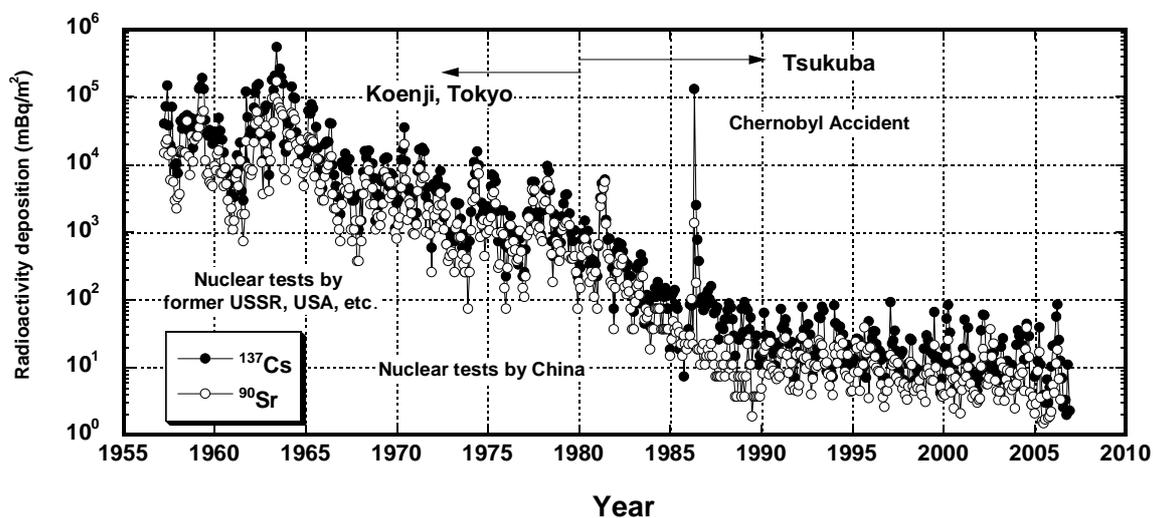


# Artificial Radionuclides in the Environment 2007

## 環境における人工放射能の研究 2007



Geochemical Research Department, Meteorological Research Institute,  
JAPAN

December 2007

気象研究所 地球化学研究部

DUMMY

## 「環境における人工放射能の研究 2007」について

気象研究所地球化学研究部では、1954 年以来、50 年以上に亘り、大気・海洋を主な分野として環境放射能の研究を実施して参りました。その研究成果を、関係省庁の担当者の方々及び大学や試験研究機関の研究者の方々に広く知って頂くために、本論文集を発刊しています。本論文集では、最近の論文（主に英語論文）をテーマ毎に分類して、簡単な日本語の解説を加えて、一冊にまとめています。

過去 50 年間に実施されてきた研究成果を、全体として理解していただくために、過去から現在までの成果をテーマ毎に記述しました。なお、本年は降下物の核種分析を開始して 50 年の節目に当るため、過去 50 年以上にわたる環境放射能研究の歴史の中で重要な論文を再録しました。なお、放射能調査研究費による実際の課題名は巻末に一覧表で示しました。

本論文集が環境放射能研究や環境放射能影響評価の基礎資料として、皆様に活用していただければ幸いです。

最後に、本研究を推進するに当り、御協力頂いた多くの気象官署の職員の皆様及び気象研究所の職員の皆様に深く感謝致します。

なお、この研究は文部科学省放射能調査研究費で実施しています。

平成 19 年 12 月

気象研究所地球化学研究部長 廣瀬勝己

DUMMY

## 序

気象研究所地球化学研究部では、1954 年以来、環境放射能の観測・測定法の開発、放射能汚染の実態の把握、大気や海洋における物質輸送解明のトレーサーとしての利用を目的として環境放射能の研究を実施してきた。1957 年以降、原子力及び放射能に関する行政は旧科学技術庁（現在は文部科学省）が所管することとなり、各省庁がそれぞれの所掌で実施してきた環境放射能調査研究関連業務は放射能調査研究費によって統一的に実施することとなった。気象研究所地球化学研究部では、環境中の人工放射性核種の分布とその挙動を 50 年以上にわたって観測・研究してきた。このような長期にわたる観測・研究の結果、環境放射能について世界的に他に類を見ない貴重な時系列データを内外に提供すると共に、様々な気象学・海洋学的発見をもたらしてきている。この間の研究成果は 200 編以上の論文として内外の雑誌で公表されている。

