

·述评·

# 福岛核事故对日本环境和食品安全的影响

杨国胜<sup>1</sup> 胡珺<sup>1</sup> 郑建<sup>2</sup>

<sup>1</sup>弘前大学辐射医疗综合研究所, 日本弘前市 036-8564; <sup>2</sup>国立研究开发法人量子科学技术研究开发机构放射线医学综合研究所, 日本千叶市 263-8555

通信作者: 郑建, Email: [zheng.jian@qst.go.jp](mailto:zheng.jian@qst.go.jp)

**【摘要】** 笔者阐述了日本福岛核事故对当地环境的影响, 系统介绍了同位素示踪技术在日本福岛事故发生后的发展和应用, 分析并指出福岛核事故释放的放射性微粒对环境和辐射剂量评估带来的新挑战, 总结了福岛核事故后日本当地食品安全规范和现状。希望能引起核工业从业人员、核应急管理以及公众的重视, 并引以为鉴。

**【关键词】** 日本福岛核事故; 污染物源解析; 放射性微粒; 环境效应; 食品安全

**基金项目:** 日本福岛放射性物质环境动态研究基金和 JSPS 科研费(JP17k00537)

DOI: [10.3760/cma.j.issn.1673-4114.2019.02.001](https://doi.org/10.3760/cma.j.issn.1673-4114.2019.02.001)

## Environmental impact and food safety in Japan after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident

Yang Guosheng<sup>1</sup>, Hu Jun<sup>1</sup>, Zheng Jian<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Institute of Radiation Emergency Medicine, Hirosaki University, Hirosaki 036-8564, Japan; <sup>2</sup>National Institute of Radiological Sciences, National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology, Chiba 263-8555, Japan

Corresponding author: Zheng Jian, Email: [zheng.jian@qst.go.jp](mailto:zheng.jian@qst.go.jp)

**【Abstract】** This review illustrated the radiation effects on the environment in Japan, the improvements and applications of source identification by using radioisotope tracer, the resulted challenge on the environment and radiation dose estimation due to the released radioactive microparticles, and the regulations and current situation of food safety in Japan, after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident. The FDNPP accident allowed the staffs in the nuclear industry, managers for the nuclear emergency, and the public to recognize the importance of nuclear security and nuclear emergency response again.

**【Key words】** Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident; Source identification; Radioactive microparticle; Environmental impact; Food safety

**Fund program:** Grant of Fukushima Prefecture related to Research and Development in Radiological Sciences, and the JSPS KAKENHI (JP17k00537)

DOI: [10.3760/cma.j.issn.1673-4114.2019.02.001](https://doi.org/10.3760/cma.j.issn.1673-4114.2019.02.001)

2011年3月11日, 日本东北部地区发生里氏9.0级地震并引发海啸, 在地震和海啸的双重破坏下, 位于福岛县的福岛第一核电站核机组相继发生堆芯熔毁和氢气爆炸。事故发生后, 东京电力公司为了降低核反应堆内气压而将堆内气体排放到大气环境, 为了冷却核反应堆而向堆内注入大量冷却水, 之后又将此冷却水排入大海。这些危机处理措

施以及其他的意外与失控事件, 使得福岛核反应堆内的放射性物质持续大规模外泄释放到周边环境。日本灾区民众遭受地震、海啸和核辐射污染三重打击, 同时造成了日本和邻国民众对日本环境和食品安全的担忧。限于篇幅, 笔者主要从放射性铯和锶系元素等方面介绍日本福岛核电站事故对环境和食品安全可能造成的影响, 对如何加强安全防范和科

学研究等问题做一些概要的介绍和讨论。

## 1 环境影响和来源示踪

与1986年前苏联的切尔诺贝利核电站事故并列核事故最高级(7级)的日本福岛核事故,对人类的影响是全球性和全方位的(环境安全、食品安全、人体健康和社会思考等)<sup>[1-3]</sup>。福岛核事故释放了大量的放射性物质到大气、陆地、河湖、海洋等环境介质,这些放射性物质不仅包括短半衰期的<sup>133</sup>Xe(5.2 d)、<sup>131</sup>I(8.0 d)、<sup>133</sup>I(20.8 h)和<sup>134</sup>Cs(2.1 y)等放射性核素,还包括长半衰期的<sup>129</sup>I( $1.57 \times 10^7$  y)、<sup>135</sup>Cs( $2.3 \times 10^6$  y)、<sup>236</sup>U( $2.342 \times 10^7$  y)、<sup>239</sup>Pu(24 110 y)和<sup>240</sup>Pu(6564 y)等放射性核素<sup>[1-3]</sup>。这些长寿命放射性核素将在环境中长期存在,因此放射性核素污染源的识别和长期环境的动态预测是福岛核事故后研究对环境影响的重要课题。

