

学校编码: 10384

密级\_\_\_\_\_

学 号: 22620100153617

厦 门 大 学

博 士 学 位 论 文

中国海铯 ( $^{137}\text{Cs}$ ) 和钚 ( $^{239+240}\text{Pu}$ ) 的来  
源和储量

Sources and Inventory of Cesium and Plutonium in the  
China Seas

吴俊文

指导教师姓名: 戴民汉 教授  
郑建 研究员

专 业 名 称: 环 境 科 学  
论文提交日期: 2014 年 12 月  
论文答辩时间: 2015 年 01 月

2015 年 05 月

**Sources and Inventory of Cesium and Plutonium in the  
China Seas**

By

Junwen Wu

Under the supervision of

Dr. Minhan Dai

Dr. Jian Zheng

A Dissertation Submitted to the Graduate School of Xiamen University

For the Degree of

Doctor of Philosophy

College of the Environment and Ecology

Xiamen, Fujian

May 2015

**答辩委员会主席：**

郑建 研究员  
(日本独立行政法人放射线医学综合研究所)

郑建

**答辩委员会委员：**

刘康克 教授  
(台湾“中央”大学)  
陈立奇 研究员  
(国家海洋局第三海洋研究所)  
高树基 教授  
(厦门大学海洋与地球学院)  
王大志 教授  
(厦门大学环境与生态学院)  
蔡平河 教授  
(厦门大学海洋与地球学院)  
杨伟锋 教授  
(厦门大学海洋与地球学院)

刘康克  
陈立奇  
高树基  
王大志  
蔡平河  
杨伟锋

**论文评审人：**

潘少明 教授  
(南京大学)  
侯小琳 研究员  
(中科院地球环境研究所)  
杜金洲 教授  
(华东师范大学)

潘少明  
侯小琳  
杜金洲

**论文指导教师：**

戴民汉 教授  
(厦门大学海洋与地球学院)  
郑建 研究员  
(日本独立行政法人放射线医学综合研究所)

戴民汉  
郑建

日期：2015.1.20

## 厦门大学学位论文原创性声明

本人呈交的学位论文是本人在导师指导下，独立完成的研究成果。本人在论文写作中参考其他个人或集体已经发表的研究成果，均在文中以适当方式明确标明，并符合法律规范和《厦门大学研究生学术活动规范（试行）》。

另外，该学位论文为（厦门大学海洋碳循环）课题（组）的研究成果，获得（厦门大学海洋碳循环）课题（组）经费或实验室的资助，在（厦门大学海洋碳循环）实验室完成。（请在以上括号内填写课题或课题组负责人或实验室名称，未有此项声明内容的，可以不作特别声明。）

声明人（签名）：

年 月 日

## 厦门大学学位论文著作权使用声明

本人同意厦门大学根据《中华人民共和国学位条例暂行实施办法》等规定保留和使用此学位论文，并向主管部门或其指定机构送交学位论文（包括纸质版和电子版），允许学位论文进入厦门大学图书馆及其数据库被查阅、借阅。本人同意厦门大学将学位论文加入全国博士、硕士学位论文共建单位数据库进行检索，将学位论文的标题和摘要汇编出版，采用影印、缩印或者其它方式合理复制学位论文。

本学位论文属于：

(        ) 1.经厦门大学保密委员会审查核定的保密学位论文，于  
年    月    日解密，解密后适用上述授权。

(  ) 2.不保密，适用上述授权。

（请在以上相应括号内打“√”或填上相应内容。保密学位论文应是已经厦门大学保密委员会审定过的学位论文，未经厦门大学保密委员会审定的学位论文均为公开学位论文。此声明栏不填写的，默认为公开学位论文，均适用上述授权。）

