

北極海—太平洋における放射性ヨウ素 I-129 の分布 — 加速器質量分析法による人為起源の長寿命放射性核種の分析 —

永井 尚生*

1. はじめに

ヨウ素は単核種元素であり安定同位体は ^{127}I のみであるが、環境中には長半減期放射性核種 ^{129}I (半減期 $1.57 \times 10^7 \text{y}$) が存在する。 ^{129}I は消滅核種と呼ばれる核種であり、太陽系 (地球) 生成時には存在していたが、その後現在までに当初存在していた ^{129}I は全て壊変して消滅している。従って、環境中に現存する ^{129}I は地球誕生後に天然起源または人為起源により生成したものである。天然起源は ^{238}U の自発核分裂および宇宙線と大気中 Xe の核反応による生成、人為起源は ^{235}U の誘導核分裂、即ち原子力に由来する。環境中 (大気・海洋・土壌) の存在量のうち天然起源は全体の 1.5% 以下に過ぎず、大部分は人為起源である。人為起源としては、主に 1950–60 年代に行われた大気圏核実験の寄与 (<1.7%)、ローカルには、原子力発電所事故 (1986 年チェルノブイリ、2011 年福島) の寄与 (<0.04%) もあるが、存在量の大部分は、核燃料再処理工場からの放出に由来する。

2. 核燃料再処理工場からの ^{129}I 放出

核燃料再処理工場からの ^{129}I 放出は 1950 年頃から始まり、1990 年代に急増した。その結果、現在の環境中存在量 41 TBq (2010–2013 頃) の 97% 以上を占めると推定されている (Povinec et al. 2013)。核燃料再処理工場からの放出率は $1.5\text{--}2 \text{ TBq y}^{-1}$ (López-Gutiérrez et al. 2004) 程度で継続していると推定されるので、 ^{129}I 存在量は現在も増加している。主要な放出源は北西ヨー

ロッパの Sellafield (U.K.) と La Hague (France) に設置されている核燃料再処理工場であり、 ^{129}I の大部分は海洋に直接放出され、大気への放出量は 1% 以下と推定される。大気へ放出された ^{129}I は主に北半球に輸送され、核実験起源成分と共に地表・海面へ降下し、北太平洋など直接放出の影響を受けない海域の海水中 ^{129}I 濃度レベルを上昇させている。

3. 海洋表層における ^{129}I の分布

北大西洋では、Sellafield からアイリッシュ海に、La Hague からイギリス海峡に ^{129}I が放出されているため、北西ヨーロッパ沿岸 (近海) においては表層海水中の ^{129}I 濃度は $10^{10}\text{--}10^{12} \text{ atoms L}^{-1}$ と極めて高く、その他の海域においても $10^8 \text{ atoms L}^{-1}$ 以上の海域が多い (He et al. 2013)。北極海は北大西洋からの ^{129}I 輸送により、ヨーロッパ側で $10^9\text{--}10^{10} \text{ atoms L}^{-1}$ 、カナダ側で $10^8 \text{ atoms L}^{-1}$ 程度と北大西洋に次いで高い ^{129}I 濃度レベルにある。北太平洋では主にグローバルフォールアウトに由来する ^{129}I が分布し、濃度は $< 2 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ と低い。南太平洋では ^{129}I の放出源がほとんど北半球であるため ^{129}I 濃度はさらに低く $< 1 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ (He et al. 2013) であるが、インド洋は北太平洋と同様で $< 2 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ である。なお、局所的には、福島第一原子力発電所付近の海域において、汚染水流出の影響で原子力発電所事故直後には $> 10^9 \text{ atoms L}^{-1}$ の ^{129}I 濃度が観測され、その後近傍数 km では $10^8 \text{ atoms L}^{-1}$

* 日本大学文理学部教授

程度が観測されているが、現在は北太平洋の他の海域の表層では汚染水流出の影響は見られない。

4. ^{129}I の輸送

海洋においてヨウ素が保存性成分であるので、 ^{129}I は ^{137}Cs と同様に海水のトレーサーとしての利用が可能である。特に核燃料再処理工場から海洋への放出については、ポイントソースであること、また放出量とその時間変化も既知であることにより、トレーサーとして有用性が高いと考えられる (Raisbeck et al. 1995)。核燃料再処理工場から海洋への放出は既に 1950 年頃から行われ 1990 年頃から放出量が急増しているが、1990 年頃までは ^{129}I のような長半減期核種の放射能測定は一般的には困難であり、海水のような低濃度試料については不可能であった。このような状況において、この時期には 1980 年代に急速に発展した加速器質量分析 (AMS: Accelerator mass spectrometry) により ^{14}C などの長半減期核種の検出感度が飛躍的に向上し、 ^{129}I についても AMS 測定が可能となった。これに加え海水中 ^{129}I 濃度が増大して分析が容易になったこともあり、AMS の応用研究として、主にヨーロッパ・カナダのグループによ