### 1.1 对大气的的影响及示踪

Aoyama等<sup>[4]</sup>通过对3个不同的大气模型估算出福岛核事故直接排到大气的<sup>137</sup>Cs为15~20 PBq。福岛核事故释放的<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs的活度比接近1.0的特征值(衰变校正到2011年3月11日),在北半球各地的大气中都有检测到,这说明福岛核事故的影响具有全球性<sup>[5]</sup>。短半衰期放射性核素的比活度相对较高,适宜用 $\gamma$ 谱仪等传统的方法检测<sup>[6]</sup>。 $\gamma$ 谱仪的样品前制备和操作简单,对技术人员的要求相对较低,因此福岛核事故后被用来测定<sup>131</sup>I和<sup>134</sup>Cs等短半衰期放射性核素,以进行辐射暴露风险评估。但福岛核事故发生几年后,<sup>131</sup>I和<sup>134</sup>Cs等短半衰期放射性核素基本衰变到最低检出限以下的活度,因此研究人员通过测定<sup>129</sup>I和<sup>135</sup>Cs等长半衰期放射性核素还原重建福岛核事故后短半衰期放射性核素的空间分布<sup>[7-9]</sup>。

Zheng等<sup>[10]</sup>开发了磷钼酸铵吸附消解后的Cs、阴阳离子双色谱柱净化分离、电感耦合等离子体双质谱(ICP-MS/MS),以此来测定<sup>135</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs同位素比值。较低的<sup>135</sup>Cs和<sup>137</sup>Cs的检出限(0.002 pg/mL相当于0.006 Bq/mL <sup>137</sup>Cs的放射性活度)保证了此方法可以应用到实际环境样品中,从而提出了用<sup>135</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs同位素比值代替<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs活度比值作为新示踪剂,以此来研究福岛核事故释放出的放射性污染的可能性。Zheng等<sup>[9]</sup>把此方法应用到福岛第一核电站西北方向污染最严重(<sup>134</sup>Cs和<sup>137</sup>Cs大气沉

降 $> 3 \times 10^6$  Bq/m<sup>2</sup>)的20~50 km区域采集的枯枝落叶和表层土壤样品上,结果发现其<sup>135</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs同位素比值为0.333~0.343(校正到2011年3月11日),同时估算出了福岛核事故<sup>135</sup>Cs的大气释放量为1.58 kg。

### 1.2 对土壤和植物的影响及示踪

Yang等<sup>[7]</sup>发现,受福岛核事故的影响,事故后日本土壤中的<sup>129</sup>I活度和<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I同位素比值的最高值都比事故前上升了3个数量级。他们还发现,相比线性方程,公式 $\log y = 0.877 \log x + 0.173$ (x为<sup>129</sup>I浓度、y为<sup>131</sup>I浓度,校正到2011年3月11日)能更好地表示受到全球沉降和福岛核事故影响的日本土壤中<sup>129</sup>I和<sup>131</sup>I的相互关系。

Yang等<sup>[8]</sup>大范围调查了福岛核事故后福岛地区枯枝落叶和表层土壤样品,结果发现<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs活度比特征值和<sup>135</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs同位素比特征值分别为 $1.033 \pm 0.006$ 和 $0.334 \pm 0.005$ (校正到2011年3月11日),进一步确认了用<sup>135</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs同位素比示踪日本福岛核事故释放的放射性Cs的有效性。这些<sup>135</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs同位素比特征值与乏燃料(0.377~0.514)、1号反应堆内核燃料的比值(0.396)差异较大(图1),而与2号(0.341)、3号反应堆中的比值(0.350)接近<sup>[11]</sup>。Zheng等<sup>[9]</sup>通过比较<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu与<sup>135</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs同位素比的相互关系,进一步阐明福岛西北地区环境样品中的放射性Cs主要来自2号反应堆,这和日本文部省发布的1、2、3号反应堆释放的<sup>137</sup>Cs总量分别为0.59、14.00 PBq,和0.71 PBq的报告相符。以上研究结果表明<sup>135</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs同位素

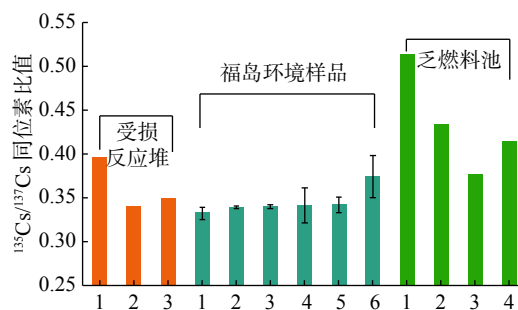


图1 受福岛核事故影响的地表枯枝落叶和土壤样品与日本福岛核事故受损反应堆(堆心1~3号机组)和乏燃料池中的<sup>135</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs同位素比值的对比图

Fig. 1 Comparison of <sup>135</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs isotopic ratios observed in litter and lichen samples affected by the FDNPP accident with those in nuclear fuels in the damaged reactors (Cores 1-3) and in the spent fuel pools