声明人（签名）：

年    月    日

目录

摘要.....	I
Abstract.....	IV
第 1 章 绪论.....	1
1.1 海洋中 $^{137}\text{Cs}$ 和 $^{239+240}\text{Pu}$ 的来源和分布.....	2
1.1.1 铯 ( $^{137}\text{Cs}$ ) 和钚 ( $^{239+240}\text{Pu}$ ) 同位素.....	2
1.1.2 $^{137}\text{Cs}$ 和 $^{239+240}\text{Pu}$ 的来源.....	4
1.1.3 海洋 $^{137}\text{Cs}$ 和 $^{239+240}\text{Pu}$ 的分布.....	8
1.2 应用 $^{137}\text{Cs}$ 和 $^{239+240}\text{Pu}$ 示踪海洋学过程.....	11
1.2.1 $^{137}\text{Cs}$ 示踪水团运动 .....	11
1.2.2 利用 Pu 同位素组成溯源 .....	12
1.3 中国海 $^{137}\text{Cs}$ 和 $^{239+240}\text{Pu}$ 的研究现状和存在问题.....	13
1.3.1 海水.....	13
1.3.2 沉积物.....	15
1.4 科学问题及研究内容和目标.....	17
1.5 论文框架.....	18
第 2 章 研究区域和方法.....	20
2.1 研究区域概况.....	20
2.1.1 东海.....	20
2.1.2 南海.....	20
2.2 样品采集.....	23
2.3 分析方法.....	23
2.3.1 Pu 同位素测定 .....	23
2.3.2 $^{137}\text{Cs}$ 的测定 .....	30
2.3.3 其它参数的测定.....	32
第 3 章 从人为放射性核素 $^{137}\text{Cs}$ 看福岛核事故对中国海的影响 .....	33

3.1 引言.....	33
3.2 研究区域和样品采集.....	34
3.3 结果和讨论.....	36
3.3.1 中国海 $^{137}\text{Cs}$ 活度 .....	36
3.3.2 中国海 $^{137}\text{Cs}$ 分布特征 .....	37
3.3.3 福岛核事故对中国海 $^{137}\text{Cs}$ 影响程度分析 .....	39
3.4 小结.....	45
<b>第 4 章 南海北部沉积物 Pu 的来源与储量 .....</b>	<b>46</b>
4.1 引言.....	46
4.2 研究区域和样品采集.....	48
4.2.1 研究区域.....	48
4.2.2 样品采集.....	49
4.3 结果与讨论.....	53
4.3.1 南海北部沉积物中 Pu 同位素组成 .....	53
4.3.2 南海北部 Pu 源输入的时间变化 .....	61
4.4 小结.....	71
<b>第 5 章 中国海海水中 Pu 的来源与储量 .....</b>	<b>72</b>
5.1 引言.....	72
5.2 研究区域和样品采集.....	73
5.3 结果与讨论.....	77
5.3.1 中国海海水中 Pu 同位素组成 .....	77
5.3.2 中国海海水 $^{239+240}\text{Pu}$ 的储量.....	85
5.4 小结.....	91
<b>第 6 章 结论与展望 .....</b>	<b>92</b>
6.1 论文总结.....	92
6.2 特色和创新.....	93
6.3 尚未解决的科学问题和展望.....	94

---

参考文献.....	95
致谢.....	120
附录 1 攻读博士学位期间参加的研究课题.....	124
附录 2 攻读博士学位期间参加的学术会议与交流.....	125
附录 3 攻读博士期间发表的论文.....	126
附录 4 已发表文章 “Impacts of the Fukushima nuclear accident on the China Seas: Evaluation based on anthropogenic radionuclide $^{137}\text{Cs}$ ” .....	127
附录 5 已发表文章 “Isotopic composition and distribution of plutonium in northern South China Sea sediments revealed continuous release and transport of Pu from the Marshall Islands” .....	127



**Table of Contents**

<b>Abstract (in Chinese)</b> .....	I
<b>Abstract (in English)</b> .....	IV
<b>Chapter 1 Introduction</b> .....	1
1.1 Sources and distributions of $^{137}\text{Cs}$ and $^{239+240}\text{Pu}$ in the ocean .....	2
1.1.1 Cesium and Plutonium isotopes .....	2
1.1.2 Sources of $^{137}\text{Cs}$ and $^{239+240}\text{Pu}$ .....	4
1.1.3 Distributions of $^{137}\text{Cs}$ and $^{239+240}\text{Pu}$ .....	8
1.2 Applications of $^{137}\text{Cs}$ and $^{239+240}\text{Pu}$ in the ocean .....	11
1.2.1 Tracing water mass transport using $^{137}\text{Cs}$ .....	11
1.2.2 Identifying the Pu source using Pu isotopic compositions .....	12
1.3 Research status of $^{137}\text{Cs}$ and $^{239+240}\text{Pu}$ in the China Seas .....	13
1.3.1 Seawater .....	13
1.3.2 Sediment .....	15
1.4 Scientific hypotheses and objective of this study .....	17
1.5 Research framework .....	18
<b>Chapter 2 Study area and methodology</b> .....	20
2.1 Study area .....	20
2.1.1 East China Sea .....	20
2.1.2 South China Sea .....	20
2.2 Cruises and sampling .....	23
2.3 Analysis .....	23
2.3.1 Pu isotopes .....	23
2.3.2 $^{137}\text{Cs}$ .....	30
2.3.3 Other parameters .....	32
<b>Chapter 3 Impacts of the Fukushima nuclear accident on the China Seas: Evaluation based on anthropogenic radionuclide <math>^{137}\text{Cs}</math></b> .....	33
3.1 Introduction .....	33