り大西洋－北極海の海水中 ^{129}I の測定が盛んに行われたためこの海域の海水中 ^{129}I のデータは多数存在する (Smith et al. 1998, Beasley et al. 1998, Buraglio et al. 1999, Smith et al. 1999, Alfimov et al. 2004, Smith et al. 2011)。これらの結果から、北大西洋から北極海への ^{129}I の輸送経路が推定されている (図 1 (a))。アイリッシュ海 (Sellafield から) および、イギリス海峡 (La Hague から) へ放出された ^{129}I は、北海で合流しノルウェー海で分岐してフラム海峡またはバレンツ海、カラ海から北極海へ輸送される。北極海においては、ユーラシア海盆 (ナンセン海盆・アムンゼン海盆) を循環し、一部は更にマカロフ海盆、カナダ海盆を循環し、最終的にはフラム海峡を通り大西洋へ戻る。また、海水についてはネアズ海峡を通りバフィン湾への経路が存在するが (Rudels et al. 2004)、 ^{129}I の輸送量は少なく、さらにベーリング海峡を通りベーリング海への ^{129}I の輸送は海水の流れと逆方向のためほとんどないと考えられている。

ここでは、2012-2017 の北太平洋－カナダ海盆南部の海水中 ^{129}I 濃度分布を紹介し、北西ヨーロッパの核燃料再処理工場から海洋へ放出された

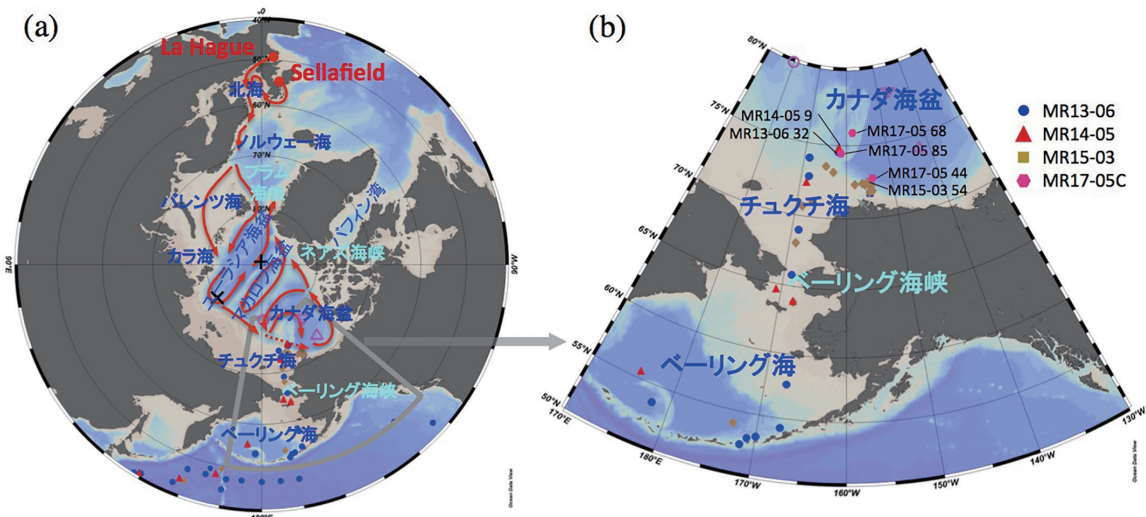


図 1. (a) 大西洋－北極海における ^{129}I の輸送経路
 KH-12-4 (2012.8-10) における採水点 ●
 参考文献の採水点 △: sta.1, ▽: sta.2, +: sta.4, ×: sta.7 (Smith et al. 2011)
 ○: メンデレエフ海嶺付近 (Karcher et al. 2012)
 (b) MR13-06 (2013.9-10), MR14-05 (2014.9-10), MR15-03 (2015.9-10), MR17-05C (2017.9-10)
 における採水点

^{129}I の影響について検討する.

5. 海水中 ^{129}I の分析

1) 海水の採取と ^{129}I の分析

海水試料は、白鳳丸 KH-12-4 次航海、東京－バンクーバー間の北太平洋において大量採水器 (250Lx4) および船底からポンプを使用して採取した 0-600 m の海水 1L, JAMSTEC みらい航海 MR13-06, MR14-05, MR15-03, MR17-05C において、北太平洋－カナダ海盆南部において CTD-CMS, 船底からポンプ, バケツを使用して採取した 0-800 m (2000 m) の海水 0.2-1L を用いた (図 1).

