

文章编号:1672-9250(2007)04-0289-08

钚同位素法示踪中国领海核爆散落物钚的主要来源与迁移途径

王中良^{1,2}, 山田正俊², 郑建²

(1. 中国科学院地球化学研究所, 环境地球化学国家重点实验室, 贵州 贵阳 550002; 2. Nakaminato Laboratory for Marine Radioecology, National Institute of Radiological Sciences, Isozaki 3609, Hitachinaka, Ibaraki 311-1202, Japan)

摘要:使用电感耦合等离子体质谱仪, 对东海及冲绳海槽沉积物、南海及邻近海域以及西北太平洋表层水中²⁴⁰Pu/²³⁹Pu同位素比值进行了测定, 以确定中国领海核爆散落核素钚的主要来源及迁移途径。结果显示: 东海及冲绳海槽沉积物中²⁴⁰Pu/²³⁹Pu比值分布于0.24~0.31之间, 南海及邻近海域以及西北太平洋表层水²⁴⁰Pu/²³⁹Pu比值也处于0.22~0.24之间, 都明显高于全球大气理论沉降值0.18。根据²⁴⁰Pu/²³⁹Pu比值及其在沉积物芯中的分布特征分析, 二十世纪50年代早期美国在北太平洋马绍尔群岛进行的核爆实验, 被认为是中国领海及其邻近海域除全球大气沉降外的另一重要的钚的来源。模式计算显示, 东海及冲绳沉积物中约55%、中国南海及其邻近海域表层水中约40%、西北太平洋表层水中约20%的钚, 来自北太平洋核爆基地。北太平洋赤道环流及其在西北太平洋的分支洋流是钚自核爆地向中国领海迁移的主要通道。

关键词:钚; 中国领海; 北太平洋核爆基地; 北太平洋赤道环流

中图分类号: P597⁺.1

文献标识码: A

核爆散落核素钚(Pu)的放射毒性和化学毒性都极强, 是放射学和环境生态学监测的重点之一^[1-2]。受美国二十世纪50年代初在北太平洋马绍尔群岛核试验基地(英文缩写PPG)核爆试验影响, 北半球尤其是北太平洋是Pu的主要沉降区^[3-12]。作为西太平洋边缘海的中国领海及其邻近海域Pu的来源及迁移过程也因此受到广泛关注^[13-16]。最近十几年, 日本、台湾和韩国的一些课题组对东海及黄海等海域Pu的放射活度进行了测定^[14-17]。但就目前, 对于该地区有限的研究还尚未构建起一个Pu在本地区循环的完整数据链, 最关键的是缺少有效的Pu的来源判定指标, 特别是Pu同位素的示踪研究。自然环境中Pu同位素主要有:²³⁸Pu、²³⁹Pu、²⁴⁰Pu和²⁴¹Pu等, 其中²³⁹Pu和²⁴⁰Pu为丰

度最高的两个同位素,²⁴⁰Pu/²³⁹Pu同位素比值与Pu的来源直接相关, 可以作为Pu来源的有效示踪指标^[2,7,17-23]。本研究的基本目的, 是通过对中国领海及其邻近海域物质中²⁴⁰Pu/²³⁹Pu比值的测定, 判定这些海域放射性核素Pu的主要来源及迁移途径。

1 样品来源与分析

沉积物样分别采自东海和冲绳海槽, 表层海水样品分别采自南海、孟加拉湾及安达曼海、苏禄及印尼海、北太平洋西部海域等, 采样站点位置见图1。

Pu的分离富集与测定由Buessler和Halverson^[24]以及Muramatsu等^[25]的方法改进而来。适量沉积物样品置于500 mL烧杯中, 加入200~300 mL浓HNO₃消解4~6 h, 冷却后用滤纸将固液分开。消解液调为8 mol/L HNO₃溶液并加适量NaNO₂, 使Pu转化为树脂易吸附的+4价。表层海水样品约250 L, 用浓HCl调pH至2左右, 加入Fe³⁺载体, 用氨水调pH值至生成氢氧化铁沉淀, 最后转化为8 mol/L HNO₃溶液并加入适量NaNO₂。

收稿日期:2007-05-13; 修回日期:2007-10-19

基金项目:国家自然科学基金项目(40573005)