3.2 Study area and sampling.....	34
3.3 Results and discussion .....	36
3.3.1 $^{137}\text{Cs}$ activities in the China Seas .....	36
3.3.2 Distributions of $^{137}\text{Cs}$ in the China Seas .....	37
3.3.3 Impact of $^{137}\text{Cs}$ derived from the Fukushima nuclear accident .....	39
3.4 Summary .....	45
<b>Chapter 4 Sources and inventory of Pu in the northern South China Sea sediments.....</b>	<b>46</b>
4.1 Introduction .....	46
4.2 Study area and sampling.....	48
4.2.1 Study area.....	48
4.2.2 Sampling .....	49
4.3 Results and discussion .....	53
4.3.1 Pu isotopic compositions in the northern South China Sea sediments .....	53
4.3.2 Temporal variations of Pu isotopes in the northern South Sea .....	61
4.4 Summary .....	71
<b>Chapter 5 Sources and inventory of Pu in the China Seas .....</b>	<b>72</b>
5.1 Introduction .....	72
5.2 Study area and sampling.....	73
5.3 Results and discussion .....	77
5.3.1 Pu isotopic compositions in the China Seas .....	77
5.3.2 $^{239+240}\text{Pu}$ inventory in the China Seas.....	85
5.4 Summary .....	91
<b>Chapter 6 Conclusions and outlook .....</b>	<b>92</b>
6.1 Conclusions .....	92
6.2 Innovations.....	93
6.3 Prospect .....	94
<b>References.....</b>	<b>95</b>

<b>Acknowledgements</b> .....	120
<b>Appendix 1 Projects participated during Ph.D study</b> .....	124
<b>Appendix 2 Conferences participated during Ph.D study</b> .....	125
<b>Appendix 3 Publications</b> .....	126
<b>Appendix 4 “Impacts of the Fukushima nuclear accident on the China Seas: Evaluation based on anthropogenic radionuclide <sup>137</sup>Cs”</b> .....	127
<b>Appendix 5 “Isotopic composition and distribution of plutonium in northern South China Sea sediments revealed continuous release and transport of Pu from the Marshall Islands”</b> .....	127

## 摘要

1940 年代以来,核工业发展迅速, $^{137}\text{Cs}$  和  $^{239+240}\text{Pu}$  等人为放射性核素通过多种途径进入海洋环境,引起广泛关注。本论文缘起 2011 年发生的福岛第一核电站事故,基于  $^{37}\text{Cs}$  和  $^{239+240}\text{Pu}$  评估了福岛第一核电站事故对中国海的影响;与此同时,通过对中国海沉积物和海水中  $\text{Pu}$  同位素组成的研究,查明了中国海  $\text{Pu}$  的主要来源和储量。

2011 年 3 月在日本福岛第一核电站发生的核泄漏事故,是历史上最严重的海洋核事故,引起了国际社会和公众的高度关注,甚至在日本之外也曾引起社会恐慌。中国海位于北太平洋西部,福岛核事故排入太平洋的放射性物质由于受北向之黑潮的阻隔难以在短时间内直接传输进入中国海,而释放至大气的放射性物质通过大气传输是其快速进入中国海的主要途径。为了评估福岛核事故释放的放射性物质对中国海的影响,我们研究了两种人为放射性核素,分别是海洋中人为放射性核素丰度最高的  $^{137}\text{Cs}$  和环境敏感度最高的  $^{239+240}\text{Pu}$  在中国海的丰度与储量。