陸上の実験室に持ち帰った海水試料を口過 (0.45 μm メンブランフィルター) した後, ヨウ素担体 (1 mg I) を加え, 溶媒抽出法によりヨウ素の精製・回収を行い ^{129}I -AMS 試料を調製し (Nagai et al. 2015), 東大総合研究博物館 MALT において ^{129}I -AMS 測定を行った (Matsuzaki et al. 2007).

2) 加速器質量分析 (AMS)

現在, 海水中 ^{129}I の分析は全て AMS により行われている. AMS は元来 ^{14}C など誘導放射性核種 (長半減期放射性核種) の高感度測定法として 1980 年前後から開発された加速器を用いる質量分析法である. 長半減期放射性核種のうち, 1000 年程度より長い半減期の核種は, 壊変測定より原子数測定即ち質量分析の方が高感度となるが, 環境試料などは安定核種に対して極度に低い存在比 ($< 10^{-10}$) であり, 通常の質量分析では様々な妨害により測定できない. これに対し加速器を用いることにより, 安定核種に対して極度に低い存在比を持つ長半減期放射性核種に高いエネルギーを与え, 通常の質量分析において妨害となる同重体・分子イオン・多価イオン・同位体・散乱イオン等の妨害を除去した測定を行うことが可能となる (松崎 2007). 現在日本国内に AMS 施設は 10ヶ所程度存在し, そのうち数カ所で ^{129}I の

AMS 測定が行われている.

^{129}I の AMS 測定には 1 mg 程度の I が必要であるので, 無担体の分析を行う場合には, 海水中の I 濃度約 60 ppb から見積もると 20L 程度海水が必要となるため, あまり実用的ではない. そこで通常は担体を加えて ^{129}I の分析を行うが, 担体として用いる市販の試薬の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は 2×10^{-13} 程度, 低 ^{129}I 濃度の試薬の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は 2×10^{-14} 程度と, AMS 装置としての検出限界 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} \sim 10^{-15}$ より高いため, 用いる試薬の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ が定量限界を決めることになる. ちなみに北太平洋表層程度の ^{129}I 濃度 $1 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ の海水 1 L に担体 1 mg を加えると $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は 2×10^{-12} 程度となるため, 市販の試薬でも ^{129}I の分析は可能である.

6. 表層の ^{129}I 濃度分布

北太平洋 (北部 47°N 付近), ベーリング海, チュクチ海, 北極海 (カナダ海盆南部) における表層の ^{129}I 濃度分布 (2012-2015) を図 2 に, 平均値及び範囲を図 3 (a) に示す. 北部北太平洋, ベーリング海, チュクチ海の表層水中平均 ^{129}I 濃度に有意の差はなく, これまで北太平洋で報告されている値 $1.5-1.8 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ (Povinec et al. 2013, Nagai et al. 2015, Suzuki et al. 2013) と一致した. また, この海域全体の ^{129}I 濃度平均値は 2013-2015 の間に変動していなかった (図 3 (b)).

チュクチ海の水深 60 m を越えたカナダ海盆南部との境界において ^{129}I 濃度は 3 倍前後に, 更にカナダ海盆南部では約 10 倍に上昇している. こ