第一作者简介:王中良(1970—), 男, 研究员, 主要从事表生水体物质迁移转化动力学及其环境效应研究。E-mail: wangzhongliang@vip.skleg.cn

上述预处理液以每分钟 1~2 mL 流速通过阴离子交换树脂柱(Bio-Rad AG-X8)。依次用 50 mL 8 mol/L HNO₃ 和 50 mL 10 mol/L HCl 淋洗,最后用 50 mL 溶于 12 mol/L HCl 的 0.1 mol/L NH₄I 溶液洗脱并收集 Pu。最后将含 Pu 溶液蒸干并溶解于 2.5 mL 4% HNO₃ 溶液用于质谱测定。²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 比值由双聚焦电感耦合等离子体质谱仪 SF-ICP-MS (Element 2, Thermo Electron) 进行测定,质量歧视用已知²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 比值(0.2420)的 Pu 同位素

标准溶液(NBS-947)进行校正。经树脂分离后待测溶液中²³⁸U 同位素质量计数通常在 4 000~8 000 cps 之间,由于仪器测试的 UH⁺ 干扰系数在 10⁻⁴ 至于 10⁻⁵ 之间,所以本次测试的 UH⁺ 双离子对²³⁹Pu 质量数的干扰可忽略不计。测定的最低检出限分别为:²³⁹Pu 0.000 41 mBq · mL⁻¹、²⁴⁰Pu 0.001 5 mBq · mL⁻¹, 相对标准偏差在 2%~10% 之间。²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 比值测定的相对标准偏差在 4.6%~12.3% 之间,平均为 8.6%。

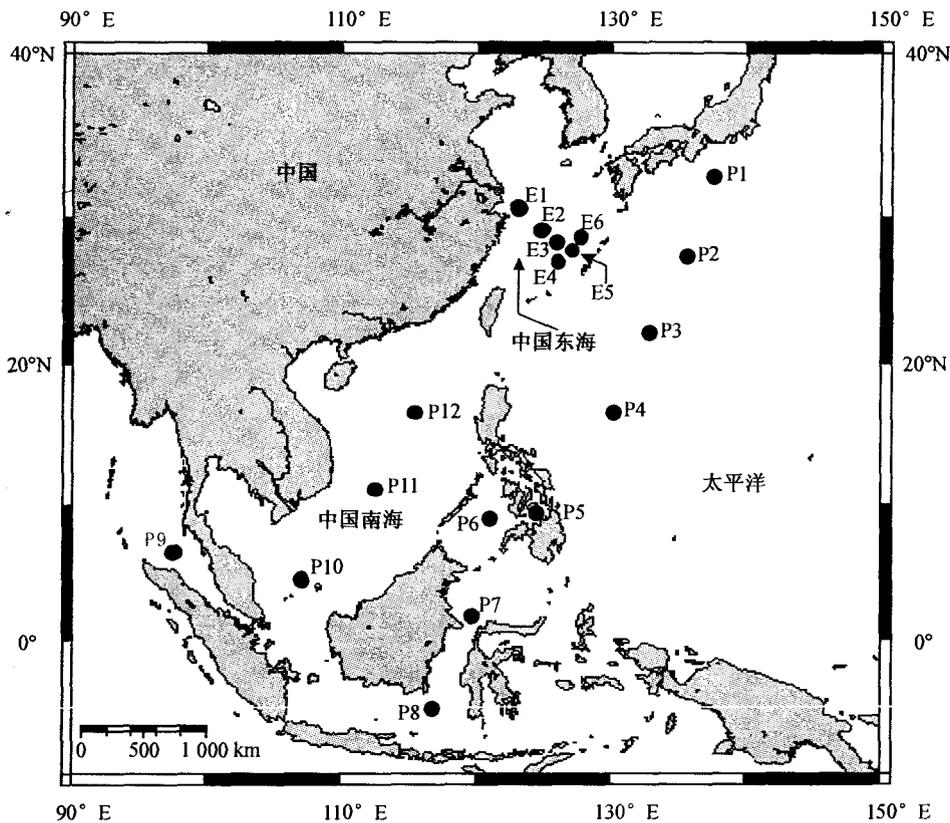


图1 中国领海及西北太平洋海域概况与采样站点位

Fig. 1. Map showing sampling sites in western North Pacific Ocean and the China Seas.

