. Persson, Biophysical aspects of Am-241 and Pu-241 in the environment, *Rad. Environ. Biophys.*, **15**, 261—276, 1978.
- Krey, P. W., E. P. Hardy, C. Pachucki, F. Rourke, J. Coluzza and W. K. Benson, Mass isotopic composition of global fall-out plutonium in soil, in *Transuranium Nuclides in the Environment*, pp. 671—678, IAEA, Vienna, 1976.
- Livingston, H. D., S. A. Casso, V. T. Bowen and J. C. Burke, Soluble and particle-associated

fall-out radionuclides in Mediterranean water and sediments, presented at *26th Congress of CIESM*, Nov. 1978, Antalya, Turkey, 1978.

Livingston, H. D., D. L. Schneider and V. T. Bowen, ^{210}Pu in the marine environment by a radiochemical procedure, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **25**, 361—367, 1975.

Noshkin, V. E. and V. T. Bowen, Concentrations and distributions of long-lived fall-out radionuclides in open ocean sediments, in *Radioactive Contamination of the Marine Environment*, pp.671—686, IAEA, Vienna, 1973.

第二章 1972年北大西洋和巴伦支海 水中放射性散落物的分布

H. KAUTSKY

德意志联邦共和国, 汉堡西德水文研究所

摘 要

1972年, 西德水文研究所放射学工作组在“流星”号调查船上, 采集了大西洋东北部和巴伦支海的水样, 并研究了水样中 ^{137}Cs 和部分水样中 ^{90}Sr 的含量。结果发现在沿着挪威沿岸的狭长海域里和巴伦支海南部(72°N 以南)放射性浓度明显地高于大西洋公海和巴伦支海北部。

在 60°N , 15°W 和 78°N , 03°E 之间沿着北-南方向, 水深750米至1000米的若干站位, 测得 ^{137}Cs 放射性浓度约为表层水浓度的3至8倍(Kautsky, 1977a)。然而对比起来, ^{90}Sr 的放射性浓度却呈现正常的变化, 即由表层向深层平稳地减少。

2.1 概 况

从我们在1961至1969年间(Kautsky, 1970)的早期研究中得知, 巴伦支海表层海水中(来源于原子弹试验的)放射性散落物 ^{137}Cs 和 ^{90}Sr 的放射性浓度经1964年的最大值之后, 再次降低。1969年, 在所调查的 70°N 至 74°N 和 18°E 至 38°E 之间的整个巴伦支海海域中, ^{137}Cs 的浓度介于0.22至0.26微微居里/升, ^{90}Sr 的浓度介于0.17至0.20微微居里/升。为了继续进行研究, 而且首先也为了取得放射性散落物在巴伦支海的垂直分布资料, “流星”号调查船1972年航次在巴伦支海以及沿着挪威西海岸和在北大西洋大体沿着本初子午线, 采集不同深度的水样(图2.1)。这些样品用来研究 ^{137}Cs 的含量, 而部分样品用来研究 ^{90}Sr 的含量。

显然, 由建于La Hague, Windscale和Dounreay等地的核燃料再处理工厂排放的废水而引入海中的 ^{137}Cs , 经北海(Kautsky, 1973; Jefferies等, 1973)并以狭长条状沿挪威海岸流动而到达巴伦支海(Kautsky, 1977b), 同时在其南部向东迁移。

2.2 方 法

用容积250升的大采水器采集深水样品。样品量按不同取样深度递增: 表层下50米内, 每份样品取50升; 100米至500米深, 每份样品取100升; 从750米至1000米, 每份取200升; 1500米, 取300升; 从2000米以下, 每份样品取400升海水。