首先,福岛核事故发生后我们迅速启动监测调查航次,于 2011 年 4 月至 6 月在中国海采集了海水样品,用低本底  $\gamma$  能谱测定了  $^{137}\text{Cs}$  活度,并重点分析了其对东海的影响。结果表明,在观测期,中国海  $^{137}\text{Cs}$  活度为  $0.75\text{-}1.43\text{ Bq m}^{-3}$ ,平均为  $1.12\pm 0.08\text{ Bq m}^{-3}$ ;东海 DH23 站水柱  $^{137}\text{Cs}$  储量为  $93\text{ Bq m}^{-2}$ ,停留时间为 45-95 天,平均为 66 天;东海  $^{137}\text{Cs}$  大气输入通量为  $5.4\text{-}42.9\text{ mBq m}^{-2}\text{ d}^{-1}$ ,平均为  $32.2\text{ mBq m}^{-2}\text{ d}^{-1}$ ,大气输入量为  $1.89\times 10^{12}\text{ Bq}$ ,占东海  $^{137}\text{Cs}$  总量的 4.7%。东海表层  $^{137}\text{Cs}$  水平分布表现为内陆架最高,沿岸和外陆架均较低;在垂直分布上, $^{137}\text{Cs}$  在表层最高,并呈随深度逐渐降低的趋势。这种分布特征主要受控于  $^{137}\text{Cs}$  大气沉降输入以及随后的不同水团间的混合效应。如果将福岛核事故和切尔诺贝利事故对中国海的影响进行比较,结果表明福岛核事故对东海  $^{137}\text{Cs}$  的影响小于切尔诺贝利事故。

其次,本论文比较了福岛核事故发生前后南海北部表层沉积物  $^{239+240}\text{Pu}$  活度和  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子比,结果显示福岛核事故前后  $^{239+240}\text{Pu}$  活度和  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子比几乎相同,表明来自福岛核事故的  $\text{Pu}$  对南海北部的影响基本可以忽略。总体而言,基于人为放射性核素  $^{137}\text{Cs}$  和  $^{239+240}\text{Pu}$  的研究,我们得出福岛核事故对中国海的影响是

微弱的。

为了查明中国海人为放射性核素 Pu 的来源, 我们分别对中国海沉积物和海水中 Pu 同位素组成进行了研究, 旨在根据  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子比追溯 Pu 的来源。首先, 通过 2009 年和 2012 年航次调查, 测定了南海北部及其邻近海域珠江口沉积物中 Pu 同位素组成, 给出了它们的活度水平和分布趋势。在南海北部陆架区, 表层沉积物  $^{239+240}\text{Pu}$  活度范围为 0.157-0.789  $\text{mBq g}^{-1}$ , 平均为  $0.501 \pm 0.010 \text{ mBq g}^{-1}$  ( $n=19$ ), 水平分布表现为从近岸至内陆架先增加, 随后从内陆架至外陆架降低;  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子比为 0.246-0.281, 平均为  $0.268 \pm 0.012$  ( $n=19$ ), 水平分布表现为从近岸向外陆架增加。基于南海北部陆架区表层沉积物  $^{239+240}\text{Pu}$  活度和  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子比的水平分布特征, 表明南海 Pu 同位素同时源自全球性沉降 (global fallout) 和区域性沉降 (close-in fallout), 而后者和美国于 1952-1958 年期间在太平洋马绍尔群岛大气核爆试验 (Pacific Proving Grounds, PPG) 有关, 并支持科学假设, 即 PPG 释放的 Pu 经北赤道流和黑潮的携带进入西北太平洋及其邻近边缘海。在珠江口, 表层沉积物  $^{239+240}\text{Pu}$  活度表现较大的变化, 范围为 0.026-0.312  $\text{mBq g}^{-1}$ , 平均为  $0.098 \pm 0.003 \text{ mBq g}^{-1}$  ( $n=9$ ),  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子比为 0.186-0.244, 平均为  $0.212 \pm 0.021$  ( $n=9$ ), 水平分布均表现为从下游至上游 (河口至陆地) 逐渐降低, 该分布趋势进一步支持 Pu 主要源自太平洋黑潮入侵的贡献而不是陆地。与此同时, 应用两端元模型量化了 PPG 的贡献, 结果表明 PPG 对南海北部陆架区和珠江口沉积物中 Pu 的贡献量分别为  $68\% \pm 1\%$  和  $30\% \pm 5\%$ 。此外, 通过对南海北部沉积物柱状样中  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{210}\text{Pb}$  和  $^{239+240}\text{Pu}$  的研究, 剖析了自 1940 年代以来南海 Pu 来源的时间变化, 提出 PPG 释放的 Pu 通过北赤道流和黑潮输入中国海当今仍然持续存在; 最后, 估算了南海北部陆架区沉积物中  $^{239+240}\text{Pu}$  储量为  $365.6 \pm 3.0 \text{ Bq m}^{-2}$ 。