比值可代替<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs活度比值,并被成功地应用于福岛核事故后环境中放射性Cs的来源研究。

Pu的主要同位素(如<sup>239</sup>Pu、<sup>240</sup>Pu、<sup>241</sup>Pu等)都具有极大的化学毒性和放射性。这些同位素不仅具有较长的半衰期,而且容易在肝脏和骨骼等部位累积并难以排出体外。因此,这些核素一旦通过食物链摄入、颗粒物吸入(尤其是核事故中的放射性沾染和吸入)等途径进入体内,将会给人体健康带来长期的潜在危害。福岛核事故后,环境样品中<sup>239+240</sup>Pu的活度没有明显升高,因此很难通过测定<sup>239+240</sup>Pu的活度来判断福岛核事故是否有Pu的泄露<sup>[12-15]</sup>。因为Pu的土壤至植被的迁移系数非常小( $4 \times 10^{-3} \sim 9 \times 10^{-6}$ )<sup>[16-18]</sup>,所以事故前树叶中来自土壤迁移的Pu可以忽略。Zheng等<sup>[13-14]</sup>通过现场采样(图2A)观察了环境样品中Pu的特征值。如图2B所示,福岛核事故污染较严重地区,如森林中枯枝落叶的<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位素比值( $0.330 \pm 0.032$ )、<sup>241</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位素比值( $0.135 \pm 0.012$ )以及<sup>241</sup>Pu/<sup>239+240</sup>Pu活度比值( $108.000 \pm 3.000$ )可以视为福岛核事故泄露

Pu的特征值。这些特征值表明,环境样品中的Pu主要来自反应堆而不是乏燃料(图2C)<sup>[13-14]</sup>。此外,Zheng等<sup>[14]</sup>通过准确测定<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu以及<sup>241</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位素比值,估算出福岛核事故泄露了0.11~0.26 TBq <sup>241</sup>Pu、1.0~2.4 GBq <sup>239+240</sup>Pu和2.9~6.9 GBq <sup>238</sup>Pu。这些释放量比切尔诺贝利核事故中的Pu的释放量低4个数量级。

Shinonaga等<sup>[19]</sup>通过研究发现,福岛第一核电站氢气爆炸后收集的气溶胶样品中<sup>236</sup>U/<sup>238</sup>U同位素比值( $\sim 10^{-6}$ )大幅超过自然界非矿物质环境样本中的比值( $\sim 10^{-14} \sim 10^{-13}$ )<sup>[20]</sup>,Yang等<sup>[21]</sup>发现,除了受到福岛核事故Pu污染的土壤,道路扬尘<sup>[22]</sup>中的<sup>236</sup>U也与<sup>239+240</sup>Pu存在高度相关性,这揭示了福岛核事故有微量的<sup>236</sup>U泄露。

最新的研究结果显示,福岛核事故发生后,在大气气溶胶、土壤、无纺布衣物、植被叶面、河水悬浮颗粒物等环境介质中发现了微米尺寸的各种形状的硅酸盐玻璃状放射性单颗粒<sup>[23-28]</sup>。这些单颗粒的放射活度主要来自放射性Cs,此外还包括U和

