



海洋における人工放射性核種の動態解析

山田 正 俊*

1. はじめに

環境中に人工放射性核種がもたらされてから、そんなに時間が経っているわけではない。1945年8月、広島、長崎への原子爆弾の投下以降、大気圏核実験によるグローバルフォールアウト、マーシャル諸島ビキニ環礁での水爆実験による局地的フォールアウト、核燃料再処理施設からの放出、旧ソ連チェルノブイリ原子炉事故、プルトニウム燃料電池搭載衛星の打ち上げ失敗による拡散、核兵器搭載爆撃機の空中衝突事故や核兵器搭載航空機の墜落事故などにより環境中にもたらされた。

このたび、「海洋における人工放射性核種の動態解析」に関する研究で、栄えある第24回海洋化学学術賞（石橋賞）をいただいた。放射性核種とのつきあいは長く、1975年4月に北海道大学水産学部分析化学講座の卒研生となって以来、天然放射性核種をツールとして、海洋における物質循環の解明に関する研究を行ってきた。放射線医学総合研究所（放医研）に入所後は、これに加え人工放射性核種を扱うことになった。最初は、科学技術庁（当時）の環境放射能調査研究の一環として実施していた日本沿岸産の海産生物中の²³⁹⁺²⁴⁰Puと¹³⁷Csの分析を行った（Yamada, 1997; Yamada and Nagaya, 1998; Yamada et al., 1999）。その後、旧ソ連・ロシ

アによる日本海への放射性物質の海洋投棄に関わる調査（Yamada et al., 1996）をはじめ、今回受賞の対象となった海水・海底堆積物・沈降粒子・懸濁粒子中の人工放射性核種の濃度分布と挙動に関する研究を行った。海洋において、存在量が多く動態解析にとって重要な人工放射性核種は、Pu同位体、¹³⁷Cs、²⁴¹Amである。受賞記念講演では、データの空白海域である西部南太平洋（Yamada and Wang, 2007）や西部北太平洋縁辺海（Yamada et al., 2006a）における海水中の¹³⁷Csの分布と挙動などについてもお話したが、本稿では、すべてを網羅するのではなく、Pu同位体の動態のいくつかについて紹介したい。

2. 海水中のPuの分布は変化している

太平洋に存在するPuの主要な起源は、1940年代後半から1950年代にかけて行われた所謂ビキニ核実験による局地的フォールアウトと1950年代から1960年代に主に行われた大気圏核実験によるグローバルフォールアウトである。海洋に降下してから60年以上経過しているが、未だ定常状態には達していない。そこで、海洋内での挙動を解明するために、濃度分布のパターンや水柱中でのインベントリーの時間変化を、同一測点において調べることは有効なことである。

*独立行政法人 放射線医学総合研究所 環境放射線影響研究グループ 海洋動態解析研究チーム

しかし、そのような測定例は極めて少ない。

筆者が学生だった1970年代の頃、米国では GEOSECS 計画（地球化学的大洋縦断研究）が行われていた。例えば、1973-74年に行われた GEOSECS 太平洋航海において、29測点で $^{239+240}\text{Pu}$ の分布とインベントリーが観測された (Bowen et al., 1980)。その結果、(1)太平洋では水深250mから750mまでの中層に $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の極大が存在すること、(2)西部および北部北太平洋の測点において、海底直上で $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の増加が見られること、(3)西部北太平洋中緯度域における水柱中の $^{239+240}\text{Pu}$ のインベントリーは、グローバルフォールアウトによる降下量に比べ有意に大きいこと、などが明らかになった。

そんな中、故野崎義行教授が、GEOSECS 測点の再訪観測を目的のひとつとして、東大海洋研「白鳳丸」の KH-00-3次航海 (Bootes Expedition) を行った。そこで、われわれのグループも GX-222, GX-212, GX-235において、 $^{239+240}\text{Pu}$ の鉛直分布を測定し、GEOSECS データとの比較を行った。その一例を図1 aに示す。その結果、(1) $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の中層極大値が、大きく減少している、(2)中層極大層の水深

がより深層へ移行し、ブロードになり不明瞭になっている、(3)1000m 以深の濃度分布に全く変化がない、(4)水柱中でのインベントリーが減少しているが、この減少は1000m 以浅で起こっている、(5)水柱中のインベントリーが27年間で20~30%減少している、ことなどを明らかにした (山田, 未発表)。