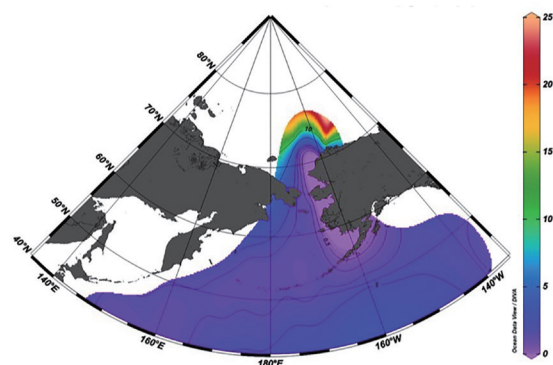


図 2. 北部北太平洋－ベーリング海－チュクチ海－カナダ海盆南部における表層の ^{129}I 濃度分布

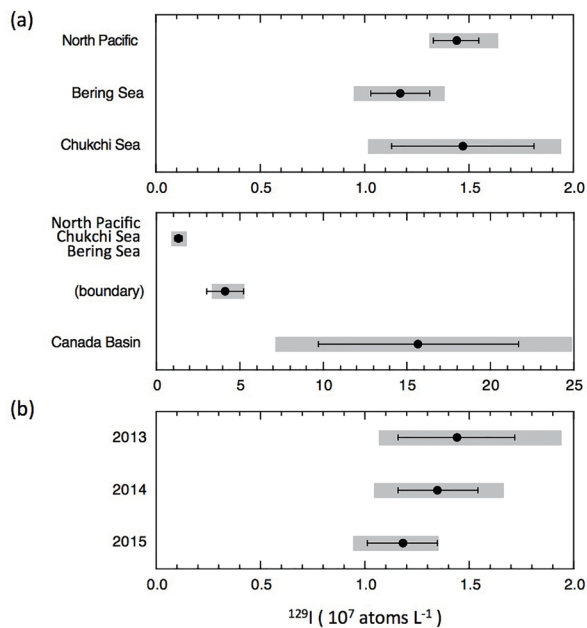


図 3. 北部北太平洋－ベーリング海－チュクチ海－カナダ海盆南部における表層の ^{129}I 濃度
 (a) 北太平洋－カナダ海盆南部における ^{129}I 濃度の平均と範囲 (2013–2015)
 (b) 2013–2015 における ^{129}I 濃度の平均と範囲 (チュクチ海・ベーリング海・北太平洋)
 ●— 平均 ■ 範囲

の高い ^{129}I 濃度は大西洋水 (Atlantic Water [AW]) から生成した海水 (結氷時に包有したブラインに高濃度 ^{129}I が含まれている (Aldahan et al. 2007)) の融解に由来すると考えられるが、チュクチ海には影響が及んでいない。これは、ベーリング海峡における海水の輸送の収支から説明される。ベーリング海峡においては、ベーリング海 (北太平洋) からチュクチ海への海水輸送が卓越し、輸送量は平均 0.8 Sv ($10^6 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$) (Woodgate et al.

2006) であり、輸送される海水は ^{129}I 濃度が低い太平洋水 (Pacific Water [PW]) であるため、チュクチ海はほぼ太平洋水で満たされていることを示している。

7. ^{129}I 濃度の鉛直分布

1) 北部北太平洋の鉛直分布

2012 年 北部北太平洋の 4 測点 ($47\text{--}51^\circ\text{N}$, $160^\circ\text{E}\text{--}160^\circ\text{W}$) の ^{129}I 濃度鉛直分布 (図 4) は相互に類似しており、 ^{129}I 濃度は表層からほぼ直線的に減少し、600 m では表層の $1/5\text{--}1/10$ ($0.2\text{--}0.4 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$) であった。この鉛直分布は原子力発電所事故前 2008 年の KNOT ($44^\circ\text{N}155^\circ\text{E}$) の鉛直分布 (Suzuki et al. 2013) に類似しており、事故による ^{129}I 濃度の増加は観察されなかった。従ってこれらの鉛直分布が現在の北部北太平洋における典型的な ^{129}I 濃度鉛直分布であると考えられる。

2) カナダ海盆南部における鉛直分布

カナダ海盆南部 2013–2015 年における ^{129}I 濃度・塩分・ポテンシャル水温の鉛直分布 (0–800 m) を図 5 に示す。塩分・ポテンシャル水温の鉛直分布は相互に類似しており、この海域における鉛直層構造に対応している。海水は 0–25 m に海水の融解により低塩分 ($S=25\text{--}30$) の表層 (混合層)、100 m 付近にはチュクチ海から流入した太平洋水 ($S \sim 32.5$)、300 m 以深には

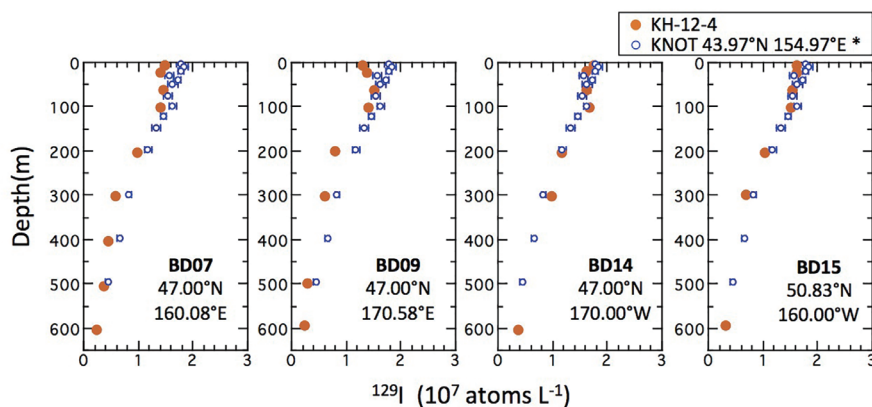


図 4. 北太平洋 47°N 付近の ^{129}I 濃度の鉛直分布 (KH-12-4)
 * (Suzuki et al. 2013)