为了证实 PPG 释放的 Pu 通过北赤道流和黑潮输入中国海现在是否持续存在, 并比较 PPG 对中国海沉积物和海水贡献的差别, 我们分别于 2011 年 (春季)、2012 年 (春季和夏季) 和 2014 年 (春季) 四个航次采集了中国海海水和吕宋海峡附近的黑潮水, 测定了表层海水和水柱中  $^{239+240}\text{Pu}$ 。结果表明, 在东黄海表层海水  $^{239+240}\text{Pu}$  活度范围为 2.000-2.951  $\text{mBq m}^{-3}$ , 平均为  $2.544 \pm 0.021 \text{ mBq m}^{-3}$  ( $n=7$ ); 南海表层海水  $^{239+240}\text{Pu}$  活度范围为 1.594-2.940  $\text{mBq m}^{-3}$ , 平均为  $2.354 \pm 0.012 \text{ mBq m}^{-3}$  ( $n=19$ )。

与此同时，在 2011-2014 年对中国海表层海水的连续调查中均观测到较高的  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子比 (0.184-0.250)，并且  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子比分布和黑潮对南海 Pu 贡献的分布均表现为随黑潮入侵路径向近岸逐渐降低，证实了中国海 Pu 源自 PPG 经北赤道流和黑潮的输入，并且该输入持续存在。另外，在 2011 年东海水柱和 2012 年南海水柱 (1000 米以浅) 中均观测到较高  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子比 (0.216-0.248)，也进一步证实了 PPG 的贡献持续存在。最后，估算了 2011 年东海 DH23 站和 2012 年南海 SEATS 站 (1000 米以浅) 水柱中  $^{239+240}\text{Pu}$  储量分别为  $0.291 \pm 0.002 \text{ Bq m}^{-2}$  和  $11.650 \pm 0.031 \text{ Bq m}^{-2}$ 。

综上，基于  $^{37}\text{Cs}$  和  $^{239+240}\text{Pu}$  的分布与储量，福岛核事故对中国海的影响是微弱的；基于中国海沉积物和海水中 Pu 同位素组成特征，中国海 Pu 同位素主要源自全球性沉降 (global fallout) 和 PPG 的区域性贡献 (close-in fallout from PPG)，并证实 PPG 通过北赤道流和黑潮输入中国海的 Pu 源当今仍然持续存在。

**关键词：**中国海；福岛第一核电站事故；黑潮； $^{137}\text{Cs}$ ； $^{239+240}\text{Pu}$

## Abstract

As anthropogenic radionuclides,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239+240}\text{Pu}$  have been intentionally and/or accidentally introduced into the marine environment since the nuclear era in the early 1940s through various human activities including above-ground nuclear tests, nuclear accidents and reprocessing of nuclear materials. This has caused major concerns both from the general public and the academic community. This study sought to evaluate the impact of the 2011 Fukushima nuclear accident on the China Seas based on anthropogenic radionuclides  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239+240}\text{Pu}$ , and to identify the sources of Pu in the China Seas through examining Pu isotopic compositions in both the sediments and water column.

The earthquake in Tohoku, Japan and its subsequent tsunami of March, 2011, resulted in unprecedented radioactivity release from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plants (FDNPP) to the northwest Pacific Ocean, which has been concerned by both the international community and the general public. The China Seas are marginal seas of the northwest Pacific Ocean and located to the southwest of Japan. Direct release of contaminants from FDNPP into the China Seas would not be very likely due to the strong west boundary ocean current-Kuroshio, which flows northeastwardly along the boundary off the China Seas. Atmospheric deposition was thus thought to be the main introduction route for the nuclides released into the China Seas. In order to evaluate the impact of the FDNPP accident on the China Seas, we investigated the  $^{137}\text{Cs}$  activity levels and Pu isotopic compositions in the China Seas.