これとは逆に、海水柱中で $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度が増加しているということも発見した。旧ソ連・ロシアによる日本海への放射性物質の海洋投棄が問題になったとき、海洋科学技術センター (当時) の協力により日本海で調査を行った。その際に、白鳳丸 KH-84-3次航海の測点を再訪し、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の鉛直分布を得た (Yamada et al., 1996)。この時の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の鉛直分布を図1 bに示す。先ほどの北太平洋の結果とは逆に、300m 以深で $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度が増大していた。海水柱中での $^{239+240}\text{Pu}$ のインベントリーは、約10年間で約2倍に増加しており、1993年のインベントリーは、グローバルフォールアウトによる降下量に比べ、約2倍であった。このことについては、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比のところで議論する。

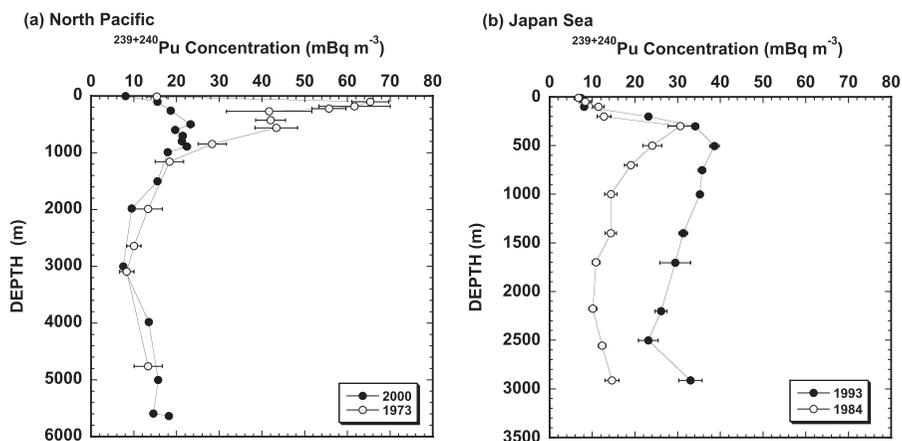


図1 海水中における $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の鉛直分布とその時間変化 (a)北太平洋, (b)日本海 (山田, 未発表)

3. Pu の粒子束は？

海洋における物質の沈降・除去のメカニズムを解明するための手段のひとつとしてセジメントトラップ実験がある。セジメントトラップとは、ロート型の捕集容器を海中の一定水深に係留設置し、捕集瓶を取り付けたターンテーブルを任意の時間毎に回転し、その設定期間毎に海水中の沈降粒子を捕集する装置である。東シナ海陸棚縁辺域、沖縄トラフ、東カロリン海盆、赤道太平洋などでセジメントトラップ実験を行い、沈降粒子中の Pu 濃度を測定し、 $^{239+240}\text{Pu}$ の粒子束と粒子による沈降除去過程を研究した (Yamada and Aono, 2002; 2006)。ここでは、南西諸島東方の西部北太平洋で行ったセジメントトラップ実験の結果を紹介する (Zheng and Yamada, 2006a; Yamada and Zheng, 2007)。

沈降粒子中の Pu 濃度は、設置した水深および季節によっても異なり (図 2 a)、水深1373 m で5.41mBq/g、水深1779m で3.38mBq/g の平均値であった。また、Pu の粒子束は大きな季節変動がみられ、特に水深1779m で顕著であった (図 2 b)。Pu の平均粒子束は、1373m

で0.36mBq/m²/day、1779m で0.62mBq/m²/day と水深が深くなるにつれて増加した。さらに、Pu 粒子束と全粒子束との間に相関がみられた。これらのことから Pu の沈降除去は、全粒子束に強く支配されていることが明らかになった。また、東カロリン海盆における Pu の平均粒子束も0.22mBq/m²/day であった (山田, 未発表)。

先ほどの北太平洋における GEOSECS 航海と白鳳丸航海で得られた水柱中での27年間のインベントリーの差から計算される減少量は、2 ~ 4 mBq/m²/day である。海水柱中からの減少量は、西部北太平洋や東カロリン海盆で観測された Pu の年平均沈降粒子束に比べ有意に大きい。この海水柱中からの減少は、Pu の沈降除去のみでは説明がつかない。Livingston *et al.* (2001) は、中層水の物理的な循環により、濃度の低い水塊との水平混合により薄められたためであろうとしているが、これのみで説明することは困難であろう。生物地球化学的過程による鉛直的な輸送だけでなく、水平的な輸送も含めて、海水中でのプルトニウムの挙動を考え