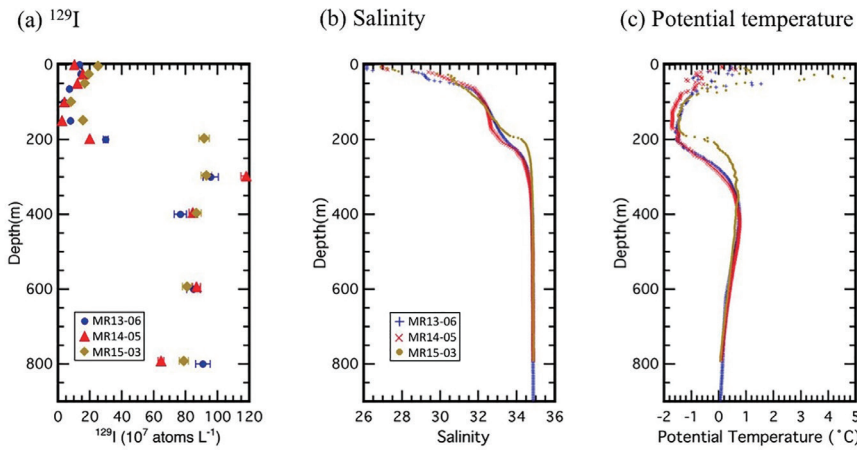


図 5. カナダ海盆南部 (MR13-06_32, MR14-05_9, MR15-03_54) における鉛直分布
(a) ^{129}I 濃度, (b) 塩分, (c) ポテンシャル水温

大西洋水 ($S \sim 34.8$), その間の2つの塩分躍層という鉛直層構造を示す (Peralta-Ferriz and Woodgate 2013). また, それぞれの海水の起源毎に ^{129}I 濃度は異なり, 表層 0-25 m は高濃度の大西洋水由来の海水の融解の寄与 (Aldahan et al. 2007) によりやや高く $10\text{--}20 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$, 水深 100-150 m 付近では太平洋水 ($\sim 1.5 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$) の寄与により極小値 $< 10 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$, 300-800 m では大西洋水の存在により高濃度 $65\text{--}120 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$, を示し海水の鉛直層構造に対応した ^{129}I 濃度の鉛直層構造が観

測された (図 5).

KH-12-4, MR13-06 における ^{129}I 濃度の鉛直分布と表層水 ^{129}I 濃度から描いた北太平洋 47°N 付近の ^{129}I 濃度断面, 北部北太平洋-カナダ海盆南部の ^{129}I 濃度断面を図 6 に示す. 北太平洋から低 ^{129}I 濃度の太平洋水がベーリング海峡とその前後の陸棚 (ベーリング海, チュクチ海) を満たし, カナダ海盆南部ポフォート海に流入し, 高 ^{129}I 濃度の大西洋水に蓋をしている形が示されている.