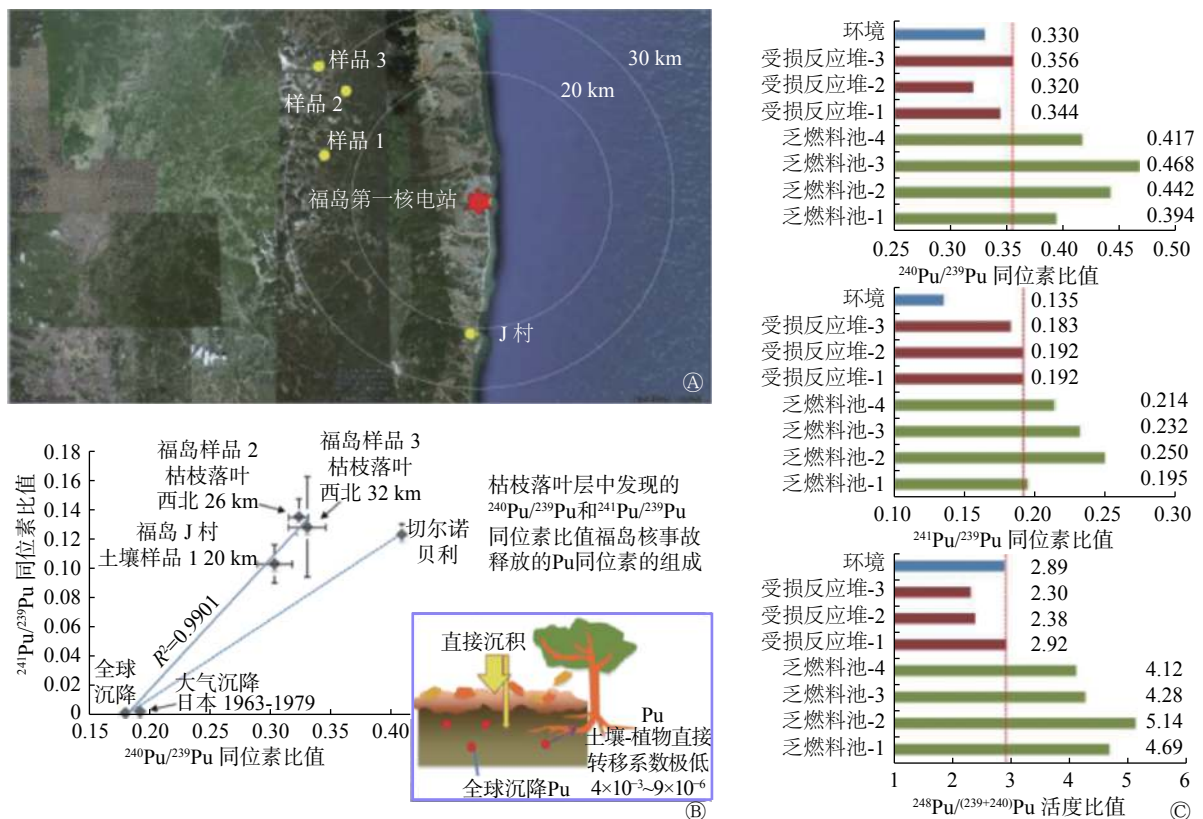


图2 受福岛核事故影响的环境样品中Pu的特征值 图中, A: 采样点分布; B: 受福岛核事故影响的地表枯枝落叶中Pu的特征值与切尔诺贝利核事故以及全球大气沉降Pu的特征值的比较; C: 受福岛核事故影响的地表枯枝落叶中Pu的特征值与日本福岛核事故受损反应堆(堆心1~3号机组)和乏燃料池中Pu的特征值的比较。

Fig. 2 Isotopic composition of the FDNPP source Pu in environmental samples in Fukushima Prefecture

其他的核裂变产物( $^{140}\text{Ba}$ 、 $^{129\text{m}}\text{Te}$ 、 $^{131}\text{I}$ )等。Chen 等<sup>[29]</sup>对放射性单颗粒的分离、表征、物化性质、可能形成机理进行了初步的总结。由于堆芯内部的高辐射和事故导致的内部混乱,直到2017年7月才有第1个机器人成功地进入3号反应堆并传回图像。鉴于技术限制的原因,目前对放射性单颗粒的形成机制还有待进一步的研究。研究环境中的放射性单颗粒对福岛核事故具体过程的还原、堆芯内部目前状态的评估、后期堆芯拆除的前期准备、放射性单颗粒对环境生态的影响和人体内辐射剂量的评估等都有重要意义。

### 1.3 对海洋的影响

福岛核事故向大气环境释放了15~20 PBq $^{137}\text{Cs}$ ,其中约70%最后都沉积到海洋环境中。另外,Tsumune 等<sup>[30]</sup>的估算结果是福岛核事故直接排到海洋的 $^{137}\text{Cs}$ 为(3.6±0.7)PBq。通过表面洋流、中央模态水和亚热带模态水形成的传输,福岛核事故释放的 $^{137}\text{Cs}$ 已扩散到整个北太平洋<sup>[31]</sup>。相对于放射性Cs的大量释放,Pu的释放量极低,但Pu对海洋环境的可能污染是公众和科学界关注的重大环境问题。事故发生后,研究人员对福岛沿岸西北太平洋海域的海水和海洋沉积物进行了数年的连续调查研究,结果表明,无论是 $^{239+240}\text{Pu}$ 放射性活度还是Pu同位素组成( $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 以及 $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位素比

值)都没有超过事故前的背景值水平<sup>[15,18]</sup>,这说明福岛核事故释放的Pu没有对海洋环境产生可观测的影响。福岛核事故对海洋及海洋生物的远期影响还有待长期的研究。

## 2 食品安全

核泄露后人体健康可能会因为内外辐射而受到影响。内辐射主要来源于呼吸暴露、皮肤暴露和食品摄入。核事故发生后的前两年,人体摄入的放射性物质主要来源于绿叶植被上的沉降,而不是来源于根茎类食品;另外一个主要途径则是来自肉类和奶制品的摄入,因为牲畜可能食用了被污染的饲料<sup>[2]</sup>。福岛核事故后,日本厚生劳动省根据日本原子力规制委员会、国际放射防护委员会和国际原子能机构等推荐的以每年最高摄入量5 mSv、甲状腺等效剂量50 mSv的食品安全摄入量限值为基准,制定了食品中放射性物质暂定限制(表1、表2)。2012年4月1日福岛核事故1年后,现行的食品中放射性物质的基准值开始实施(表1)<sup>[32]</sup>。考虑到食品的摄取量和可能含放射性物质的食品比例等因素的影响,因此不能仅通过数据比较进行衡量。国际食品法典委员会、欧盟和日本对来自食品的辐射剂量上限值的设定同为1 mSv/年。随后日本厚生劳动省进行了前所未有的食品安全检测。随着放化检测仪