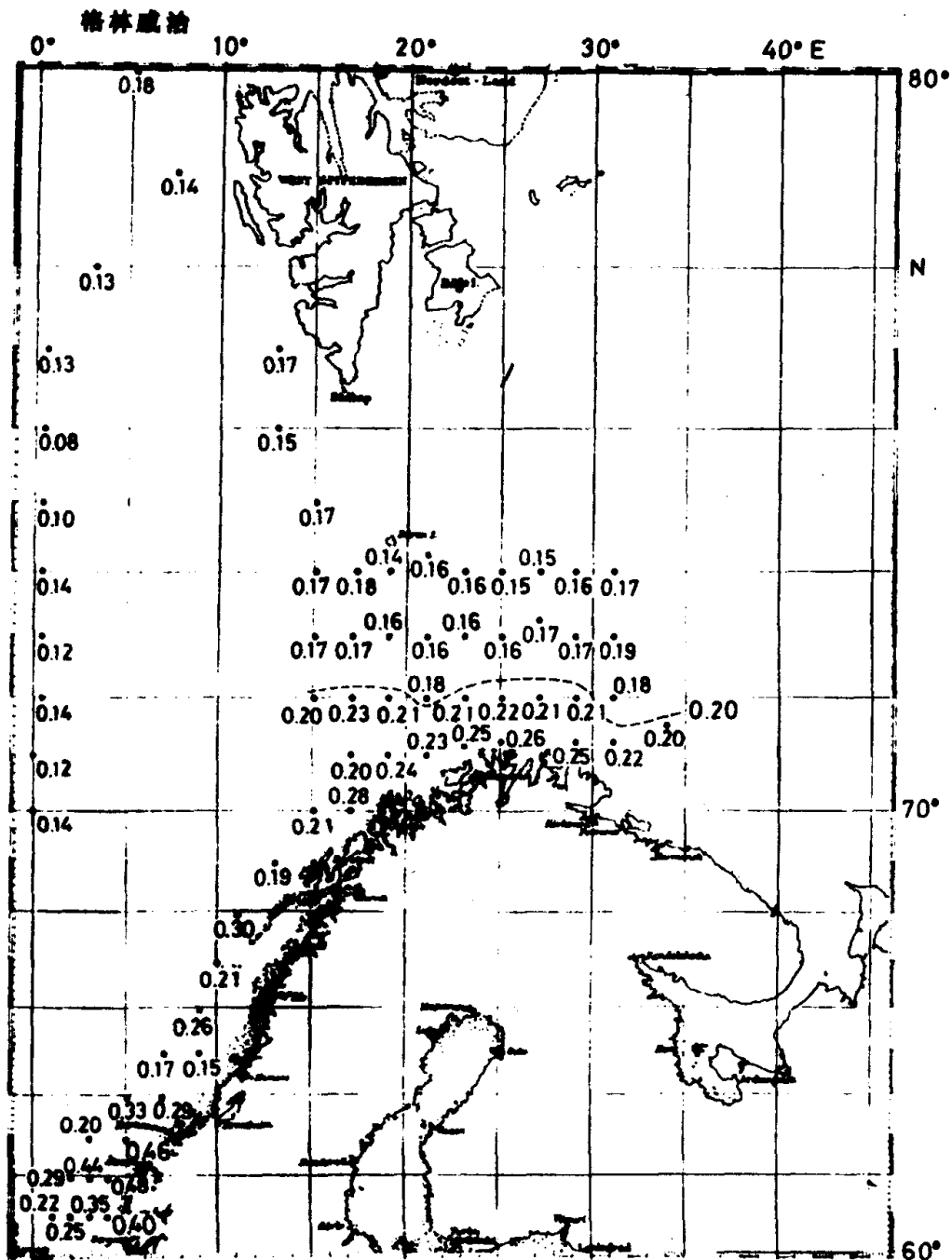


图 2.1 站位图及表层水中¹³⁷Cs的放射性浓度(微微居里/升)

为了分离¹³⁷Cs, 50升的样品, 按照 Schmitt和Kautsky(1961)的方法进行处理。对于样品量大于100升者, 我们通过无机离子交换剂亚铁氰化钴钾(KCFC)分离¹³⁷Cs。接着按Eicke(1974)所描述的方法进行处理。

部分样品, 按照大家熟悉的碳酸盐沉淀、硝酸分离的方法测定⁹⁰Sr的含量。

依照Fukai, Stathan和Asari(1974)的方法, 用二-2-乙基己基磷酸(HDEP)和氯化甲基三辛基铵的液体萃取, 从另外一些样品中分离⁹⁰Y, 并以Y₂O₃形式制源。