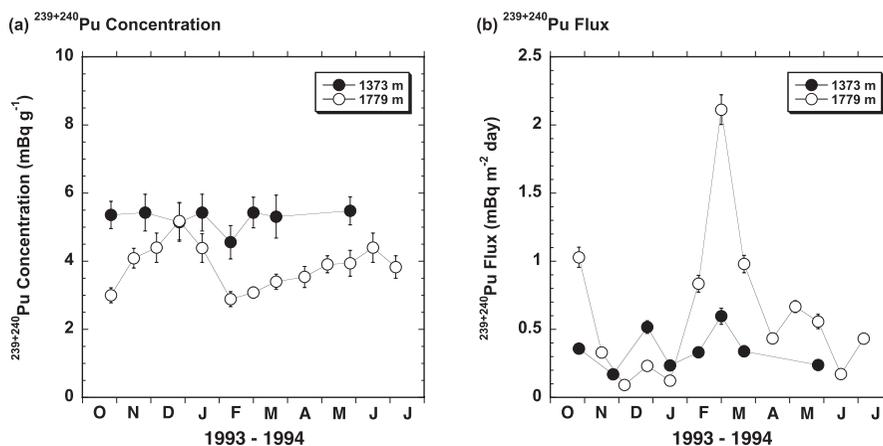


図 2 (a)南西諸島東方海域における沈降粒子中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の季節変動 (b) $^{239+240}\text{Pu}$ 粒子束の季節変動、黒丸は水深1373m、白丸は水深1779mを示す (Zheng and Yamada, 2006a)

る必要がある。

4. 日本周辺海底堆積物柱中の Pu インベントリーに着目

北太平洋の海水柱中で減少したインベントリー分の Pu はどこへいったのだろうか？ 東京湾と相模湾で得た結果から、日本周辺海域の海底堆積物に着目した。東京湾の堆積物柱中の $^{239+240}\text{Pu}$ インベントリーは $202\sim 223\text{Bq/m}^2$ (平均 214Bq/m^2) で、さきほどの北太平洋で観測された海水柱中のインベントリーの 2～3 倍あった (Yamada and Nagaya, 2000a)。さらに、それより水深の深い相模湾において 10 本のコアを調べてみると、 $^{239+240}\text{Pu}$ インベントリーは $36\sim 474\text{Bq/m}^2$ (平均 191Bq/m^2) あり (Yamada and Nagaya, 2000b)、北緯 30 度～40 度におけるグローバルフォールアウトによる降下量 (UNSCEAR, 2000) の 42Bq/m^2 に比べ、約 5 倍も蓄積していた (図 3)。この高蓄積量はグローバルフォールアウトのみでは説明がつかず、

海水の循環により Pu が日本周辺海域の沈降粒子束の大きいところに運ばれてきてスキャベンジングされたのではないかというストーリーを考えた。また、ビキニ水爆実験起源の Pu の寄与も重要であろうと考え、同位体比を何とか測りたいと画策した。そうこうするうち、誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-QMS) が手に入り、中国科学院地球化学研究所で学位を取ったばかりの王中良さんが JSPS のポスドクとして加わった。

5. ビキニの Pu が堆積していた

海底堆積物には過去の歴史が記録されている。最初に海底堆積物中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比を測定することから始めた。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は、核実験や原子炉のタイプ、使用する核燃料の種類や燃焼時間などによって異なることが知られており、環境試料中の同位体比の測定からその起源を推定し、環境動態を解明するのに有効である。例えば、グローバルフォールアウト

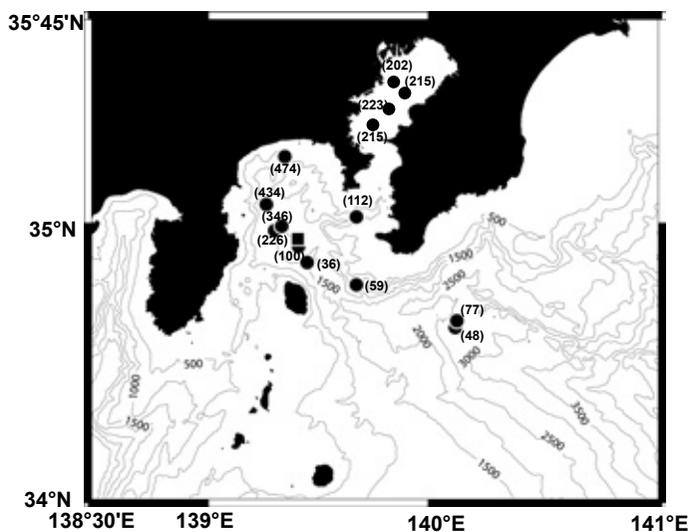


図 3 東京湾および相模湾における堆積物試料採取地点と堆積物柱中の $^{239+240}\text{Pu}$ インベントリー、括弧内の数字がインベントリー (単位: Bq/m^2) を示す (Yamada and Nagaya, 2000a; 2000b)

