

穆鲁罗瓦和方阿陶法环礁环境放射性分析: 运作中的 IAEA 实验室

科学协作

PIER ROBERTO DANESI 和 PAVEL PETER POVINEC

指 导在法属波利尼西亚群岛开展穆鲁罗瓦和方阿陶法环礁放射学状况研究工作的国际咨询委员会成立后不久,许多科学问题便应运而生,其中包括数据收集和分析问题。法国从1966年7月到1996年1月在这两个环礁进行过193次核武器试验,因而理应建立一个独立的取样和分析计划。这个计划可用来达到若干目的——评价可供使用的法国数据的可信性,和确定法国的监测是否就陆地和海洋环境中的重要放射性核素的浓度与存量提供了适当的估计以使人们据之做出正确的剂量评估。

IAEA设在奥地利的塞伯斯多夫实验室和设在摩纳哥的MEL实验室,因为它们监测海洋和陆地环境中的环境放射性方面具有丰富经验而被要求参加这项研究。

这项研究的陆地和海洋取样活动,是在1996年进行的。为评估出访这样一个遥远的地区对后勤的要求,来

自这些实验室的一个技术小组于1996年3月访问了这两个环礁。技术小组视察了有可能进行取样的地点、实验室设备和设施,并会见了法国联络处的工作人员和当地的工作人员。

自那以后,由新西兰国家放射学实验室A. McEwan博士任组长的穆鲁罗瓦研究任务A组,设计并讨论了取样计划和监测计划。该任务组专家来自丹麦、日本、斐济、澳大利亚、美国、奥地利和联合王国。

取样活动从1996年7月1日到8月2日。陆地研究组和海洋研究组规模扩大,吸纳了一些国际专家。所收集样品的放射性核素分析工作,一部分由IAEA实验室进行,另一部分由独立国际实验室网进行。

陆地取样活动

取样计划的目的是获取有代表性的环境样品。除了在穆鲁罗瓦环礁的科莱特地区(在该地区,对热粒子进行

了调查)收集一些样品以外,对这些样品的制备和处理也很小心,以确保所有的放射性核素均匀地分布在最后的子样品中。此外,每个样品都被均分成3份。1份由合作的国际实验室测量,1份寄给法国,第3份在塞伯斯多夫存档。塞伯斯多夫的科技人员和其他的国际专家对法国的取样程序经过审议,发现这些程序是适当的,都加以在所有的取样过程中得到严格遵守,从而保证了分析结果与法国数据的合理可比性。收集的样品随后由塞伯斯多夫实验室,以及IAEA的环境放射性测量分析实验室(ALMERA)国际网的成员分析。从这个由53个实验室组成的网中,选出11个实验室参与穆鲁罗瓦和方阿陶法样品的分析工作。

Danesi先生是IAEA塞伯斯多夫实验室主任,Povinec先生是IAEA摩纳哥海洋环境实验室放射性测量学科科长。



Location of French Polynesia in the South Pacific Ocean.



地图：穆鲁罗瓦和方阿陶法环礁在南太平洋中的位置。研究组收集了近 300 个分析样品。照片（上右起）：取样组成员在方阿陶法钻取珊瑚礁基岩岩芯；在穆鲁罗瓦收集岩石样品；在穆鲁罗瓦环礁湖收集水样；在穆鲁罗瓦环礁湖布设一台海底 γ 能谱仪；在方阿陶法环礁湖收集沉积物样品。（来源：IAEA 塞伯斯多夫实验室/IAEA-MEL）

地点和样品。样品是从15个经选定的、尽可能靠近法国在过去一些年进行的环境监测活动中取过样的地点收集的。另外,一些样品是在最近邻的有人居住的图雷亚环礁上收集的。

收集的样品有好几种类型,总数达229个。在按放射性含量对所有样品进行筛选后,分析了198个样品。分析了用于收集气溶胶或再悬浮放射性颗粒的空气滤纸样品,以评价因吸入引起的潜在照射。在穆鲁罗瓦,每日收集一次滤纸,并测量滤纸的总 α 和 β 活度。然后将滤纸寄往塞伯斯多夫实验室进行 γ 活度测量,然后灰化进行 α 和 β 活度测定。

凡属可能的地方都收集顶部土壤和不同深度土壤的样品,以估计总的地表污染和评估放射性核素通过土壤的迁移情况。

在没有土壤的地方,收集松散珊瑚礁样品和砂样品。海滩上的砂和松散岩石,经受过波浪和暴风雨的扰动和混合。因此,进行随机取样,然后加以混合,得出一个能够代表整个地区的混合样品,被认为是得到无偏信息的最适当方法。