2 结果

东海及冲绳海槽沉积物²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 同位素比值测试结果见表 1 和图 2, 显示以下特征:(1) 比值主要介于 0.21 至 0.336 之间, 平均约 0.26, 明显大于文献报道的全球大气沉降值 0.18^[21,23]。(2) 东海 E2 和冲绳 E6 点, 最底层沉积物样品²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 比值分别为 0.123 和 0.139, 明显低于大气沉降值 0.18。东海 E1 站点最底层样品的²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 比值也仅为 0.184, 与大气沉降值相当, 但明显低于其上部最邻近样品。

南海及邻近海域以及西北太平洋表层水²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 比值测试结果见表 2 和图 3, 其值分布于 0.199 至 0.248 之间, 与北太平洋、中国黄海、朝鲜海峡及日本海所报道值基本相当^[13,26], 都明显高于全球大气沉降值 0.18^[21,23]。其中, 南海及邻近海域的平均²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 比值略高于西北太平洋和孟加拉湾及安达曼海(表 2)。靠近日本的 P1 站点的²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 比值要明显高于其邻近的 P2 站点, 位于孟加拉湾及安达曼海的 P9 站点的²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 比值也比邻近的南海的 P10 站点明显低(表 2)。

表1 东海及冲绳海槽沉积物 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值及PPG贡献率

Table 1. $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratios in sediment cores from the East China Sea and Okinawa Trough. The relative contributions of PPG are also listed in the table.

样点	采样时间	沉积物深度(cm)	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	PPG 贡献率(%)	PPG 平均贡献率(%)
E1 (东海)	1992年9月	0-2	0.256±0.010	50.3	57
		2-4	0.248±0.004	46.0	
		4-6	0.257±0.004	50.9	
		6-8	0.243±0.007	42.9	
		8-10	0.260±0.006	53.0	
		10-12	0.236±0.008	38.8	
		12-14	0.246±0.013	44.5	
		14-16	0.238±0.009	40.0	
		16-18	0.243±0.025	43.2	
		18-20	0.257±0.016	51.0	
		20-22	0.184±0.018		
E2 (东海)	1992年9月	0-2	0.251±0.004	47.6	54
		2-4	0.247±0.014	45.1	
		4-6	0.261±0.014	53.2	
		6-8	0.263±0.011	54.4	
		8-10	0.257±0.004	51.2	
		10-12	0.261±0.005	53.1	
		12-14	0.295±0.029	71.2	
		14-16	0.273±0.044	60.8	
		16-18	0.123±0.016		
		18-20	ND		
		20-23	ND		
E3 (东海)	1992年9月	0-2	0.261±0.011	53.2	46
		2-4	0.265±0.002	55.4	
		4-6	0.254±0.011	49.5	
		6-8	0.279±0.011	62.9	
		8-10	0.287±0.013	67.4	
		10-12	0.262±0.006	54.0	
		12-14	0.269±0.017	57.7	
E4 (冲绳海槽)	1995年9月	0-1	0.261±0.001	53.1	54
		1-2	0.235±0.005	38.1	
		2-3	0.239±0.015	40.3	
		3-4	0.232±0.017	35.9	
		4-5	0.264±0.023	55.3	
		5-6	0.283±0.022	65.2	
		6-7	0.320±0.031	83.3	
		7-8	ND		
E5 (冲绳海槽)	1993年5月	0-2	0.210±0.009	22.1	67
		2-4	0.304±0.008	75.8	
		4-6	0.311±0.016	78.8	
		6-8	0.336±0.022	90.1	
		8-10	ND		
		10-12	ND		
E6 (冲绳海槽)	1992年9月	0-2	0.214±0.004	24.6	50
		2-4	0.248±0.030	46.1	
		4-6	0.262±0.016	53.7	
		6-8	0.295±0.016	71.3	
		8-10	0.139±0.016		
		10-12	ND		

表2 南海及邻近海域以及西北太平洋表层水 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值及PPG贡献率

Table 2. $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratios in surface waters of western North Pacific and the South China Sea and its adjacent seas. The relative contributions of PPG are also listed in the table.