1954 年 3 月 1 日に米国によりビキニ環礁で行われた水爆実験により、危険水域外で操業していた第五福竜丸乗組員が放射性物質を含む降灰（いわゆる死の灰）による被曝を受けた事件を契機にして、日本における環境放射能研究が本格的に始まった。当時の地球化学研究室は環境の放射能を分析・研究できる日本で有数の研究室であり、三宅泰雄の指導のもと、海洋及び大気中の放射能汚染の調査・研究に精力的に取り組んだ。その結果、当時予想されていなかった海洋の放射能汚染、さらに大気を経由して日本への影響など放射能汚染の拡大の実態を明らかにすることができた。1958 年から、放射能調査研究費による特定研究課題の一つである「放射化学分析（落下塵・降水・海水中の放射性物質の研究）」を開始し、札幌、仙台、東京、大阪、福岡の五つの管区气象台、秋田、稚内、釧路、石垣島の 4 地方气象台、輪島、米子の 2 測候所の全国 11 気象官署及び観測船で採取した大気及び海水中の人工放射性核種（ $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^3\text{H}$  及びプルトニウム）の分析を実施してきた。

大気中の人工放射性核種の降下量は 1961 年から 1962 年に行われた大規模大気圏核実験の翌年の 1963 年に最大値を観測した。その後、「部分的核実験禁止条約」の締結により米ソの大気圏核実験が中止された結果、降下量はおよそ 1 年の半減滞留時間で減少した。この放射性核種の降下量の時間変化は成層圏に打ち上げられた物質の成層圏での滞留時間を反映している。その後、中国及びフランスにより大気圏核実験は続けられ、人工放射性核種の降下量は増減を繰り返した。1980 年、最後の中国大気圏核実験の後、放射性フォールアウトは成層圏の滞留時間で減少し、1985 年には 1957 年の観測開始以降最も低いレベルになった。しかし、1986 年、旧ソ連のチェルノブイリ原子力発電所事故により、大気中の人工放射性核種濃度（特に揮発性の高い  $^{131}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  など）は日本でも 1963 年に近いレベルに達するほど著しく増加した。大部分の放射性核種は対流圏の滞留時間（25 日）で減少したが一部  $^{137}\text{Cs}$  は成層圏にも輸送されていることが分かった。1988 年以降は低いレベルで推移しているが、明瞭な減少の傾向は見られない。この原因は一度地上に降下した放射性核種の再浮遊に由来すると考えている。さらに、再浮遊がどこで起るかについて研究を進め、有力な候補として東アジア大陸で発生する黄砂の可能性が高いことを明らかにした。黄砂の発生は大陸域の環境変化と関連しており、降下物中の人工放射性核種は大陸域の環境変化の指標となりうるということが分かってきた。

大気フォールアウトの研究と共に、海洋における放射性核種の挙動の調査研究も実施している。気象研究所では日本周辺海域ばかりでなく、太平洋の広域に亘って海水試料の採取を実施し、放射能汚染の実態を明らかにした。1960 年代後半から 1970 年代の調査で、海洋表面水中の放射能が北半球中緯度に高い緯度分布をしていることを明らかにし、フォールアウトの緯度分布を反映していることが分かった。最近では、海洋表面水中の放射性核種は海洋の物質循環に支配されていることが分かってきた。さらに、海水中の人工放射性核種の分析法の高度化を実現し少試料量で分析可能にした。その結果、海洋の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の精密鉛直断面を描くことが

でき、核実験由来の  $^{137}\text{Cs}$  の主な部分は北太平洋の亜熱帯中層に存在していることを明らかにした。ファールアウトによる人工放射性核種の海洋への主な降下以来 40 年以上経過し、その広がりには北太平洋から、インド洋など他の海盆に及んでいる。これに関連して 2003 - 4 年に実施された BEAGLE2003 の航海で採取された海水について人工放射性核種の分析を行った結果、その広がりについて知見が得られつつある。1993 年旧ソ連/ロシアによる放射性廃棄物の日本海等への海洋投棄の実態が明らかにされ、それに伴う日本海の放射能調査の実施に参加した。放射能廃棄物による影響は検出されなかったが、調査の結果を踏まえ、日本海における固有水の生成過程及び生成場所（ウラジオストック沖）についての知見を得ることができた。

1990 年以降の環境放射能汚染として、1997 年の動力炉核燃料開発事業団「アスファルト固化処理施設」の火災爆発事故や 1999 年の JCO ウラン燃料工場の臨界事故がある。いずれも環境中に放出された放射能汚染は極めて低いレベルで環境への影響は殆どなかったものの、環境の放射能汚染は過去の問題ではない。従って、今後とも、環境放射能調査・研究は重要であると考えられる。