钻取珊瑚岩的岩芯样品,以调查原来没积在地表的放射性核素向下迁移的情况。垂直浓度分布对于原地

γ 能谱测量计算总放射性核素存量,也是一个重要参数。

穆鲁罗瓦和方阿陶法环礁上没有蔬菜或果树少数几个样品取自私人小花园而所用土壤却是从法属波利尼西亚群岛其他地方运来的。因此,认为可取的作法是,取得一些放射性核素从土壤的假定的居民可能栽种的植物的迁移特性的信息,尽管这类信息是间接的。因此在没有蔬菜的情况下,便将树和灌木的叶作为替代物加以取样和分析。对椰子,得到了一些更具体的数据。椰子树是在约100年前引入穆鲁罗瓦的。由于它们在波利尼西亚人的饮食中起着很重要的作用,因此在穆鲁罗瓦的一些地方、图雷亚以及方阿陶法的几个被隔离的地点采集了一些椰子。椰子是根据其成熟程度选择的,以便得到椰子水和椰子肉(干椰子肉)的样品。

在两个环礁的不同地点,用高纯锗探测器进行了106次原地 γ 能谱测量。测量的目的是收集有关铯-239、镅-241、钴-60、铯-137和铊-155等放射性核素在地表和地下的存量的信息。

对192个样品,进行了 γ 能谱分析。分析了178个样品中发射 α 和 β 的放射性核素。作为确认和质量控制措

施的一部分,这些测量是以两个平行样品和三个平行样品进行的。这导致对发射 α 的放射性核素(铯-238、铯-239、铯-240和镅-241)进行了941次测定,对铯-90进行了78次测定和对发射 γ 的不同放射性核素进行了2520次测定。

整个取样、制备、贮存和分发过程是在有严格质量保证措施条件下进行的。

陆地取样活动的结果

从一开始,人们就认识到,为期仅几周的取样活动,只能提供数量较为有限的样品。因而,这将不可避免地导致这次取样活动期间所取的抽样样品中的放射性核素浓度与通过法国监测活动在若干年间所积累的大得多的成套数据之间存在一些差异。从IAEA以往的分析经验来看,由于存在各种原因,一些差异是可以预料的。因此,数值范围重合可视为是有好的测量一致性的。

在活度范围方面,比较了穆鲁罗瓦研究的结果和法国的结果。铯-239、铯-240和铯-137的活度范围的概括图显示,对于大多数的地点与样品类型组合来说,活度范围是相互重合的,因而达到令人满意的一致。不过,也存在若干不一致的情况。虽然在放射学危险方面这些情况

微不足道,但也值得进行简要的讨论。

在飞机场西端的伊琳,测得的气溶胶中铀同位素的放射性浓度为 2 mBq/m^3 ,而法国报道的值是 0.11 mBq/m^3 。后者是在飞机场东端卡蒂测得的。这种差异可归因于这样的事实:法国人建造飞机场时,使用了一些取自科莱特地区的被污染的碎石。因此未料到一些颗粒会重新悬浮起来,导致某些空气样品中的活度有时很高。

在福空地区,3个顶部土壤样品显示铀-239和铀-240的浓度介于 $1200\text{—}1600 \text{ Bq/kg}$ 之间,即明显高于法国测量值 ($0.6\text{—}360 \text{ Bq/kg}$)。这种差异可归因于这个地区放射性核素分布的小范围不均匀性。

在曾进行过安全试验的地区(科莱特地区)的附近,发现了含有铀-239和铀-241的热点和热粒子。(见第43页有关文章。)测得的铀-239和铀-241的地表浓度,比1987年法国测量值高约2—6倍。铀-239的浓度为 $1\text{—}3 \text{ MBq/m}^2$,铀-241的浓度为 $20\text{—}70 \text{ KBq/m}^2$ 。

测量结果的差异可归因于IAEA国际小组和法国科学家使用了不同的测量技术。国际小组所做测量次数有限,使用的是较费时的原地 γ 能谱测量法和高分辨率

探测器。探测器距地面的固定距离(1 m),能够利用铀-239和铀-241的不同 γ 能量。因此,IAEA小组测得的活度水平可以认为更能代表当时的情况。

这些测量结果还显示,铀-239、铀-240与铀-241的活度比率成簇地分布在45和60这两个值的周围。这可能反映安全试验中所用铀的不同年龄和纯度。不过,必须指出的是,根据这些原地 γ 能谱测量结果计算得到的外照射剂量率,每年仅为几百mSv。

在方阿陶法环礁的基罗这个地方,国际小组测得椰子肉和椰子水中的铯-137和锶-90的浓度是最高的。从放射学危险的角度看,这些活度水平可以认为是无关紧要的:它们远低于所有椰子水样品中钾-40的自然活度水平(约为其1/3)。