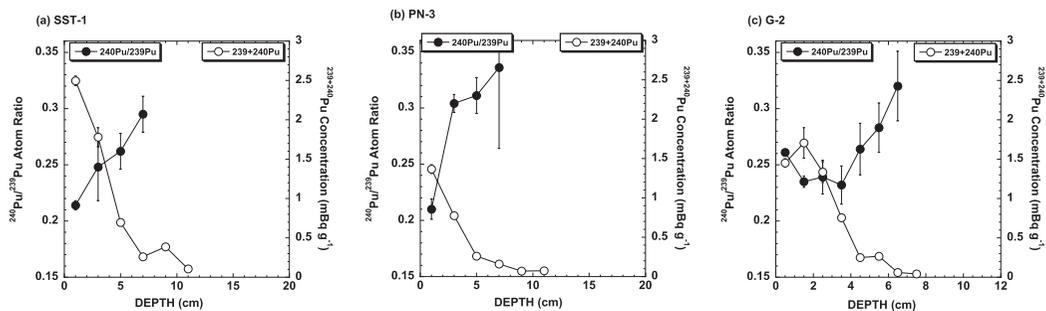


図4 沖縄トラフにおける堆積物中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の鉛直分布 (a)SST-1, 水深1080m (b)PN-3, 水深1000m (c)G-2, 水深999m (Wang and Yamada, 2005)

起源の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は0.173~0.185 (Krey et al., 1976; Kelly et al., 1999), ビキニ水爆実験起源は0.30~0.36 (Diamond et al., 1960; Komura et al., 1984; Muramatsu et al., 2001), 南太平洋のムルロア環礁での核実験起源は0.035~0.05 (Chiappini et al., 1999)である。

日本周辺海域から採取してあった30本の海底堆積物コアー中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の測定を行った。沖縄トラフの結果を、図4に示す (Wang and Yamada, 2005)。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は、0.21~0.34とグローバルフォールアウト比に比べ有意に高く、しかも堆積物中で深さとともに比は増加し、ビキニ水爆実験起源比に近づいた。東シナ海 (PN-5, PN-8, PN-12)でも同様に、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は平均で 0.248 ± 0.003 と高い値を示した。また、堆積物柱中のインベントリーも $60.9 \sim 101 \text{Bq}/\text{m}^2$ とグローバルフォールアウトによる降下量以上のPuが堆積しており、水深が1000mを超える沖縄トラフでも $32.5 \sim 47.2 \text{Bq}/\text{m}^2$ と高いインベントリーであった。東シナ海では、他に海水中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度分布 (Yamada and Aono, 2003)と堆積物中のUの沈着メカニズムも明らかにした (Yamada et al., 2006b)。

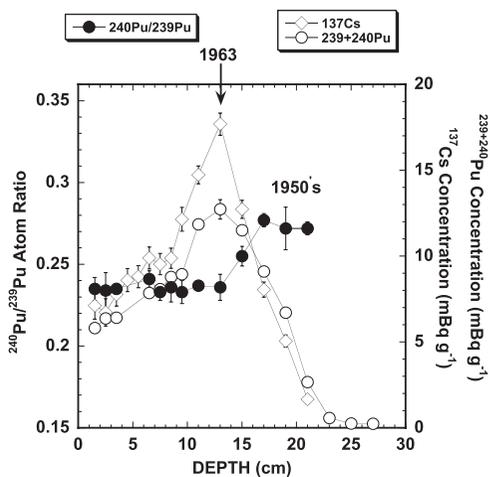


図5 相模湾における堆積物中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度 (白丸), ^{137}Cs 濃度 (菱形)と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比 (黒丸)の鉛直分布 (Zheng and Yamada, 2004)

堆積速度の速い相模湾では、より明瞭な鉛直分布が得られた (Zheng and Yamada, 2004)。1952年11月にエニュータック環礁で人類史上初めての水素爆弾爆発実験となるアイビー作戦のMIKE実験が、1954年3月にビキニ環礁で第五福竜丸等の船舶が巻き添えを受けたキャッセル作戦のBRAVO実験が行われた。相模湾堆積物中の1950年代に堆積したところに高い $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比が観測され、マーシャル諸

島での核実験の汚染の跡が記録されていることを特定した(図5)。日本各地から採取された各種土壌試料中(0-30cm)の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比が、グローバルフォールアウト比に近い 0.180 ± 0.011 であることから(Muramatsu et al., 2003), この1950年代の高い値はビキニ水爆実験からの直接のフォールアウトによるとは考えられない。ビキニ環礁付近から北赤道海流・黒潮によってビキニ水爆実験起源のPuが運ばれ、沖縄トラフ・東シナ海さらには相模湾で比較的速やかに堆積したと結論づけた。さらに、日本海やオホーツク海でもグローバルフォールアウト比より高い比が観測されたが、太平洋側の北海道釧路沖の堆積物中の同位体比は0.18前後であった(図6:Zheng and Yamada, 2005; 2006b)。