次に ^{129}I 濃度と塩分の関係を図 7 に示す. 大西洋水 400-800 m は塩分一定 ($S=34.81\text{--}34.87$) 高

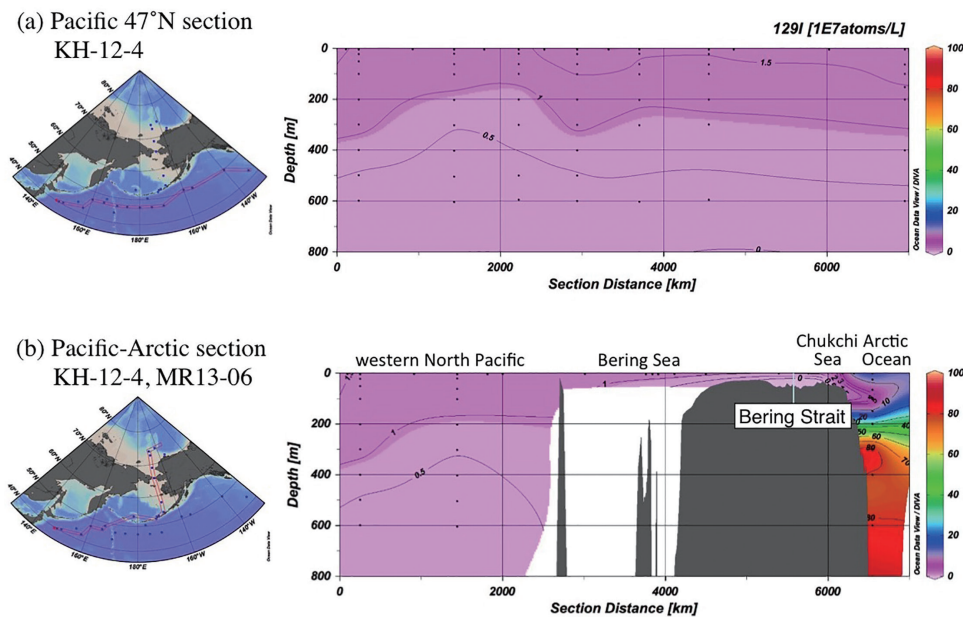


図 6. (a) 北太平洋 47°N 付近の ^{129}I 濃度断面図 (KH-12-4)
(b) 北部北太平洋-ベーリング海-チュクチ海-カナダ海盆南部の ^{129}I 濃度断面図 (KH-12-4, MR13-06)

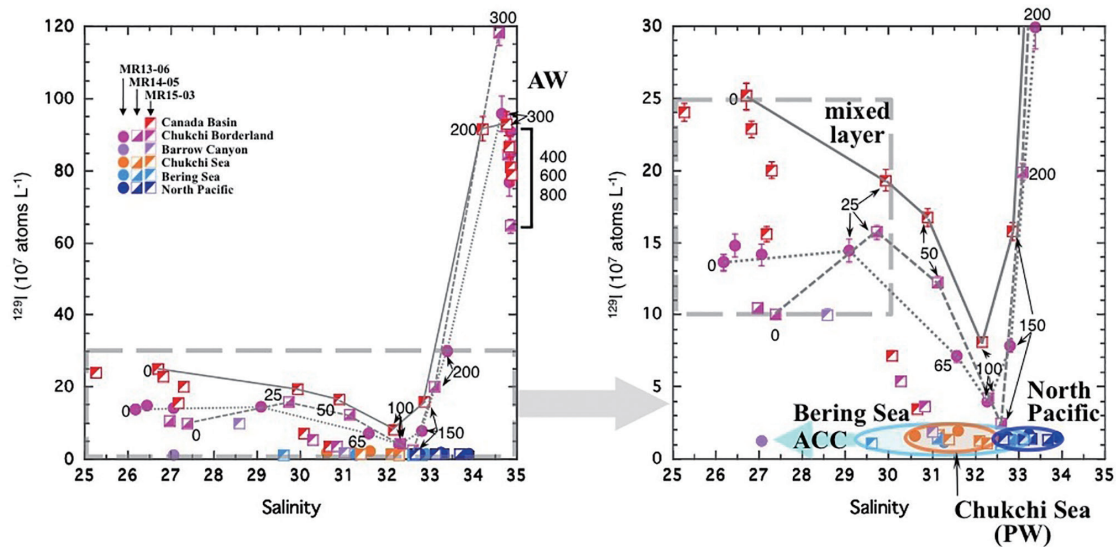


図7. 塩分 vs. ^{129}I 濃度

濃度 ($^{129}\text{I}=65\text{--}90 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$) の狭い範囲に分布しており、下部の塩分躍層は300 (200) m の大西洋水 ($S \sim 34.6$, $^{129}\text{I}=90\text{--}120 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$) とチュクチ海海水 ($S=31\text{--}32$ 太平洋水, $^{129}\text{I} \sim 1.5 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$) との混合線上に、上部の塩分躍層および表層の一部はチュクチ海海水と海水の融解水 ($S=25\text{--}30$, $^{129}\text{I}=10\text{--}25 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$) との混合線上に、それぞれプロットされる。一方、北太平洋、ベーリング海、チュクチ海は、低 ^{129}I 濃度 ($1.5 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$) で海域ごとに異なる塩分範囲に分布している。ベーリング海、チュクチ海、バロー峡谷 (Barrow Canyon) は北太平洋と比べ塩分が低下 ($S=27\text{--}31$) しているが、 ^{129}I 濃度が増加していないため、 ^{129}I 濃度の低い淡水の付加により塩分が減少したアラスカ沿岸流 (Alaskan Coastal Current [ACC]) の影響と考えられる (Woodgate and Aagaard 2005)。

8. 経年変化

核燃料再処理工場からの ^{129}I 放出量は1990年代に急増しているが、ユーラシア海盆、sta.4、sta.7 (図1 (a)) において2007年には、表層および深度300 m の ^{129}I 濃度がそれぞれ ~ 600 , $\sim 200 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ と ^{129}I 放出量の急増に対応して2000年以前の約3倍に上昇した値が観測されている (Smith et al. 2011)。これに対しカナダ海盆