采样站点	采样时间	所属海域	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值	PPG 贡献率(%)
P1	1996.12	西北太平洋	0.224 ± 0.021	
P2	1996.12	西北太平洋	0.199 ± 0.026	海域平均 20%
P3	1996.12	西北太平洋	0.202 ± 0.024	
P4	1996.12	西北太平洋	0.201 ± 0.035	
P5	1996.12	苏禄及印尼海	0.229 ± 0.023	
P6	1996.12	苏禄及印尼海	0.235 ± 0.020	海域平均 39%
P7	1996.12	苏禄及印尼海	0.234 ± 0.026	
P8	1996.12	苏禄及印尼海	0.248 ± 0.021	
P9	1997.02	孟加拉湾及安达曼海	0.219 ± 0.028	
P10	1997.02	南海	0.243 ± 0.021	海域平均 42%
P11	1997.02	南海	0.248 ± 0.027	
P12	1997.02	南海	0.234 ± 0.016	

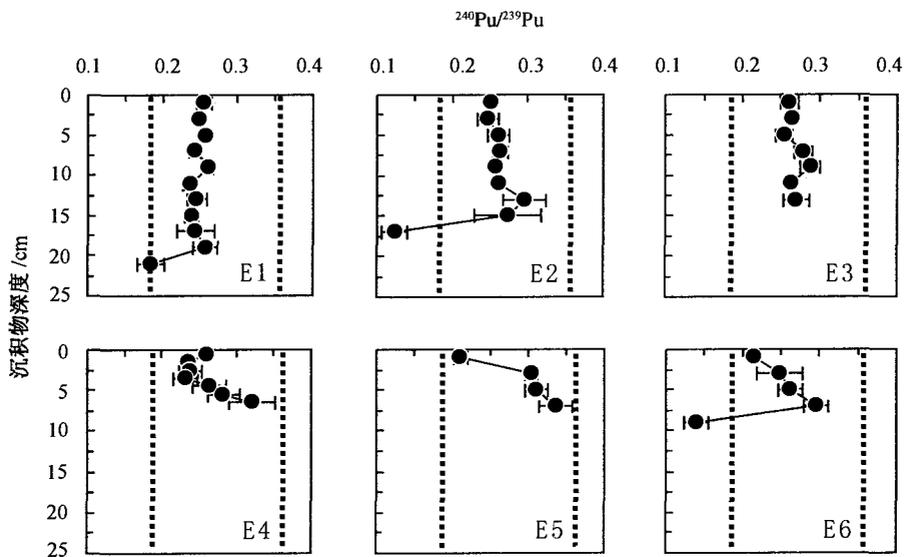
图2 中国东海与冲绳海槽沉积物中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 组成及其随深度变化特征

Fig. 2. Vertical distributions of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratios in sediment cores from the East China Sea and Okinawa Trough.

3 讨论

3.1 中国领海 Pu 来源的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位素判定

如表1和图2所示,东海及冲绳沉积物中整体比大气理论沉降值0.18明显高的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值特征说明,该区域有除全球大气沉降来源之外的、具有高 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值特征的Pu源的加入。目前,据文献报道的具有高 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值的Pu源主要

有PPG(0.36)、切尔诺贝利核事故(0.563)、以及被推断认为的中国核试验释放的Pu(约0.25)^[2,20],但后两者的释放量相对PPG来说微不足道。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值在冲绳海槽沉积物芯中的深度变化特征进一步说明,这一高 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值特征的Pu源的沉降时间几乎在所有Pu开始沉积之初,所以中国核试验(1973-1975)和切尔诺贝利核事故(1986)释放的Pu无论在沉降时间还是在释放量上,都不能解释上述同位素比值及其在沉积物芯中的分布特

征。所以,只有二十世纪50年代初,美国在PPG的核试验释放了数量巨大的具有高 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值特征的Pu进入地球表层^[2,7,20,22]。自1946年6月至1958年10月,在位于北太平洋中部马绍尔群岛的Enewetak和Bikini环礁,美国进行了大量的核爆实验,尤其是当量巨大的热核(氢弹)实验,释放了大量的辐射散落物进入地球表层中^[27]。众多研究也显示,北太平洋海域所接受的PPG来源的Pu远比世界其它海域高得多^[1,5-12],而且具有比全球大气沉降明显高的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值组成特征^[7,20,22]。综上所述,我们可以判定除全球大气沉降外,PPG核试验的Pu也是中国东海及其邻近海域Pu的主要来源之一。

如表2和图3所示,中国南海及其邻近海域,以及西北太平洋表层水体中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值也都明显高于大气沉降值0.18^[21,23]。结合上述对东海沉积物中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值特征及其可能来源的分析,我们也可以认为,上述海域海水也同样接受了除全球大气沉降之外的来自PPG的Pu。