2006 年より、気象研究所では放射能調査研究費による特定研究課題として「放射性降下物の長期変動と再浮遊に関する研究」及び「海洋環境における放射性核種の長期挙動に関する研究」の 2 課題で環境放射能研究に取り組んでいる。また、大気中の  $^{85}\text{Kr}$  の測定装置開発研究については 2005 年で成功裏に終了した。現在、この技術に基づき、日本の大気中の  $^{85}\text{Kr}$  濃度の監視については、(財)日本分析センターが実施している。

2007 年 12 月

気象研究所 地球化学研究部

# Contents

1. Radioactive fallout in Japan since 1957.....	1
2. Radioactive gases observed at Tsukuba, Japan.....	13
3. Artificial radionuclides in the world ocean.....	15
4. Plutonium in fallout and seawater.....	67
5. 50 years of artificial radionuclides in the environment.....	73
Publication list 1954-2007.....	157
Publication list (in Japanese) 1954-2007.....	169
History of the studies at Meteorological Res. Inst. ....	173
Publications appeared in “Artificial radionuclides in the Environment 2005”.....	175
Publications appeared in “Artificial radionuclides in the Environment 2003”.....	177
Publications appeared in “Artificial radionuclides in the Environment 1954-2001”.	178
Publications appeared in “Artificial radionuclides in the Environment 1954-1999”.	180

# 目次

1. 人工放射性降下物( 死の灰のゆくえ ).....	1
2. 茨城県つくば市における大気中の放射性希ガスの観測.....	13
3. 海水中の人工放射能 – 世界の海洋について.....	15
4. 大気降下物及び海水中のプルトニウム.....	67
5. 環境における人工放射能 50 年： <sup>90</sup> Sr、 <sup>137</sup> Cs 及びプルトニウム降下物	73
論文リスト( 英文誌 )1954-2007.....	157
論文リスト( 和文誌 )1954-2007.....	169
表：研究の歴史 1954-2007.....	173
環境における人工放射能の研究 2005 に掲載した論文のリスト.....	175
環境における人工放射能の研究 2003 に掲載した論文のリスト.....	177
環境における人工放射能の研究 1954-2001 に掲載した論文のリスト.....	178
環境における人工放射能の研究 1954-1999 に掲載した論文のリスト.....	180

## 1. 人工放射性降下物（死の灰のゆくえ）

気象研究所では、大気圏での人工放射性核種の濃度変動の実態とその変動要因を明らかにすべく、1954年4月に放射性降下物（いわゆるフォールアウト）の全 観測を開始した。核種分析は1957年に始まり、以降現在に至るまで50年間途切れることなく継続されている。特に気象研究所での観測値は、現在でも検出限界以下とすることなく必ず数値化されている。この時系列データは、ハワイマウナロアにおける二酸化炭素の時系列データ同様、地球環境に人工的に汚染物質を付加した場合、汚染物質がどのような環境動態をとるのかを如実に反映しており、実に5桁の降下量の水準変動が記録されている。対象は重要核種である $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ およびPu同位体である。

人工放射性核種は主として大気圏内核実験により全球に放出されたため、部分核実験停止条約の発効前に行われた米ソの大規模実験の影響を受けて1963年の6月に最大の降下量となり（ $^{90}\text{Sr}$  約 $170\text{Bq}/\text{m}^2$ 、 $^{137}\text{Cs}$  約 $550\text{Bq}/\text{m}^2$ ）その後徐々に低下した。しかし、1960年代中期から中国核実験による影響で降下量は度々増大し、1980年を最後に大気圏内核実験が中止されたのでようやく低下した。放射能の降下量が再び増大したのは、1986年4月の旧ソ連チェルノブイリ原子力発電所の事故による。大気圏内核実験のように成層圏に大量に放射能は輸送されなかったため、この影響は長くは続かず、1990年代になると、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、Puの降下量は大きく低下し、試料採取に $4\text{m}^2$ の大型水盤を用いている気象研究所以外では検出限界以下となって、降下量を容易に数値化できなくなった。このため、気象研究所での観測記録は我が国のみならず、世界で唯一最長の記録となった。1990年代での $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ の月間降下量はともに数～数 $10\text{mBq}/\text{m}^2$ で推移して、「放射性降下物」とは呼べない状況に至った。このように、人工放射性核種の投入は壮大な規模のトレーサー実験に例えることが出来、それは依然として継続されていると言える。気象研究所では、投入されてからの期間における変化を降下物という形態で眺め続けてきた。