沖縄トラフ・東シナ海・相模湾等で観測されたグローバルフォールアウト比より高い値が、ビキニ水爆実験起源に由来するとして、堆積物への水爆実験起源の寄与率を、グローバルフォールアウト起源とビキニ起源の2つのエンドメンバーのモデルを用いて推定した。

$$\frac{(Pu)_1}{(Pu)_2} = \frac{(R_2 - R_3)}{(R_3 - R_1)} \frac{(1 + 3.60R_1)}{(1 + 3.60R_2)}$$

ここで、Rは $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比を示す。

1, 2, 3は、それぞれ、ビキニ水爆実験起源、グローバルフォールアウト起源、本研究での測定値を示す。また、グローバルフォールアウト比(R_2)を0.18、水爆実験起源比(R_1)を0.36として計算した。沖縄トラフ・東シナ海では、ビキニ水爆実験起源の $^{239+240}\text{Pu}$ が46%~67%(平均54%)含まれていることが明らかになった。同様に相模湾でも、堆積している $^{239+240}\text{Pu}$ のうち、36%~51%(平均44%)がビキニ水爆実験起源であった。また、同位体比が東シナ海や相模湾に比べて小さい北部日本海の堆積物ではビキニ起源の割合が約20%、オホーツク海で約10%であった。親潮海域である西部北太平洋(釧路沖)は、グローバルフォールアウト起源のみが堆積していた。以上の結果から、日本周辺海域の堆積物にはグローバルフォールアウトによる降下量以上のPuが堆積していること、Puの起源推定に $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比が有効であること、ビキニ水爆実験起源のPuが堆積していること、海洋におけるビキニ水爆実験起源のPuの輸送に北赤道海流・黒潮・対馬海流などの海流が重要であることを明らかにした。

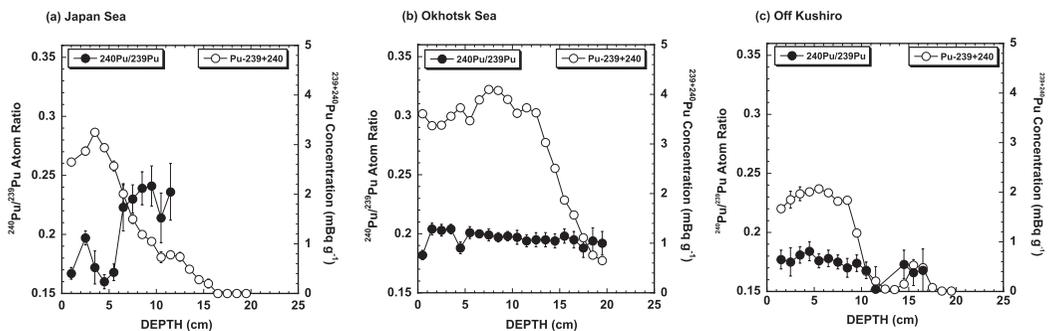


図6 日本周辺海域における堆積物中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度(白丸)と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比(黒丸)の鉛直分布 (a)日本海 (b)オホーツク海 (c)釧路沖 (Zheng and Yamada, 2005; 2006b)

6. ビキニ起源の Pu はどこまで運ばれる？

高分解能誘導結合プラズマ質量分析装置 (HR-ICP-MS) の導入と鄭建さんによる分析法の開発で、それまで測定できなかった沈降粒子 (Zheng and Yamada, 2006c) や海水中 (Zheng and Yamada, 2007) の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の分析が可能となった。さらに、堆積物中の ^{241}Am の分析も ICP-MS で行えるようになった (Zheng and Yamada, 2008)。

海水が測れるようになって最初に、表面海水中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の分布を調べた。西部北太平洋およびその縁辺海における表面海水中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は、グローバルフォールアウト起源比の0.18に比べ有意に高い0.20~0.25であった (図7)。特に、南シナ海、スールー海、セレベス海などの東南アジアの海でも高い値 (0.23~0.25) が観測された。これは、ビキニ水爆実験による局地的フォールアウト起

源の Pu が、北赤道海流によってフィリピンの東に運ばれ、さらに黒潮となりその一部がルソン海峡・ミンドロ海峡を越え流入したこととインドネシア通過流によってこれらの海域に運ばれたことによる (Yamada et al., 2006c)。また、東シナ海のみならず日本海および青森県太平洋沿岸においてもグローバルフォールアウト比より高く、黒潮から枝分かれした対馬海流、津軽暖流によって日本海北部までビキニ起源の Pu が輸送されていると考えられる (Yamada and Zheng, 2008)。

マーシャル諸島での水爆実験起源の局地的フォールアウトは1952年~1954年がピークであり、グローバルフォールアウトは1963年である。約10年のタイムラグがあり、また、その $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比も異なる。北太平洋に入ったそれぞれの Pu はその後どんな挙動を取ったのだろうか。その答えを探すべく日本周辺海域のみならず、