表1 各国和各国际组织关于食品中放射性铯相关指标的规定

Table 1 Derived intervention levels for radiocesium in foods adopted by the United States, the European Union, the Codex Alimentarius Commission and Japan

核素	食品类型	国际食品法典委员会基准值	美国基准值	欧盟基准值	日本暂定基准值	日本现在基准值
放射性铯(Bq/kg)	饮用水	-	1200	1000	200	10
	牛奶	-	1200	1000	200	50
	婴幼儿食品	1000	1200	400	500	50
	一般食品	1000	1200	1250	500	100

注:表中,“-”表示无此项数据。

表2 各国和各国际组织关于辐射剂量上限等的相关规定

Table 2 Relevant regulation on radiation dosage upper limit adopted by the United States, the European Union, the Codex Alimentarius Commission and Japan

不同组织或国家	辐射剂量上限值/年(mSv)	含放射性物质食品比例的假定值(%)
国际食品法典委员会	1	10
美国	5	30
欧盟	1	10
日本暂定值	5	50
日本现在值	1	50

器的增多,检测的食品样本数量逐年递增(图3)。以福岛县为例,事故发生后第1年检测的食品样本为21 549个,截至2019年2月26日共计检测了271 654个样本(图3)<sup>[33]</sup>。日本政府为减少在生活空间中受到的辐射量而实施了清除放射性物质或土覆盖等作业。日本农林水产省、地方自治体和生产者通过饲养管理、使用钾肥等措施降低食品中放射性物质的活度<sup>[34]</sup>。基于这些有效的措施以及半衰期较短、比活度较高的<sup>134</sup>Cs和<sup>131</sup>I能够快速衰变等原因,目前大部分食品中放射性物质的活度均低于基准值,放射性Cs的活度大幅降低,超过基准值的样品数量逐年递减。从2015年起截至2019年2月26日,超过基准值的样品占比均低于1%(图3)<sup>[33]</sup>。福岛核事故污染最严重的地区约75%被森林覆盖,这些地区很难进行除污<sup>[35-36]</sup>。但是,森林具有富集放射性物质的属性,放射性物质在森林系统的生物半衰期较长,并被不断的排入河流等其他生态系统<sup>[35-38]</sup>。此外,由于动植物的某些特殊属性导致其被污染的水平较高,比如蘑菇富集Cs,野猪、野鹿、黑熊等主要以蘑菇或其他易富集Cs的植被为食<sup>[1]</sup>。目前,在福岛地区的蘑菇、野生动物肉制品、野生蔬菜、淡水鱼和一些咸水鱼等非人工饲养的食品中,放射性Cs的活度仍然超过基准值。需要长期检测这些食品<sup>[33]</sup>。基于检测的食品中放射性活度数据和日本人的饮食结构,对人体辐射剂量进行评估,结果显示其低于最高限值(1 mSv/年)<sup>[39-42]</sup>。总体来说,福岛核事故后,日本采取的表层土壤除污、相应法规制定和实施、农产品生产规范和上市前检测等措施取得了积极效果,

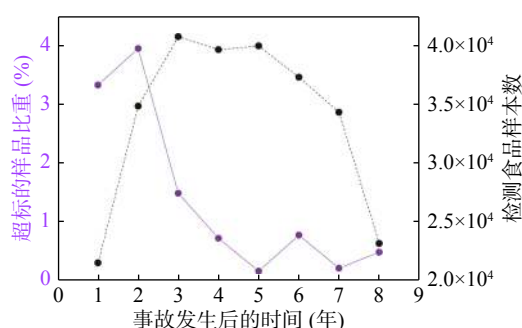


图3 日本福岛县在福岛核事故后实施的放射性物质检测食品样本数(左)和超标的样品比重(右)

Fig. 3 After the FDNPP accident, the food numbers tested in Fukushima Prefecture (left) and the proportion of food numbers exceeding the regulation limits (% , right)

具有借鉴意义。

### 3 小结与展望

日本福岛核事故发生后,灾害重建和复兴取得一定的积极效果。在放射性污染物除污、辐射剂量评估、福岛核电站退役解体和食品安全检测等方面仍然有很长的路要走。基于经济腾飞、结构转型和应对全球气候变化的挑战,中国核电事业得到了迅猛发展,但在推进核电发展的进程中,笔者认为以下几点值得借鉴和思考:(1)系统地建立我国放射性核素全国谱图,以便应急之需;(2)开发新的源解析的放射性同位素示踪技术;(3)开发放射性核素现场和实验室快速检测的新方法和仪器设备;(4)应尽快建立健全我国关于放射性物质的食品安全标准和辐射安全相关标准体系。