ところで、チェルノブイリ事故由来の放射性核種の一部（数%）は下部成層圏にも輸送されたが、1994年以降の年間降下量は成層圏滞留時間から予想される量を大きく上回った。再浮遊（一旦地表に沈着したものが、表土粒子と共に再び大気中に浮遊する現象）が主たる過程となったためである。従来、再浮遊は近傍の畑地などからの表土粒子が主体となっていると信じられてきた。しかしながら、降下物の $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 放射能比は、気象研究所近傍で採取した表土中の同比と一致せず、再浮遊には複数の起源があることがわかった。この起源として、表土粒子が大規模に輸送される黄砂など、風送塵がある。この仮説提起のころは異論が圧倒的だったが、2000年代初期に黄砂が激しくなると全国各地で $^{137}\text{Cs}$ が降下物試料に検出され話題となり、また化学輸送モデルによる研究も進展したため、関連する研究が増えた。長期の時系列データを用いた研究の重要性・優位性がうかがえる。最近の成果をまとめると以下ようになる。

（1）引き続き、つくばにおいて月間降水・降下塵試料中の $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、超ウラン元素等を精密に定量している。その他全国11地点においても、2006年3月まで監視を継続した。2000年代初期に黄砂現象に伴うと考えられる春季の $^{137}\text{Cs}$ 降下量のわずかな増加の兆候（健康影響は無い）を認めたが、それ以外に特段の異常はなかった。これは各地での報告と若干異なる傾向である。

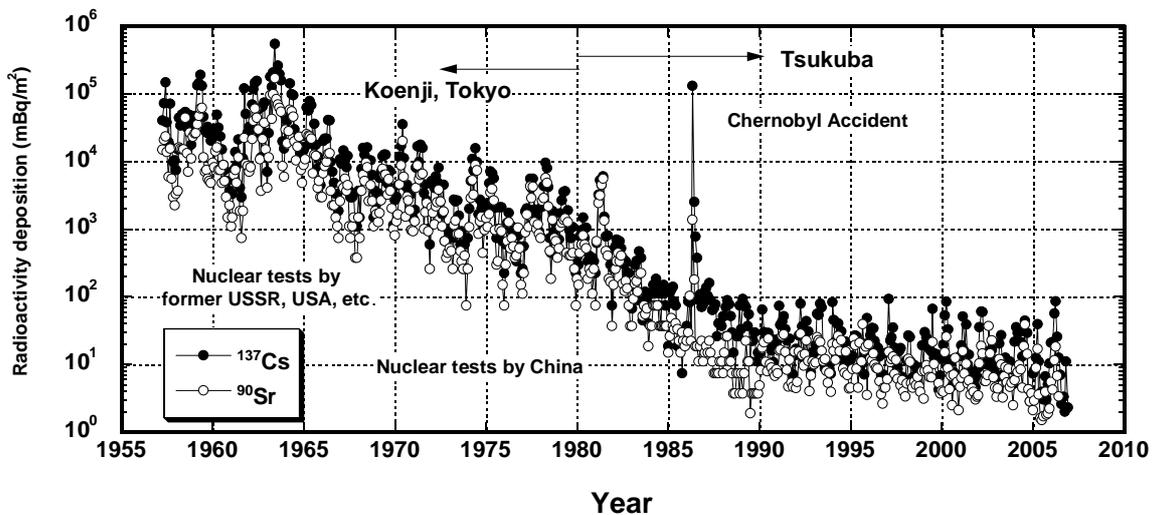
（2）そこで、全国的な分布と季節変動を眺めたところ、この期間、放射能の降下量は全国的に春に大きく、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 降下量がともに日本海側・北日本で高かった（気象研究所の年間降下量の数倍が1ヶ月で降下した地点もあった）。さらに、高 $^{137}\text{Cs}$ 降下量地点では、 $^{137}\text{Cs}$ の比放射能と $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 放射能比が大きいことがわかった。一方、降下量が低い地点では、逆の傾向を示した。

（3）降下ダスト量が高い $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比と高い $^{137}\text{Cs}$ 比放射能を持つと云うことは、その発生源地域が、過去には、より高い降水量（高い降下量）をもち、降水によって $^{137}\text{Cs}$ と $^{90}\text{Sr}$ の間の分

別が続いたが、最近乾燥化しつつある地域から発生したことを示唆する。

(4) 日本海側・北日本と、関東、太平洋側・南日本の地点から、黄砂現象の観測日の後方流跡線解析を行い、空気塊の由来を調べたところ、日本海側・北日本では中国北部・東北部から、関東、太平洋側・南日本では、中国西部からが主だった。

(5) これらの事実から、従来の黄砂と発生源が異なる「新型黄砂」が、2000年から2002年の間、北日本・日本海側により大きい降水量をもたらしたが、一方、関東、太平洋側・南日本では、「従来型黄砂」が降下したため、気象研での観測結果となったと解釈している。



〔掲載論文〕

Aoyama, M., K. Hirose, Y. Igarashi, Re-construction and updating our understanding on the global weapons tests  $^{137}\text{Cs}$  fallout, Journal of Environmental Monitoring, 8, 431-438, 2006.