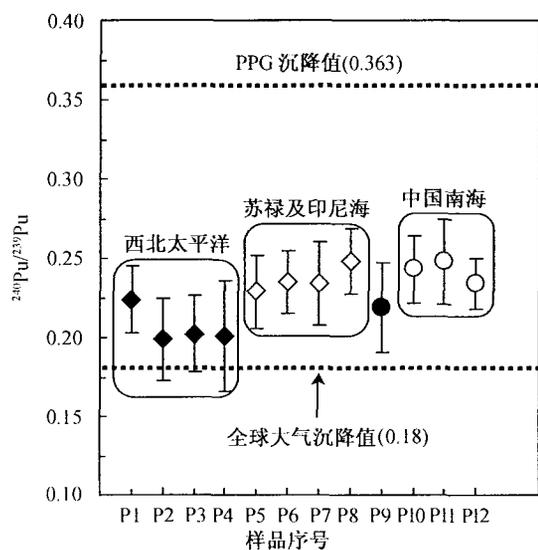


图3 中国南海及其附近海域、以及西北太平洋表层海水中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值分布特征

Fig. 3. The distributions of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratios in the surfacewaters of western North Pacific Ocean and the South China Sea and its adjacent seas.

需指出的是,在东海及冲绳的一些站点(E2, E6)最底层样品中检测到了明显低于大气理论沉降值0.18的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值,说明有较低 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值特征的Pu的加入。根据其沉积层位判断,应该是美国内华达核试验释放的,事件发生时间比

PPG核试验稍早^[2]。Warneke等^[2]对Rothamsted草原草样品和阿尔卑斯冰芯的研究显示,1940年代末至1951,美国在内华达进行的核试验释放了具有较低 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值特征(约0.07)的Pu进入大气层。这一低 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值特征的Pu在大西洋美国沿岸海域被明显观察到^[18],说明内华达核试验释放的Pu已经广泛地从美国大陆向大西洋及欧洲地区扩散。但是在亚洲,尤其是远离内华达的中国领海发现内华达核爆释放的Pu,本研究是首次报道,这说明内华达核试验的Pu在全球的扩散强度要比先前认为的大。

3.2 PPG的Pu向中国领海的主要迁移途径

PPG核爆试验的Pu很大一部分进入对流层而就近散落,但也有相当比例进入大气平流层而近乎全球散落^[3,28]。Kiode等^[20]对南北极冰芯、Warneke等^[2]对英国Rothamsted草样品以及阿尔卑斯冰芯的研究结果也都显示了PPG核试验Pu的散落是全球进行的。但是,东海及冲绳沉积物中比上述草及冰芯样品明显高的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值说明,PPG的Pu一定有除全球大气沉降之外的迁移途径进入中国领海。Donaldson等^[8]和Simon等^[29]的研究显示,PPG的Pu的优先沉降范围主要在离核爆地1000 km以内的海域。所以区域大气沉降也不能解释PPG的Pu是如何到达中国领海的,因为这些海域离PPG都在4000至6000 km范围。

这说明,Pu自PPG向中国领海的迁移肯定有除大气沉降之外的特殊迁移方式,这就是北太平洋赤道环流(英文缩写NEC)运移。马绍尔群岛的核试验基地附近海域,表层海水正好处于NEC控制范围内。NEC是一个厚约300 m、处于北纬10度至赤道之间,沿顺时针方向自东向西迅速运动的北太平洋条带状表层海水洋流。由于PPG散落物核爆时大部分就近沉降,在附近环礁泻湖中形成一个巨大的包括Pu在内的核素储库^[30]。根据Nevisi和Schell^[12]的推算,海水与马绍尔群岛环礁泻湖核素储库发生物质交换而每年带入约222GBq的 $^{239+240}\text{Pu}$ 进入NEC环流系统。Livingston等^[10]和Povinec等^[31]也认为,由于NEC的物质循环作用,来自PPG的Pu已被广泛带到北太平洋的广大海域。NEC沿赤道太平洋北侧向西到达菲律宾群岛附近后,分为向北流的“黑潮”和向南流的棉兰老岛海流,“黑潮”的一个分支通过吕宋海峡将中国南海和太平洋连接起来,从而实现了南海部分物质来自