**利益冲突** 本研究由署名作者按以下贡献声明独立开展,不涉及任何利益冲突。

**作者贡献声明** 杨国胜负责资料的查询和论文撰写;胡珺负责数据的整理;郑建负责论文的审阅和修改。

### 参 考 文 献

- [1] Merz S, Steinhauser G, Hamada N. Anthropogenic radionuclides in Japanese food: environmental and legal implications[J]. *Environ Sci Technol*, 2013, 47(3): 1248-1256. DOI: 10.1021/es3037498.
  - [2] Steinhauser G, Brandl A, Johnson TE. Comparison of the Chernobyl and Fukushima nuclear accidents: a review of the environmental impacts[J]. *Sci Total Environ*, 2014, 470-471: 800-817. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2013.10.029.
  - [3] Merz S, Shozugawa K, Steinhauser G. Analysis of Japanese radionuclide monitoring data of food before and after the Fukushima Nuclear Accident[J]. *Environ Sci Technol*, 2015, 49(5): 2875-2885. DOI: 10.1021/es5057648.
  - [4] Aoyama M, Kajino M, Tanaka TY, et al. <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in the North Pacific Ocean derived from the March 2011 TEPCO Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Japan. Part two: estimation of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs inventories in the North Pacific Ocean[J]. *JOceanogr*, 2016, 72(1): 67-76. DOI: 10.1007/s10872-015-0332-2.
  - [5] 欧阳洁, 杨国胜, 马玲玲, 等. 大气污染物中人工放射性铯-钡-铀同位素示踪技术的发展与应用[J]. *化学进展*, 2017, 29(12): 1446-1461. DOI: 10.7536/PC170744.
- Ouyang J, Yang GS, Ma LL, et al. Development and application of fingerprints of radioactive cesium-plutonium-uranium isotopes as tracers in air pollution[J]. *Prog Chem*, 2017, 29(12):