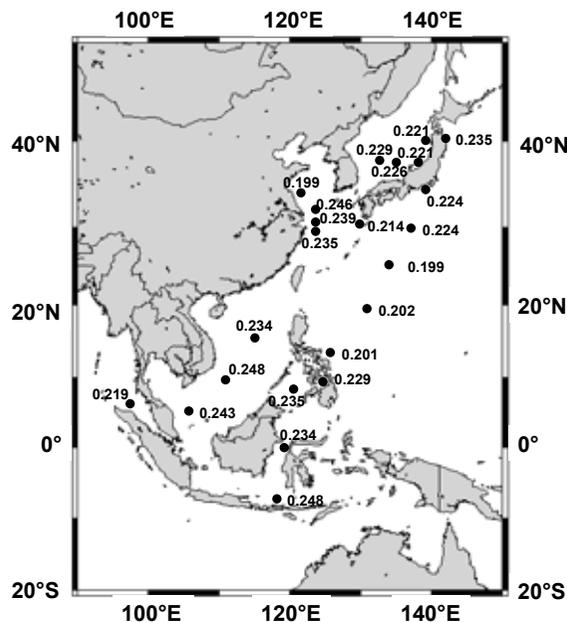


図7 西部北太平洋およびその縁辺海における表面水中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の分布 (Yamada et al., 2006c; Yamada and Zheng, 2008; 一部未発表)

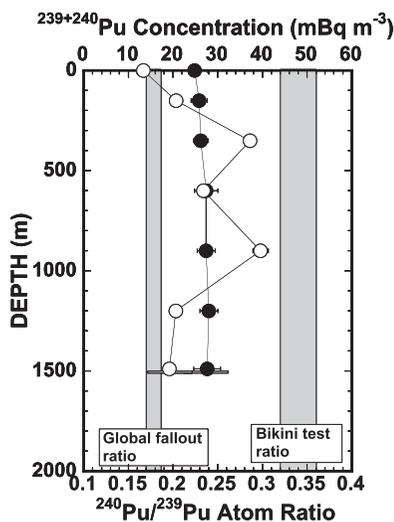


図8 相模湾における海水中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度(白丸)と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比(黒丸)の鉛直分布。塗りつぶしはグローバルフォールアウト比とビキニ核実験比を示す(Yamada et al., 2007)

北太平洋, 南太平洋, インド洋で $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の鉛直分布を調べている。

相模湾における海水中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の鉛直分布を図8に示す(Yamada et al., 2007)。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は, 表層から海底直上まで一定の値を示し, その平均は 0.234 ± 0.004 であった。相模湾には, 黒潮・北太平洋中層水・太平洋深層水の3つの水塊が存在するが, フォールアウト後数十年の時間が経過し, グローバルフォールアウトと局地的フォールアウトという起源の異なるPu同位体がこれらの水塊の中ですでに均一化していることがわかる。海水が表層から海底直上まで短時間に一気に混ざったとは考えられないから, 海洋表層で混合された起源の異なるPu同位体が, その後粒子によって除去され, 中・深層で再生したことよると考えられる。相模湾における $^{239+240}\text{Pu}$ の海水柱中でのインベントリーは $41.1\text{Bq}/\text{m}^3$ で, グローバルフォールアウトに

よる降下量の $42.2\text{Bq}/\text{m}^2$ とほぼ同じである。グローバルフォールアウト起源とビキニ核実験による局地的フォールアウト起源の2つのエンドメンバーの混合によつて, それぞれの寄与率を求めると, 海水柱中の全蓄積量の37%にあたる $15.2\text{Bq}/\text{m}^2$ がビキニ起源であった。また, 残りの $25.9\text{Bq}/\text{m}^2$ がグローバルフォールアウト起源となり, これはグローバルフォールアウトの約60%に相当する。相模湾における堆積物柱中のPuインベントリーは $36 \sim 474\text{Bq}/\text{m}^2$ (平均 $191\text{Bq}/\text{m}^2$)であり, グローバルフォールアウト量に比べ約5倍も蓄積していた(図3)。この高蓄積は, 2つの起源を持つPuが海水の循環により相模湾などの日本周辺海域の沈降粒子束の大きいところに運ばれてきてスキャベンジングされたためであろう。

日本海において, Pu濃度は300m以深で増加傾向にあり, 海水柱中でのPuのインベントリーは, 約10年間で約2倍に増えていた(図1b)。ところが, $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は表層から海底直上まで深さによらずほぼ一定(~ 0.24)であり, しかも1984年と1993年には有意の差はみられなかった(山田, 未発表)。この日本海でのPuインベントリーの増加は, 大気や日本海周辺の河川からのフラックスでは説明がつかない。 0.24 前後の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比を持った海水が対馬海峡を通して日本海に流入し, 日本海表層で粒子によって取り込まれ, 生物地球化学的プロセスにより中層で再生していることよると考えられる。