西太平洋的迁移格局^[32,33]。NEC带来的赤道太平洋物质也会经棉兰老岛海流进入苏禄海印尼海^[34]。南海、苏禄及印尼海表层水²⁴⁰Pu/²³⁹Pu比值比西北太平洋站点略高的结果都充分说明,NEC对PPG的Pu的迁移贡献远比普通海水扩散重要的多。同时,由于P1站点正处于“黑潮”流经带上,其²⁴⁰Pu/²³⁹Pu比值也明显高于P2站点。而位于孟加拉湾及安达曼海的P9站点由于受NEC分支洋流的影响很小,其²⁴⁰Pu/²³⁹Pu比值也比相近的中国南海的P10站点明显低。

3.3 Pu来源的端员模式计算

如上述,全球大气沉降和PPG是中国领海Pu的两大最主要来源,我们可以用两端员混合模式计算来确定两个来源各自所占的大致比例^[21]。其计算公式如下:

$$\frac{(Pu)_P}{(Pu)_G} = \frac{(R_G - R)(1 + 3.6R_P)}{(R - R_P)(1 + 3.6R_G)} \quad (1)$$

$$(Pu)_P + (Pu)_G = 100 \quad (2)$$

这里,(Pu)_P和(Pu)_G分别代表PPG端员和全球大气沉降端员所占的比例;R代表测定的实际样品的²⁴⁰Pu/²³⁹Pu比值;R_P和R_G分别代表PPG端员和全球大气沉降端员的²⁴⁰Pu/²³⁹Pu比值组成。我们引用文献报道的R_G值为0.18^[21,23],R_P值为0.363^[35],通过公式(1)和(2)就可计算出全球大气沉降和PPG来源对中国领海Pu的贡献率。

计算结果显示(表1和表2),东海E1、E2、E3站点沉积物中PPG来源Pu平均分别为46%、54%、57%,冲绳海槽E4、E5、E6站点沉积物中

PPG来源Pu平均分别为54%、67%、50%,东海和冲绳总体平均约55%。这一结果和Bowen等^[5]及Livingston等^[36]先前估计的北太平洋海域Pu总量中可能高达60%来自PPG的观点是基本一致的,也解释了日本、台湾和韩国学者得出的东海沉积物中Pu蓄积总量是大气理论沉降值约2倍的研究结果^[14-16]。对海水的计算结果显示,中国南海、苏禄和印尼海、西北太平洋表层水中PPG来源的Pu所占比例平均分别为42%、39%、20%。

4 结论

(1)东海及冲绳海槽沉积物中²⁴⁰Pu/²³⁹Pu比值主要分布于0.24~0.31之间,中国南海及附近海域以及西北太平洋表层海水中²⁴⁰Pu/²³⁹Pu比值也基本处于0.22~0.24之间,都明显高于全球大气沉降值0.18。分析后认为,上世纪50年代早期美国在PPG进行的核爆实验,是中国领海及其相邻海域除全球大气沉降外的另一重要的Pu的来源。

(2)北太平洋赤道环流及其在西北太平洋的分支洋流是Pu自PPG向中国领海迁移的主要途径。

(3)端员混合模式计算结果显示,东海及冲绳沉积物中约55%、中国南海及附近海域表层水中约40%、西北太平洋表层水中约20%的Pu,都来自美国北太平洋核试验基地的核爆试验。

致谢:感谢日本学术振兴会(JSPS)给予的博士后工作支持。

参 考 文 献

- [1] Zorpette G. Hanford's nuclear wasteland[J]. Scientific American, 1996, 274(5): 88-97
- [2] Warneke T, Croudace I W, Warwick P E, et al. A new ground-level fallout record of uranium and plutonium isotopes for northern temperate latitudes[J]. Earth Planet. Sci. Lett., 2002, 203: 1047-1057
- [3] Machta L, List R J, Hubert L F. World-wide travel of atomic debris[J]. Science, 1956, 124: 474-477
- [4] UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation Exposures to the Public from Man-made Sources of Radiation, Sources and Effects of Ionizing Radiation[R]. United Nations, New York, 2000: 654
- [5] Bowen V T, Noshkin V E, Livingston H D, et al. Fallout radionuclides in the Pacific Ocean: vertical horizontal distributions, largely from GEOSECS Stations[J]. Earth Planet. Sci. Lett., 1980, 49: 411-434
- [6] Hirose K, Sugimura Y, Aoyama M. Plutonium and ¹³⁷Cs in the western North Pacific: Estimation or residence time of plutonium in surface waters[J]. Appl. Radiat. Isot., 1992, 43: 349-359
- [7] Buesseler K O. The isotopic signature of fallout plutonium in the North Pacific[J]. J. Environ. Radioactivity, 1997, 36: 69-83
- [8] Donaldson L R, Seymour A H, Nevissi A E. University of Washington's radioecological studies in the Marshall Islands,