- 1446–1461. DOI: [10.7536/PC170744](https://doi.org/10.7536/PC170744).
- [6] Hou XL, Roos P. Critical comparison of radiometric and mass spectrometric methods for the determination of radionuclides in environmental, biological and nuclear waste samples[J]. *Anal Chim Acta*, 2008, 608(2): 105–139. DOI: [10.1016/j.aca.2007.12.012](https://doi.org/10.1016/j.aca.2007.12.012).
- [7] Yang GS, Tazoe H, Yamada M. Can  $^{129}\text{I}$  track  $^{135}\text{Cs}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ , and  $^{240}\text{Pu}$  apart from  $^{131}\text{I}$  in soil samples from Fukushima Prefecture, Japan?[J/OL]. *Sci Rep*, 2017, 7(1): 15369[2019-02-18]. <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/29133826>. DOI: [10.1038/s41598-017-15714-w](https://doi.org/10.1038/s41598-017-15714-w).
- [8] Yang GS, Tazoe H, Yamada M.  $^{135}\text{Cs}$  activity and  $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  atom ratio in environmental samples before and after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident[J/OL]. *Sci Rep*, 2016, 6: 24119[2019-02-18]. <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/27052481>. DOI: [10.1038/srep24119](https://doi.org/10.1038/srep24119).
- [9] Zheng J, Tagami K, Bu WT, et al.  $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  isotopic ratio as a new tracer of radiocesium released from the Fukushima nuclear accident[J]. *Environ Sci Technol*, 2014, 48(10): 5433–5438. DOI: [10.1021/es500403h](https://doi.org/10.1021/es500403h).
- [10] Zheng J, Bu WT, Tagami K, et al. Determination of  $^{135}\text{Cs}$  and  $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  atomic ratio in environmental samples by combining ammonium molybdophosphate (AMP)-selective Cs adsorption and ion-exchange chromatographic separation to triple-quadrupole inductively coupled plasma-mass spectrometry[J]. *Anal Chem*, 2014, 86(14): 7103–7110. DOI: [10.1021/ac501712m](https://doi.org/10.1021/ac501712m).
- [11] Nishihara K, Iwamoto H, Suyama K. Estimation of fuel compositions in Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant[R]. JAEA-Data/Code 2012-018, Ibaraki: Japan Atomic Energy Agency, 2012.
- [12] Yang GS, Zheng J, Tagami K, et al. Plutonium concentration and isotopic ratio in soil samples from central-eastern Japan collected around the 1970s[J/OL]. *Sci Rep*, 2015, 5: 9636[2019-02-18]. <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/25881009>. DOI: [10.1038/srep09636](https://doi.org/10.1038/srep09636).
- [13] Zheng J, Tagami K, Watanabe Y, et al. Isotopic evidence of plutonium release into the environment from the Fukushima DNPP accident[J/OL]. *Sci Rep*, 2012, 2: 304[2019-02-18]. <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/pmc/articles/PMC3297203/?report=abstract>. DOI: [10.1038/srep00304](https://doi.org/10.1038/srep00304).
- [14] Zheng J, Tagami K, Uchida S. Release of plutonium isotopes into the environment from the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident: what is known and what needs to be known[J]. *Environ Sci Technol*, 2013, 47(17): 9584–9595. DOI: [10.1021/es402212v](https://doi.org/10.1021/es402212v).
- [15] Bu WT, Fukuda M, Zheng J, et al. Release of Pu isotopes from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident to the marine environment was negligible[J]. *Environ Sci Technol*, 2014, 48(16): 9070–9078. DOI: [10.1021/es502480y](https://doi.org/10.1021/es502480y).
- [16] IAEA (International Atomic Energy Agency). Handbook of parameter values for the prediction of radio-nuclide transfer in terrestrial and freshwater environments[R]. IAEA-trs-472, Vienna: IAEA, 2009.
- [17] Ni YY, Wang ZT, Zheng J, et al. The transfer of fallout plutonium from paddy soil to rice: a field study in Japan[J]. *J Environ Radioact*, 2019, 196: 22–28. DOI: [10.1016/j.jenvrad.2018.10.010](https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.10.010).
- [18] Men W, Zheng J, Wang H, et al. Pu isotopes in the seawater off Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant site within two months after the severe nuclear accident[J]. *Environ Pollut*, 2019, 246: 303–310. DOI: [10.1016/j.envpol.2018.12.007](https://doi.org/10.1016/j.envpol.2018.12.007).
- [19] Shinonaga T, Steier P, Lagos M, et al. Airborne plutonium and non-natural uranium from the Fukushima DNPP found at 120 km distance a few days after reactor hydrogen explosions[J]. *Environ Sci Technol*, 2014, 48(7): 3808–3814. DOI: [10.1021/es404961w](https://doi.org/10.1021/es404961w).
- [20] Bu WT, Zheng J, Ketterer ME, et al. Development and application of mass spectrometric techniques for ultra-trace determination of  $^{236}\text{U}$  in environmental samples—a review[J]. *Anal Chim Acta*, 2017, 995: 1–20. DOI: [10.1016/j.aca.2017.09.029](https://doi.org/10.1016/j.aca.2017.09.029).
- [21] Yang GS, Tazoe H, Hayano K, et al. Isotopic compositions of  $^{236}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ , and  $^{240}\text{Pu}$  in soil contaminated by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident[J/OL]. *Sci Rep*, 2017, 7, 13619[2019-02-18]. <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pmc/articles/PMC5648813/>. DOI: [10.1038/s41598-017-13998-6](https://doi.org/10.1038/s41598-017-13998-6).
- [22] Sakaguchi A, Steier P, Takahashi Y, et al. Isotopic compositions of  $^{236}\text{U}$  and Pu isotopes in “black substances” collected from roadsides in Fukushima Prefecture: fallout from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident[J]. *Environ Sci Technol*, 2014, 48(7): 3691–3697. DOI: [10.1021/es405294s](https://doi.org/10.1021/es405294s).
- [23] Adachi K, Kajino M, Zaizen Y, et al. Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident[J/OL]. *Sci Rep*, 2013, 3: 2554[2019-02-18]. <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/23989894>. DOI: [10.1038/srep02554](https://doi.org/10.1038/srep02554).
- [24] Satou Y, Sueki K, Sasa K, et al. Analysis of two forms of radioactive particles emitted during the early stages of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station accident[J]. *Geochem J*, 2018, 52(2): 137–143. DOI: [10.2343/geochemj.2.0514](https://doi.org/10.2343/geochemj.2.0514).
- [25] Higaki S, Kurihara Y, Yoshida H, et al. Discovery of non-spherical heterogeneous radiocesium-bearing particles not derived from unit 1 of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, in residences five years after the accident[J]. *J Environ Radioact*, 2017, 177: 65–70. DOI: [10.1016/j.jenvrad.2017.06.006](https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.06.006).
- [26] Kogure T, Yamaguchi N, Segawa H, et al. Constituent elements and their distribution in the radioactive Cs-bearing silicate glass microparticles released from Fukushima nuclear plant[J].