南部においては、2006、2008年 sta.1, sta.2 (図1 (a)) の300–800 m の平均 ^{129}I 濃度、 $50\text{--}90 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ (Smith et al. 2011) と他の海盆と比べかなり低い濃度であった。なお、カナダ海盆においては、表層300 mまでは太平洋水の影響のため ^{129}I 濃度は北極海の他の海域より低く、 ^{129}I 濃度の上昇は起こらないと思われるため、300 m以深の ^{129}I 濃度を比較することになる。カナダ海盆南部で2013–2015年に観察された300–800 mの平均 ^{129}I 濃度は $85, 86, 83 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ と一定かつ2006、2008年とはほぼ同じ ^{129}I 濃度であったが、2017年には $150, 110, 150 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ と1.5倍以上高い ^{129}I 濃度が観察された。図8に核燃料再処理工場からの ^{129}I 放出量の経年変化とカナダ海盆300–800 mの平均 ^{129}I 濃度、モデル計算によるメンデレエフ海嶺付近 (マカロフ海盆とカナダ海盆の境、図1 (a)) 312–385 m の ^{129}I 濃度の推定 (Karcher et al. 2012) を示す。濃度上昇の時期の北海とのタイムラグは、モデル計算によるメンデレエフ海嶺付近では16年程度、また単純な移流モデルによるカナダ海盆のタイムラグは18–21年と見積もられている (Smith et al. 2011)。これに対し我々のカナダ海盆南部のデータは2015–2017年に急増しているためタイムラグは25年程度であり、移流モデルによる見積より若干長い。

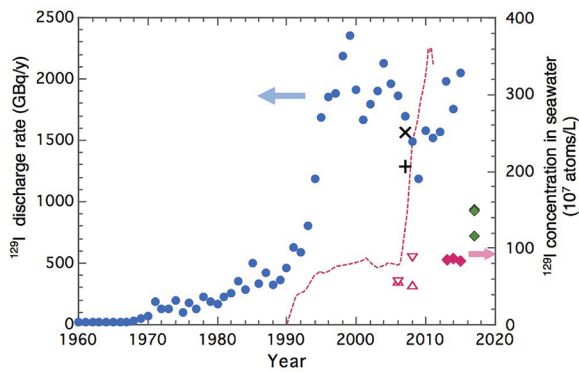


図 8. ^{129}I の経年変化

- : 核燃料再処理工場からの ^{129}I 年間放出量の合計.
Sellafield からの年間放出量は放出時期を 2 年遅らせて加算している.
- 海水中の平均濃度 (300–800 m)
- ◆ : MR13-06_32, MR14-05_9, MR15-03_54
- ◇ : MR17-05C_44, 68, 85
- △ : sta.1, ▽ : sta.2 (カナダ海盆, Smith et al. 2011)
- + : sta.4, × : sta.7 (ユーラシア海盆, Smith et al. 2011)
- : モデル計算によるメンデレエフ海嶺付近 (○) 312–385 m の海水中濃度 (Karcher et al. 2012)

9. おわりに

核燃料再処理工場からの ^{129}I 放出量の急増というイベントに対応して約 25 年のタイムラグでカナダ海盆南部の 300–800 m の海水中 ^{129}I 濃度の急増が観測された。カナダ海盆南部において 2017 年に観測された海水中 ^{129}I 濃度は、ユーラシア海盆において 2007 年に観測された ^{129}I 濃度より低く、核燃料再処理工場からの放出量が減少していないことから、 ^{129}I 濃度はまだ上昇する余地がありそうである。一方カナダ海盆における表層・中層の海水循環が最近大きく変動している可能性も指摘されており (Karcher et al. 2012)、核燃料再処理工場からの ^{129}I 流出量の経年変化に直線的に回答した海水中 ^{129}I 濃度の変化が観測されると断定はできないが、 ^{129}I 濃度の増加が起こる可能性は高いと思われる。

参考文献

A. Aldahan, V. Alfimov, G. Possnert (2007): ^{129}I anthropogenic budget: Major sources and

sinks, *Appl. Geochem.*, 22, 606–618.

V. Alfimov, A. Aldahan, G. Possnert, P. Wins (2004): Anthropogenic iodine-129 in seawater along a transect from the Norwegian coastal current to the North Pole, *Mar. Pollut. Bull.*, 49, 1097–1104.

T. Beasley, L. W. Cooper, J. M. Grebmeier, K. Aagaard, J. M. Kelley, L. R. Kilius (1998): $^{237}\text{Np}/^{129}\text{I}$ atom ratios in the Arctic Ocean: Has ^{237}Np from Western European and Russian Fuel Reprocessing Facilities Entered the Arctic Ocean?, *Environ. Radioactivity*, 38, 255–277.