- 1946—1997[J]. *Health Phys.*, 1997, 73: 214—222
- [9] Hamilton T F, Millies-LaCroix J C, Hong G H. ^{137}Cs (^{90}Sr) and Pu isotopes in the Pacific Ocean: sources and trends [A]. In: Guegueniat P, Germain P, Metivier H. *Radionuclides in the oceans, inputs and inventory*[C]. Les Editions de Physique, Les Ulis, 1996: 29—58
- [10] Livingston H D, Povinec P P, Ito T, et al. The behavior of plutonium in the Pacific Ocean[A]. In: Kudo A. *Plutonium in the environment*[C]. Elsevier Science, Amsterdam, 2001: 267—292
- [11] Nakano M, Povinec P P. Modelling the distribution of plutonium in the Pacific Ocean[J]. *J. Environ. Radioactivity*, 2003, 69: 85—106
- [12] Nevissi A, Schell W R. Distribution of plutonium and americium in Bikini Atoll Lagoon[J]. *Health Phys.*, 1975, 28: 539—547
- [13] Kim C K, Kim C S, Chang B U, et al. Plutonium isotopes in seas around the Korean Peninsula[J]. *Sci Total Environ.*, 2004, 318: 197—209
- [14] Lee S-H, Gastaud J, Povinec P P, et al. Distribution of plutonium and americium in the marginal seas of the northwest Pacific Ocean[J]. *Deep-Sea Res. II*, 2003, 50: 2727—2750
- [15] Nagaya Y, Nakamura K. $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in the East China and the Yellow Sea[J]. *J. Oceanogr.*, 1992, 48: 23—25
- [16] Su C-C, Huh C-A. ^{210}Pb , ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$ in the East China Sea sediments: sources, pathways and budgets of sediments and radionuclides[J]. *Mar. Geol.*, 2002, 183: 163—178
- [17] Kim C K, Kim C S, Chang B U, et al. $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratios in the bottom sediments of the NW Pacific Ocean[J]. *J. Radio. Nucl. Chem.*, 2003, 258: 265—272
- [18] Buesseler K O, Sholkovitz E R. The geochemistry of fallout plutonium in the north Atlantic; II. $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratios and their significance[J]. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 1987, 51: 2623—2637
- [19] Ketterer M E, Watson B R, Matisoff G, et al. Rapid Dating of Recent Aquatic Sediments Using Pu Activities and $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ As Determined by Quadrupole Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry[J]. *Environ. Sci. Technol.*, 2002, 36: 1307—1311
- [20] Koide M, Bertine K K, Chow T J, et al. The $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratio, a potential geochronometer[J]. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 1985, 72: 1—8
- [21] Krey P W, Hardy E P, Pachucki C, et al. Mass isotopic composition of global fallout plutonium in soil[A]. *Proceedings of a Symposium on Transuranium Nuclides in the Environment*[C]. IAEA-SM-199—39, 1976, 39: 671—678
- [22] Muramatsu Y, Hamilton T, Uchida S, et al. Measurement of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotopic ratios in soils from the Marshall Islands using ICP-MS[J]. *Sci. Total Environ.*, 2001, 278: 151—159
- [23] Kelley J M, Bond L A, Beasley T M. Global distribution of Pu isotopes and ^{237}Np [J]. *Sci. Total Environ.* 1999, 237/238: 483—500
- [24] Buesseler K O, Halverson J E. The mass spectrometric determination of fallout ^{239}Pu and ^{240}Pu in marine samples [J]. *J. Environ. Radioactivity*, 1987, 5: 425—444
- [25] Muramatsu Y, Uchida S, Tagami K, et al. Determination of plutonium concentration and its isotopic ratio in environmental materials by ICP-MS after separation using ion-exchange and extraction chromatography[J]. *J. Anal. At. Spectrom.*, 1999, 14: 859—865
- [26] Norisuye K, Okamura K, Sohrin Y, et al. Determination of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratio in the ocean by using HR-ICP-MS[J]. *Anal Sci.*, 2001, 17: i29—i32
- [27] Perkins R W, Thomas C W. Worldwide fallout[A]. In: Hanson W C. *Transuranic Elements in the Environment*[M]. Tech. Inf. Center, US Department of Energy, 1980: 53—82
- [28] McMahon C A, Vintroó L L, Mitchell P I, et al. Oxidation-state distribution of plutonium in surface and subsurface waters at Thule, northwest Greenland[J]. *Appl. Radiat. Isot.*, 2000, 52: 697—707
- [29] Simon S L, Graham J C, Borchert A W. Concentrations and spatial distribution of plutonium in the terrestrial environment of the Marshall Islands[J]. *Sci. Total Environ.*, 1999, 229: 21—39
- [30] Robison W L, Noshkin V E. Radionuclide characterization and associated dose from long-lived radionuclides in close-in fallout delivered to the marine environment at Bikini and Enewetak Atolls[J]. *Sci. Total Environ.*, 1999, 237/238: 311—327