- Microscopy*, 2016, 65(5): 451–459. DOI: [10.1093/jmicro/dfw030](https://doi.org/10.1093/jmicro/dfw030).
- [27] Miura H, Kurihara Y, Sakaguchi A, et al. Discovery of radiocesium-bearing microparticles in river water and their influence on the solid-water distribution coefficient ( $K_d$ ) of radiocesium in the Kuchibuto River in Fukushima[J]. *Geochem J*, 2018, 52(2): 145–154. DOI: [10.2343/geochemj.2.0517](https://doi.org/10.2343/geochemj.2.0517).
- [28] Yamaguchi N, Mitome M, Kotone AH, et al. Internal structure of cesium-bearing radioactive microparticles released from Fukushima Nuclear Power Plant[J/OL]. *Sci Rep*, 2016, 6: 20548[2019-02-18]. <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/26838055>. DOI: [10.1038/srep20548](https://doi.org/10.1038/srep20548).
- [29] Chen F, Hu J, Takahashi Y, et al. Application of synchrotron radiation and other techniques in analysis of radioactive microparticles emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident—a review[J]. *J Environ Radioact*, 2019, 196: 29–39. DOI: [10.1016/j.jenvrad.2018.10.013](https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.10.013).
- [30] Tsumune D, Tsubono T, Aoyama M, et al. One-year, regional-scale simulation of  $^{137}\text{Cs}$  radioactivity in the ocean following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident[J]. *Biogeosciences*, 2013, 10(8): 5601–5617. DOI: [10.5194/bg-10-5601-2013](https://doi.org/10.5194/bg-10-5601-2013).
- [31] Kumamoto Y, Aoyama M, Hamajima Y, et al. Radiocesium in the western subarctic area of the North Pacific ocean, Bering Sea, and Arctic Ocean in 2015 and 2017[J]. *Polar Sci*, DOI: [10.1016/j.polar.2018.08.007](https://doi.org/10.1016/j.polar.2018.08.007).
- [32] Terada H, Yamaguchi I, Shimura T, et al. Regulation values and current situation of radioactive materials in food[J/OL]. *J Natl Inst Public Health*, 2018, 67(1): 21–23[2019-02-18]. <https://www.niph.go.jp/journal/data/67-1/201867010004.pdf>. DOI: [10.20683/jniph.67.1\\_21](https://doi.org/10.20683/jniph.67.1_21).
- [33] Ministry of Health, Labour and Welfare. Levels of radioactive contaminants in foods tested in respective prefectures [EB/OL]. [2019-02-18]. [http://www.mhlw.go.jp/english/topics/2011eq/index\\_food\\_radioactive.html](http://www.mhlw.go.jp/english/topics/2011eq/index_food_radioactive.html).
- [34] Fukushima Prefectural Government Japan. Fukushima Revitalization Station[EB/OL]. [2019-02-18]. <http://www.pref.fukushima.lg.jp/site/portal-zhc>.
- [35] Takahashi J, Onda Y, Hihara D, et al. Six-year monitoring of the vertical distribution of radiocesium in three forest soils after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident[J]. *J Environ Radioact*, 2018, 192: 172–180. DOI: [10.1016/j.jenvrad.2018.06.015](https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.06.015).
- [36] Yoschenko V, Ohkubo T, Kashparov V. Radioactive contaminated forests in Fukushima and Chernobyl[J]. *J For Res*, 2018, 23(1): 3–14. DOI: [10.1080/13416979.2017.1356681](https://doi.org/10.1080/13416979.2017.1356681).
- [37] Matsunaga T, Nakanishi T, Atarashi-Andoh M, et al. Year-round variations in the fluvial transport load of particulate  $^{137}\text{Cs}$  in a forested catchment affected by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident[J]. *J Radioanal Nucl Chem*, 2016, 310(2): 679–693. DOI: [10.1007/s10967-016-4840-3](https://doi.org/10.1007/s10967-016-4840-3).
- [38] Iwagami S, Onda Y, Tsujimura M, et al. Contribution of radioactive  $^{137}\text{Cs}$  discharge by suspended sediment, coarse organic matter, and dissolved fraction from a headwater catchment in Fukushima after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident[J]. *J Environ Radioact*, 2017, 166: 466–474. DOI: [10.1016/j.jenvrad.2016.07.025](https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2016.07.025).
- [39] Yamaguchi I, Terada H, Kunugita N, et al. Dose estimation from food intake due to the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident[J]. *J Natl Inst Public Health*, 2013, 62(2): 138–143.
- [40] Harada KH, Fujii Y, Adachi A, et al. Dietary intake of radiocesium in adult residents in Fukushima Prefecture and neighboring regions after the Fukushima Nuclear Power Plant accident: 24-h Food-duplicate survey in December 2011[J]. *Environ Sci Technol*, 2013, 47(6): 2520–2526. DOI: [10.1021/es304128t](https://doi.org/10.1021/es304128t).
- [41] Sato O, Nonaka S, Tada JI. Intake of radioactive materials as assessed by the duplicate diet method in Fukushima[J]. *J Radiol Protect*, 2013, 33(4): 823–838. DOI: [10.1088/0952-4746/33/4/823](https://doi.org/10.1088/0952-4746/33/4/823).
- [42] Tsutsumi T, Nabeshi H, Ikarashi A, et al. Estimation of the committed effective dose of radioactive cesium and potassium by the market basket method[J]. *Food Hyg Saf Sci*, 2013, 54(1): 7–13. DOI: [10.3358/shokueishi.54.7](https://doi.org/10.3358/shokueishi.54.7).

(收稿日期: 2019-02-20)