在有人居住的图雷亚环礁上,国际小组测量了土壤、植物和椰子样品中的铀-239、铀-240和铯-137的活度水平。总的来说,它们都是低的,因而没有任何放射学意义。

总之,这项研究的陆地取样活动所测得的放射性浓度与法国的数据相一致。因此,可以认为这些数据是这两个环礁陆地环境中所存在的人工放射性物质水平的全

面而可靠的说明。

海洋取样活动

由MEL协调的海洋工作组的工作范围包括,审议法国主管部门提供的有关这两个环礁的沿岸和亚沿岸环境中放射性核素分布的数据。这一工作的双重目标是,在两个环礁及其周围区域开展有效的和新的独立监测工作,以便确认已有的法国数据;同时,提供一套有代表性的和高质量的有关海洋环境中现有放射性核素浓度的数据。

从1996年7月1日到27日,组织了对穆鲁罗瓦和方阿陶法环礁的水中取样考察。取样活动的安排是,采两个环礁的环礁湖及其周围海洋中采集的有相关性和可比较性的水、生物群和沉积物样品。所得结果连同1994年评价的早期IAEA比对数据一起用于确认法国监测活动产生的多得多的数据。

来自IAEA成员国实验室的5位研究人员和来自MEL的4位研究人员,参加了海洋取样活动。由他们组成的小组平行地在5条船上同时作业。样品预处理工作,在穆鲁罗瓦的4个独立管理的实验室中完成。

像陆地取样活动一样,所有样品都一式三份。共采集了300多个环礁湖水、海

洋水、沉积物孔隙水、沉积物、珊瑚和生物群样品。约13 000升水和1吨固态样品经采集、处理、包装后运至摩纳哥,分发给8个国家的10个分析实验室。

水下 γ 能谱测量法用于原地测量沉积物的 γ 活度。测量的目的是找出污染最严重的区域和指导以后的取样活动。测量是在穆鲁罗瓦环礁和方阿陶法环礁的环礁湖内进行的。由于环礁湖湖底地貌凹凸不平不便拖曳海底设备,因此沉积物 γ 活度测量是在不连续的点网上进行的。这些点大多分布在横贯由法国人找出的最高污染区域的狭长地带。

该小组的调查评价了可归因于钴-60和铯-137的 γ 计数率。因为来源和地球化学过程不同,它们在环礁湖沉积物中的分布不一定与铯的相同。不过,以往的法国研究表明,它们与铯的分布模式相关。

这次调查完成后,从被鉴定为局部污染高峰的地点取了样品。稍后进行了校准和相关分析,以便根据原地测量结果计算钴-60和铯-137的存量和估算环礁湖沉积物中的钴-60和铯-239以及铯-240的存量。

高度先进的水下 γ 能谱测量法证明是可用于海床最高污染区域原地鉴定的效率

高的技术。否则,鉴定这样的区域将需要做取样、样品制备和计数等一系列费时的工作。

分析工作由海洋实验室网承担。除IAEA-MEL外,这个网还包括澳大利亚、丹麦、德国、新西兰、联合王国和美利坚合众国的6个能够提供高质量数据的国际上著名的实验室。所有这些实验室都参加了MEL组织的定期比对活动,并以其不寻常的工作成绩,显示出在专门组织的熟练检测活动方面有很好的分析能力。

海洋取样活动的结果

海洋取样活动确证了已有的广泛数据,并提供了更多的科学信息。水环境中的放射性核素浓度普遍很低并与已报道的法国数据可比。

残留铯-90和铯-137虽然在两个环礁湖中是可以测出的,但其浓度很低。典型的活度如下:在环礁湖水中,约为 2 Bq/m^3 (仅稍高于全球落下灰在南太平洋造成的广泛分布的活度水平);在环礁湖的鱼中,对于铯-137来说活度低于 0.3 Bq/kg ,对于铯-90来说活度更低得多(鱼中自然存在的放射性钾-40的活度约为 100 Bq/kg ,以资对比)。

对于穆鲁罗瓦环礁的假定居民来说,对剂量的最重

要的贡献者是铯-239和铯-240。铯的水平在环礁湖水中约为 0.3 Bq/m^3 ,在鱼中约为 0.01 Bq/kg ,在环礁湖甲壳动物中约为 0.08 Bq/kg ,在环礁湖软件动物中约为 0.8 Bq/kg (约为由全球落下灰造成的这些放射性核素在太平洋中和可比较的海洋生物群中的浓度的约100倍)。不过在放射学上,这些放射性浓度都是很低的,并且没有任何放射学意义。

分析人员发现环礁湖水中铯-90、铯-137、铯-239和铯-240的浓度随时间而变化的趋势。对于所有137次地下核试验来说,对放射性核素的限制不是同样有效的。从铯浓度持续数年升高可以明显看出,一些铯已经泄入两个环礁湖中。法国联络处提供的有关两个环礁的碳酸盐岩石中铯的水平及其分布的数据可以证实这一点。