N. Buraglio, A. Aldahan, G. Possnert (1999): Distribution and inventory of ^{129}I in the central Arctic Ocean, *Geophys. Res. Lett.*, 26, 1011–1014.

P. He, A. Aldahan, G. Possnert, X.L. Hou (2013): A summary of global ^{129}I in marine waters, *Nucl. Instr. Meth. B*, 294, 537–541.

M. Karcher, J.N. Smith, F. Kauker, R. Gerdes, W.M. Smethie Jr. (2012): Recent changes in Arctic Ocean circulation revealed by iodine-129 observations and modeling, *J. Geophys. Res.*, 117, C08007.

J.M. López-Gutiérrez, M. García-León, Ch. Schnabel, M. Suter, H.-A. Synal, S. Szidat, R. García-Tenorio (2004): Relative influence of ^{129}I sources in a sediment core from the Kattegat area, *Sci. Total Environ.*, 323, 195–210.

H. Matsuzaki, Y. Muramatsu, K. Kato, M. Yasumoto, C. Nakano (2007): Development of ^{129}I -AMS system at MALT and measurements of ^{129}I concentrations in several Japanese soils, *Nucl. Instr. Meth. B*, 259, 721–726.

H. Nagai, A. Hasegawa, T. Yamagata, Y. Kumamoto, S. Nishino, H. Matsuzaki (2015): Anthropogenic ^{129}I in the North Pacific,

- Bering and Chukchi Seas, and Arctic Ocean in 2012–2013, *Nucl. Instr. Meth. B*, 361, 680–684.
- H. Nagai, A. Kudo, T. Yamagata, Y. Kumamoto, S. Nishino, H. Matsuzaki (2019): Temporal variation of ^{129}I concentrations in the seawater of the southern Canada Basin, *Nucl. Instr. Meth. B*, 455, 265–270 (2019).
- C. Peralta-Ferriz, R.A. Woodgate (2015): Seasonal and interannual variability of pan-Arctic surface mixed layer properties from 1979 to 2012 from hydrographic data, and the dominance of stratification for multiyear mixed layer depth shoaling, *Progress in Oceanography*, 134, 19–53.
- P.P. Povinec, M. Aoyama, D. Biddulph, R. Breier, K. Buesseler, C.C. Chang, R. Golser, X.L. Hou, M. Jěskovský, A.J.T. Jull, J. Kaizer, M. Nakano, H. Nies, L. Palcsu, L. Papp, M.K. Pham, P. Steier, and L.Y. Zhang (2013): Cesium, iodine and tritium in NW Pacific waters—a comparison of the Fukushima impact with global fallout, *Biogeosciences*, 10, 5481–5496.
- G.M. Raisbeck, F. Yiou, Z.Q. Zhou, L.R. Kilius (1995): ^{129}I from nuclear fuel reprocessing facilities at Sellafield (UK) and La Hague (France); potential as an oceanographic tracer, *J. Mar. Syst.*, 6, 561–570.
- B. Rudels, E. P. Jones, U. Schauer, P. Eriksson (2004): Atlantic sources of the Arctic Ocean surface and halocline waters, *Polar Res.*, 23, 181–208.
- J.N. Smith, K.M. Ellis, and L.R. Kilius (1998): ^{129}I and ^{137}Cs tracer measurements in the Arctic Ocean, *Deep Sea Res.*, 45, 959–984.
- J.N. Smith, K.M. Ellis, and T.M. Boyd (1999): Circulation features in the central Arctic Ocean revealed by nuclear fuel reprocessing tracers from Scientific Ice Expeditions 1995 and 1996, *J. Geophys. Res.*, 104, 29663–29677.
- J.N. Smith, F.A. McLaughlin, W.M. Smethie Jr, S.B. Moran, K. Lepore (2011): Iodine-129, ^{137}Cs , and CFC-11 tracer transit time distributions in the Arctic Ocean, *J. Geophys. Res.*, 116, C04024.
- T. Suzuki, S. Ootosaka, J. Kuwabara, H. Kawamura, T. Kobayashi (2013): Iodine-129 concentration in seawater near Fukushima before and after the accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, *Biogeosciences*, 10, 3839–3847.
- R.A. Woodgate, K. Aagaard (2005): Revising the Bering Strait freshwater flux into the Arctic Ocean, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L02602.
- R.A. Woodgate, K. Aagaard, T.J. Weingartner (2006): Interannual changes in the Bering Strait fluxes of volume, heat and freshwater between 1991 and 2004, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L15609.
- 松崎浩之 (2007) : 加速器質量分析の原理, *J. Vac. Soc. Jpn.*, Vol. 50, No. 7, 1.