辐射测量采用低水平反符合β辐射测量装置, 测量盘为2英寸。

2.3 结 果

在北大西洋公海, 表层水 ^{137}Cs 的放射性浓度平均为0.13微微居里/升(图2.1)。低于此平均值的只有在 75°N 和 76°N 两处, 浓度分别为0.10和0.08微微居里/升, ^{90}Sr 的相应值为0.08至0.09微微居里/升(表2.3)。 $^{90}\text{Sr}:^{137}\text{Cs}$ 的比值平均也是1:1.4, 对于放射性散落物而言, 此比值可视为正常值。

在巴伦支海, ^{137}Cs 的放射性浓度一般来说是高一些。从其浓度分布可以清楚地看到两个不同浓度的区域。在 72°N 以南(15°E 和 37°E 之间)其浓度介于0.21和0.26微微居里/升, 而在近岸区呈现最高值。 72°N 以北, 业已查明所有数值均低于0.2微微居里/升, 平均在0.15和0.18微微居里/升之间。

只要我们仔细地研究挪威西部沿海放射性 ^{137}Cs 的浓度, 加上由北海已取得的资料(Kautsky, 1973; Kautsky, 1977b), 那么, 我们可以清楚地认识到巴伦支海南部 ^{137}Cs 的浓度比较高是由于那些位于沿岸的欧洲核燃料再处理工厂的废水所致。

巴伦支海表层水中 ^{90}Sr 的放射性浓度介于0.10和0.13微微居里/升之间(表2.2)。然而, 现有的这些数据还不足以作出关于该同位素在巴伦支海的分布可能存在着区域性的差别的确切结论。直至 73°N , $^{90}\text{Sr}:^{137}\text{Cs}$ 的比值平均在1:1.7至1:1.8, 而在 74°N 的两个站位这一比值又是1:1.4(均以 1σ 的传播误差表示)。

这些主要受巴伦支海南部 ^{137}Cs 浓度影响的相关因子可能与核电厂的 ^{137}Cs 流入量有关。这些 ^{137}Cs 随着沿挪威海岸向北流动的水一起流入巴伦支海。在 65°N , 人们已可观测到 $^{90}\text{Sr}:^{137}\text{Cs}$ 比值为1:1.7。然而, 现有的这些数据还不足以提供一份统计学上可靠的报告。

要是观察一下海水中 ^{137}Cs 的垂直分布(表2.1), 通常可以看出, 表层具有较高的放射性浓度, 且其数值随深度而减少。

在挪威沿岸 62°N 和 64°N 之间的区域内, 表层最薄, 在50米深处, ^{137}Cs 浓度的减少已明显可见。这或许意味着: 在大西洋的表层, 在高盐、低放射性的深层海水之上, 有一层低盐、高放射性的水由斯卡洛拉克海峡(波罗的海或北海的水)向北流动。

在 66°N 和 70°N 之间, ^{137}Cs 放射性浓度的减小, 先从100米深处明显地看出。而后从750米深处起, 浓度很强烈的减小。

在巴伦支海, 通常表层水的浓度只是略高于深层水。在50米至400米范围内, 放射性浓度值只有微小的变化。

^{90}Sr 的分布情况与 ^{137}Cs 非常相似(表2.2)。

然而, 在 60°N , 15°W 和 78°N , 03°E 之间的北大西洋开阔海域, ^{137}Cs 和 ^{90}Sr 的垂直分布(表2.3, 图2.2)在不同的站位呈现激烈的变化。

在 $60^\circ 01'\text{N}$, $15^\circ 00'\text{W}$ 站, ^{137}Cs 的放射性浓度从表层至500米深处, 缓慢地减少。而后在750米深处, 浓度急剧增加, 差不多为表层值的三倍。在1000米处, 浓度值仍然相当高, 只是到了1500米深处才急剧下降。对比起来, ^{90}Sr 在表层与靠近海底之间, 浓度逐渐减少, 在1830米深处的浓度约为表层浓度值的四分之一。

在 $66^\circ 00'\text{N}$, $05^\circ 29'\text{W}$ 站, 从表层至500米深处, ^{137}Cs 和 ^{90}Sr 两者的放射性浓度,