We collected the seawater samples from the South China Sea (SCS), the East China Sea (ECS) and the Yellow Sea (YS) in April-June 2011, one month after the Fukushima nuclear accident. The  $^{137}\text{Cs}$  activities were measured using low-background  $\gamma$ -spectrometry. The  $^{137}\text{Cs}$  activities in the investigated area ranged from 0.75 to 1.43 Bq m<sup>-3</sup>, with an average of  $1.12 \pm 0.08$  Bq m<sup>-3</sup>. The  $^{137}\text{Cs}$  activities initially increased from the nearshore to the inner shelf, and subsequently decreased from the inner shelf to the outer shelf. Vertical profiles showed higher  $^{137}\text{Cs}$  activities at the surface but lower activities at depth in the ECS, suggesting atmospheric input of  $^{137}\text{Cs}$ . As such, the distribution pattern of  $^{137}\text{Cs}$  in the ECS was presumably

determined by a combination of atmospheric deposition and subsequent mixing between different water masses including the coastal currents, the Yangtze River plume and the Taiwan Warm Currents. Based on the inventory of  $93 \text{ Bq m}^{-2}$  and the atmospheric deposition flux of  $^{137}\text{Cs}$  in the ECS of  $32.2 \text{ mBq m}^{-2} \text{ d}^{-1}$  ( $5.4\text{-}42.9 \text{ mBq m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ ), we derived the residence time of  $^{137}\text{Cs}$  in the upper water column to be 66 days (45-95 days). Meanwhile, we also concluded that in terms of  $^{137}\text{Cs}$ , the ECS was less impacted by the Fukushima accident as compared to the Chernobyl accident. The released amount of  $^{137}\text{Cs}$  into the ECS from the Fukushima accident was minute. Secondly, we found both the  $^{239+240}\text{Pu}$  activities and the  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios were almost identical before and after the FDNPP accident on the northern South China Sea (NSCS) shelf, indicating that the contribution of Fukushima-derived Pu, if any, to the NSCS was negligible or the input flux of  $^{239+240}\text{Pu}$  was too small to alter the Pu isotopic compositions. Consequently, based on the activity levels of the radionuclide  $^{137}\text{Cs}$  and Pu isotopic compositions in the China seas, we concluded that the impacts of FDNPP accident on the China Seas were minute.

In order to examine the Pu sources in the China Seas, we investigated the Pu isotopic compositions in both the sediments and the seawater of the China Seas. Firstly, we determined the  $^{239+240}\text{Pu}$  activities and  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios in the sediments collected in the NSCS shelf and its adjacent Pearl River Estuary (PRE) during 2009 and 2012 cruises. On the NSCS shelf, the  $^{239+240}\text{Pu}$  activities in surface sediments ranged from  $0.157$  to  $0.789 \text{ mBq g}^{-1}$ , with an average of  $0.501 \pm 0.010 \text{ mBq g}^{-1}$  ( $n=19$ ), the distribution of  $^{239+240}\text{Pu}$  showed an increase from the outer shelf to the inner shelf, followed by a decrease from the inner shelf toward the shore. The  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios ranged from  $0.246$  to  $0.281$ , with an average of  $0.268 \pm 0.012$  ( $n=19$ ), the distribution of  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios showed a shoreward decrease from the outer shelf. Such pattern of Pu isotopic compositions indicated that Pu on the NSCS shelf is sourced from a combination of global fallout and close-in fallout from the Pacific Proving Grounds (PPG) in the Marshall Islands, where above-ground nuclear weapons testing was carried out between 1952 and 1958, supporting the previous hypothesis that Pu releasing from the PPG can be transported long distances to the western Pacific Ocean and flowed into its adjacent marginal seas by the North



Degree papers are in the “[Xiamen University Electronic Theses and Dissertations Database](#)”.

Fulltexts are available in the following ways:

1. If your library is a CALIS member libraries, please log on <http://etd.calis.edu.cn/> and submit requests online, or consult the interlibrary loan department in your library.
2. For users of non-CALIS member libraries, please mail to [etd@xmu.edu.cn](mailto:etd@xmu.edu.cn) for delivery details.