太平洋やインド洋の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比を分析中である。全球的な鉛直分布およびその中・長期的変化が得られれば, 循環・混合・除去のプロセスが解明でき, 汚染評価や将来予測に資すると期待される。

7. 謝 辞

このたび荣誉ある海洋化学学術賞（石橋賞）をいただき、ご指導いただいた先生方や一緒に研究を進めてきた多くの方々に厚くお礼申し上げます。特に、北海道大学の角皆静男教授（現名誉教授）には、卒業研究で放射性核種に関するテーマを与えていただいて以降、ご指導いただき深く感謝いたします。また、北海道大学水産学部分析化学講座（当時）の皆様には、試料の分析から日常の議論まで大変お世話になりました。故野崎義行東京大学教授には、研究成果を論文として公表することの大切さを教わりました。放医研の先輩・同僚には試料採取やICPMS測定など、いろいろとご協力いただきました。海洋の研究は観測船での試料採取が不可欠です。白鳳丸はじめ乗船した観測船の乗組員の皆様に深く感謝の意を表します。

参考文献

- Bowen, V. T., V. E. Noshkin, H. D. Livingston and H. L. Volchok: Fallout radionuclides in the Pacific Ocean; vertical and horizontal distributions, largely from GEOSECS Stations. *Earth and Planetary Science Letters*, **49**, 411-434 (1980)
- Chiappini, R., F. Pointurier, J. C. Millies-Lacroix, G. Lepetit and P. Hemet: $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotopic ratios and $^{239+240}\text{Pu}$ total measurements in surface and deep waters around Mururoa and Fangataufa atolls compared with Rangiroa atoll (French Polynesia). *Science of the Total Environment*, **237/238**, 269-276 (1999)
- Diamond, H., P. R. Fields, C. S. Stevens, M. H. Studier, S. M. Fried, M. G. Inghram, D. C. Hess, G. L. Pyle, J. F. Mech, W. M. Manning, A. Ghiorso, S. G. Thompson, G. H. Higgins, G. T. Seaborg, C. I. Browne, H. L. Smith and R. W. Spence: Heavy isotope abundances in 'Mike' thermonuclear device. *Physical Review*, **119**, 2000-2004 (1960)
- Kelley, J. M., L. A. Bond and T. M. Beasley: Global distribution of Pu isotopes and ^{237}Np . *Science of the Total Environment*, **237/238**, 483-500 (1999)
- Komura, K., M. Sakanoue and M. Yamamoto: Determination of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratio in environmental samples based on the measurement of Lx/ α -ray activity ratio. *Health Physics*, **46**, 1213-1219 (1984)
- Krey, P. W., E. P. Hardy, C. Pachucki, F. Rourke, J. Coluzza and W. K. Benson: Mass isotopic composition of global fallout plutonium in soil. In: *Transuranium nuclides in the environment*. IAEA-SM-199/39, IAEA, Vienna, pp. 671-678 (1976)
- Livingston, H. D., P. P. Povinec, T. Ito and O. Togawa: The behaviour of plutonium in the Pacific Ocean. In: *Plutonium in the environment*, Edited by A. Kudo, Elsevier, Amsterdam, pp. 267-292 (2001)
- Muramatsu, Y., T. Hamilton, S. Uchida, K. Tagami and S. Yoshida: Measurement of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotopic ratios in soils from the Marshall Islands using ICP-MS. *Science of the Total Environment*, **278**, 151-159 (2001)
- Muramatsu Y., S. Yoshida and A. Tanaka:

- Determination of Pu concentration and its isotopic ratio in Japanese soils by HR-ICP-MS. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **255**, 477–480 (2003)
- UNSCEAR – United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *Sources and Effects of Ionizing Radiation*, 2000 Report to the General Assembly with Scientific Annexes. New York: United Nations, 229 pp. (2000)
- Wang, Z.-L. and M. Yamada: Plutonium activities and $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratios in sediment cores from the East China Sea and Okinawa Trough: Sources and inventories. *Earth and Planetary Science Letters*, **33**(3–4), 441–453 (2005)
- Yamada, M., T. Aono and S. Hirano: $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs distributions in seawater from the Yamato Basin and the Tsushima Basin in the Japan Sea. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles*, **210**(1), 129–136 (1996)
- Yamada, M.: $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs concentrations in Salmon (*Oncorhynchus Keta*) collected on the Pacific coast of Japan. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **223**(1–2), 145–148 (1997)
- Yamada, M. and Y. Nagaya: Temporal variations of ^{137}Cs concentrations in the surface seawater and marine organisms collected from the Japanese coast during 1980's. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **230**(1–2), 111–114 (1998)
- Yamada, M., T. Aono and S. Hirano: $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs concentrations in fish, cephalopods, crustaceans, shellfish, and algae collected around the Japanese coast in the early 1990's. *Science of the Total Environment*, **239**(1–3), 131–142 (1999)
- Yamada, M. and Y. Nagaya: $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in sediments from Tokyo Bay: Distribution and inventory. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **245**(2), 273–279 (2000a)
- Yamada, M. and Y. Nagaya: Vertical profiles, inventories, and activity ratios of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in sediments from Sagami Bay, western Northwest Pacific margin. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **246**(2), 369–378 (2000b)
- Yamada, M. and T. Aono: Large particle flux of $^{239+240}\text{Pu}$ on the continental margin of the East China Sea. *Science of the Total Environment*, **287**(1–2), 97–105 (2002)
- Yamada, M. and T. Aono: Vertical profiles of $^{239+240}\text{Pu}$ in seawater from the East China Sea. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **256**(3), 399–402 (2003)
- Yamada, M. and T. Aono: ^{238}U , Th isotopes, ^{210}Pb and $^{239+240}\text{Pu}$ in settling particles on the continental margin of the East China Sea: Fluxes and particle transport processes. *Marine Geology*, **227**(1–2), 1–12 (2006)
- Yamada, M., Z.-L. Wang and J. Zheng: The extremely high ^{137}Cs inventory in the

- Sulu Sea: a possible mechanism. *Journal of Environmental Radioactivity*, **90**(2), 163–171 (2006a)
- Yamada, M., Z.-L. Wang and Y. Kato: Precipitation of authigenic uranium in suboxic continental margin sediments from the Okinawa Trough. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **66**(3–4), 570–579 (2006b)
- Yamada, M., J. Zheng and Z.-L. Wang: ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ and $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratios in the surface waters of the western North Pacific Ocean, eastern Indian Ocean and their adjacent seas. *Science of the Total Environment*, **366**(1), 242–252 (2006c)
- Yamada, M. and Z.-L. Wang: ^{137}Cs in the western South Pacific Ocean. *Science of the Total Environment*, **382**(2–3), 342–350 (2007)
- Yamada, M. and J. Zheng: ^{210}Pb and ^{230}Th in settling particles in the western Northwest Pacific Ocean: Particle flux and scavenging. *Continental Shelf Research*, **27**(12), 1659–1642 (2007)
- Yamada, M., J. Zheng and Z.-L. Wang: $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratios in seawater from Sagami Bay, western Northwest Pacific Ocean: sources and scavenging. *Journal of Environmental Radioactivity*, **98**(3), 274–284 (2007)
- Yamada, M. and J. Zheng: Determination of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio in coastal surface seawaters from the western North Pacific Ocean and Japan Sea. *Applied Radiation and Isotopes*, **66**(1), 103–107 (2008)
- Zheng, J. and M. Yamada: Sediment core record of global fallout and Bikini close-in fallout Pu in Sagami Bay, western Northwest Pacific margin. *Environmental Science and Technology*, **38**(13), 3498–3504 (2004)
- Zheng, J. and M. Yamada: Vertical distributions of $^{239+240}\text{Pu}$ activities and $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratios in sediment cores: implications for the sources of Pu in the Japan Sea. *Science of the Total Environment*, **340**(1–3), 199–211 (2005)
- Zheng, J. and M. Yamada: Plutonium isotopes in settling particles: Transport and scavenging of Pu in the western Northwest Pacific. *Environmental Science and Technology*, **40**(13), 4103–4108 (2006a)
- Zheng, J. and M. Yamada: Determination of Pu isotopes in sediment cores in the Sea of Okhotsk and the NW Pacific by sector field ICP-MS. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **267**(1), 73–83 (2006b)
- Zheng, J. and M. Yamada: Inductively coupled plasma-sector field mass spectrometry with a high-efficiency sample introduction system for the determination of Pu isotopes in settling particles at femtogram levels. *Talanta*, **69**(5), 1246–1253 (2006c)
- Zheng, J. and M. Yamada: Precise determination of Pu isotopes in a seawater reference material using ID-SF-ICP-MS combined with two-stage anion-exchange chromatography. *Analytical*

Sciences, **23**(5), 611-615 (2007)

Zheng, J. and M. Yamada: Isotope dilution SF-ICP-MS combined with extraction chromatography for rapid determination of ^{241}Am in marine sediment samples: a case study in Sagami Bay, Japan. *Journal of Oceanography*, **64**(4), 541-550 (2008)