1996年所做的测量表明,两个环礁湖中铯的水平可能正开始下降(不过,这种下降对于穆鲁罗瓦环礁湖来说,也许会因有更多的从地下核试验中产生的铯迁移到环礁湖水中而彻底改变)。铯-90的水平,目前也许正在显示轻微的上升趋势。一些年来,铯-137、铯-239和铯-240的水平一直在下降,预期其速度比通过单纯的放

放射性衰变要快。

在环礁湖沉积物中观察到的占支配地位的放射性核素是钚-239和钚-240。这两种核素的表面浓度从环礁湖中心部分沉积物中的几十 Bq/kg 到驳船试验后留下热点的数千 Bq/kg。这些热点有：穆鲁罗瓦环礁上的德尼斯和丁顿，以及方阿陶法环礁上的弗里盖特处。最高的钚-239和钚-240浓度（高达约 500 000 Bq/kg），是在因多次安全试验而受到污染的科莱特滩沉积物中观察到的。

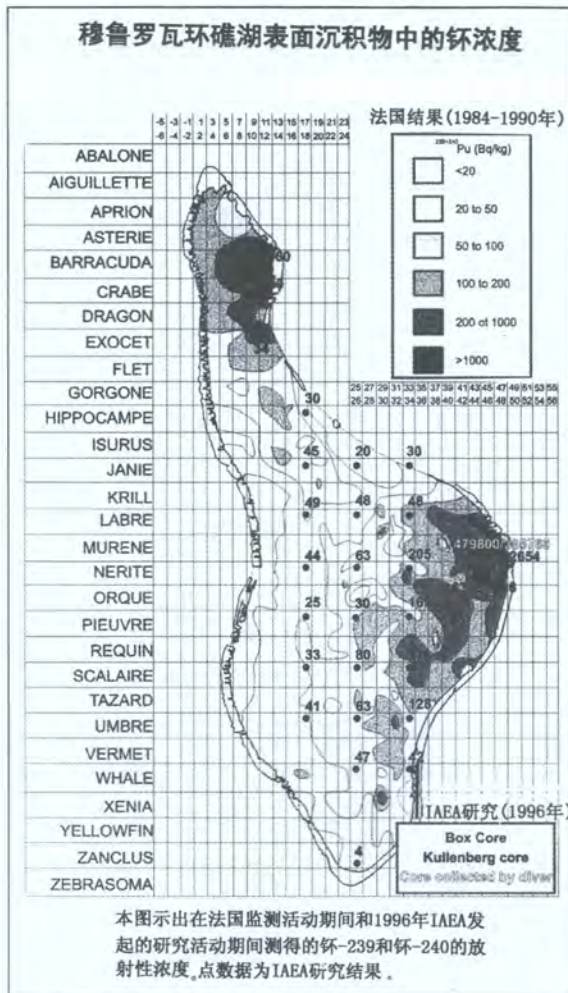
总的结论

总的来说，穆鲁罗瓦研究的取样活动揭示出，穆鲁罗瓦和方阿陶法环礁可为人接近的陆地和水环境中含有可归因于核试验的残留放射性物质。不过，这些放射性物质一般浓度很低，没有什么放射学意义。

不过，存在一些其放射学意义也许要值得注意的特点：

- 总的来说，这次研究的结果和法国的数据之间

穆鲁罗瓦环礁湖表面沉积物中的钚浓度



有相当好的一致性。与法国的数据相比，环礁湖中的放射性核素浓度有所下降。生物群中的放射性核素浓度低，并且与以往的 IAEA 数据及法国数据一致。

- 大气安全试验产生的含钚和少量锶的粒子，仍然在试验场区域存在——穆鲁罗瓦环礁的科莱特、埃里尔和威斯达地区。

- 在方阿陶法环礁基罗皇帝边缘总计达数公顷的一

些小区域，发现铯-137水平上升高（约 1 kBq/kg）。

- 在这两个环礁进行的大气层核试验产生的数千克钚，仍然存在于每个环礁湖的沉积物中。穆鲁罗瓦环礁湖沉积物中的钚，有一些来自大气层安全试验。这两个环礁湖中的钚-238、钚-239和钚-240的总存量，估计约为 30 TBq。锶-241、铯-137、锕-155与钚-60的存量各低于 1 TBq。

- 由于沉积物中铯-137、钚-239和钚-240的浸出和地下源的氡和镭-90的贡献，每个

环礁湖中氡、镭-90、铯-137、钚-239和钚-240的浓度，发现比外海中的高。放射性核素从两个环礁湖到外海的释放速率(单位为 TBq/a)估计如下：对氡来说为 6；对镭-90来说为 0.03；对铯-137来说为 0.01；对钚-238、钚-239和钚-240来说为 0.01。

- 对两个环礁湖适用的分配系数和浓集因子，发现处于 IAEA 建议的数值范围内。