- [31] Povinec P P, Livingston H D, Shima S, et al. IAEA'97 expedition to the NW Pacific Ocean-results of oceanographic and radionuclide investigations of the water column[J]. *Deep-Sea Res. II*, 2003, 50: 2607—2637
- [32] Lukas R. Pacific Ocean Equatorial Currents[A]. In: Steele J H, Turekian K K, Thorpe S A. *Encyclopedia of Ocean Sciences*, 4[M]. Academic Press, San Diego, 2001: 2069—2076
- [33] Qiu B. Kuroshio and Oyashio Currents[A]. In: Steele J H, Turekian K K, Thorpe S A. *Encyclopedia of Ocean Sciences*, 3[M]. Academic Press, San Diego, 2001: 1413—1425
- [34] Godfrey S. Indonesian Throughflow and Leeuwin Current[A]. In: Steele J H, Turekian K K, Thorpe S A. *Encyclopedia of Ocean Sciences*, 3[M]. Academic Press, San Diego, 2001: 1309—1313
- [35] Diamond H, Fields P R, Stevens C S, et al. Heavy isotope abundances in the Mike thermonuclear device[J]. *Phys. Rev.*, 1960, 119: 2000—2004
- [36] Livingston H D, Povinec P P. Anthropogenic marine radioactivity[J]. *Ocean and Coastal Management*, 2000, 43: 689—712

SOURCES AND TRANSPORT ROUTE OF PLUTONIUM IN THE CHINA'S SEAS

WANG Zhong-liang^{1,2}, Masatoshi Yamada², ZHENG Jian²

(1. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, No. 46 Guanshui Road, Guiyang 550002; 2. Nakaminato Laboratory for Marine Radioecology, National Institute of Radiological Sciences, Isozaki 3609, Hitachinaka, Ibaraki 311-1202, Japan)

Abstract

²⁴⁰Pu/²³⁹Pu isotopic ratios in the East China Sea and Okinawa Trough sediments and in the South China Sea and western North Pacific surface seawaters were determined by inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) to constrain the sources and transport route of plutonium in China's seas. The results showed that ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu ratios ranging from 0.24 to 0.31 in the East China Sea and Okinawa sediments, from 0.22 to 0.24 in the South China Sea and western North Pacific Ocean surface waters, were significantly higher than the reported value of 0.18 for global fallout. These ratios suggested that US nuclear weapon tests in the early 1950's at the Pacific Proving Grounds in the Marshall Islands provided a major source of plutonium in China's seas and adjacent seas, in addition to the global fallout source. The calculated results by the two end-member mixing model showed that the contributions of the Pacific Proving Grounds close-in fallout plutonium account for 55% in the East China Sea and Okinawa Trough sediments, 40% in the South China Sea and 20% in western North Pacific Ocean surface waters of the total plutonium inventories. It was proposed that close-in fallout plutonium was delivered from the Pacific Proving Grounds test sites by the North Pacific Equatorial Circulation system and its branch currents in western North Pacific Ocean.

Key words: plutonium; China's seas; Pacific Proving Grounds; North Equatorial Current