编者注：本論文の Fig.1 は拡大したものをカラー印刷で本書の最後に添付した。また本論文の付属資料として電子出版された10度メッシュ降水量の表を11ページと12ページを掲載した。



**Supplementary Table 1-3** <sup>137</sup>Cs decay corrected accumulative deposition in 10 degree by 10 degree as of 1 Jan. 1970 (Bq m<sup>-2</sup>)

Latitude (degree)	Longitude (degree)								
	175W	165W	155W	145W	135W	125W	115W	105W	95W
85N	910	890	890	870	870	860	860	850	840
75N	2410	1640	<b>880</b>	1410	1400	1350	1390	1310	1370
65N	<b>2410</b>	3300	<b>4740</b>	<b>2660</b>	<b>1110</b>	<b>1210</b>	<b>2290</b>	1980	<b>1670</b>
55N	6520	<b>3520</b>	6450	7410	7660	3210	<b>3480</b>	<b>3390</b>	3190
45N	7240	6960	6970	6620	<b>5580</b>	<b>3780</b>	<b>5570</b>	<b>5340</b>	<b>6060</b>
35N	4890	<b>8830</b>	6530	<b>6910</b>	<b>5120</b>	<b>4180</b>	<b>2250</b>	<b>2160</b>	<b>3630</b>
25N	3210	<b>5440</b>	<b>3860</b>	<b>5490</b>	<b>3460</b>	<b>4710</b>	<b>2770</b>	1850	<b>1500</b>
15N	1260	<b>970</b>	<b>3650</b>	<b>2270</b>	<b>2410</b>	3310	<b>2810</b>	2140	<b>1460</b>
5N	660	810	<b>1190</b>	1120	1340	1180	<b>760</b>	1540	2320
5S	100	520	760	850	910	960	910	1170	1210
15S	480	500	580	640	650	<b>540</b>	<b>1060</b>	500	300
25S	500	520	530	540	530	490	440	820	390
35S	560	640	710	750	810	810	740	620	480
45S	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.
55S	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.
65S	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.
75S	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.
85S	N.A.	<b>100</b>	N.A.						

**Supplementary Table 1-4** <sup>137</sup>Cs decay corrected accumulative deposition in 10 degree by 10 degree as of 1 Jan. 1970 (Bq m<sup>-2</sup>)

Latitude (degree)	Longitude (degree)								
	85W	75W	65W	55W	45W	35W	25W	15W	5W
85N	850	<b>860</b>	840	820	820	840	870	930	920
75N	1370	1510	<b>1190</b>	2470	1400	1190	5280	2320	2440
65N	2770	<b>2750</b>	2940	<b>3200</b>	<b>6480</b>	<b>3850</b>	<b>5420</b>	6180	<b>8060</b>
55N	<b>3890</b>	<b>4210</b>	<b>4640</b>	6700	7770	7910	7500	7290	<b>4090</b>
45N	<b>4140</b>	<b>5220</b>	3480	<b>4430</b>	8490	7400	5820	<b>4110</b>	<b>3870</b>
35N	<b>4290</b>	<b>3960</b>	<b>2010</b>	5210	4380	3520	<b>3210</b>	1970	<b>1630</b>
25N	<b>4170</b>	<b>3080</b>	1770	3140	3790	3600	420	320	230
15N	<b>5480</b>	1810	<b>1520</b>	1200	1110	1030	910	1210	1050
5N	<b>1020</b>	<b>820</b>	800	1280	1580	1700	1610	<b>1110</b>	1080
5S	1140	690	590	450	<b>820</b>	1080	1090	1030	990
15S	750	580	<b>150</b>	140	570	<b>510</b>	680	730	740
25S	380	370	170	<b>370</b>	<b>360</b>	500	450	410	380
35S	340	300	<b>150</b>	<b>310</b>	820	880	830	670	490
45S	N.A.	<b>2130</b>	N.A.	320	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.
55S	N.A.	N.A.	N.A.	<b>330</b>	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.
65S	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.
75S	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.
85S	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.

N.A.: Data was not available.

Bold: Obtained by averaging of the observational data in a same grid.

## 2. 茨城県つくば市における大気中の放射性希ガスの観測

気象研究所では、人工放射性核種の地球化学的トレーサーとしての利用を目的に、 $^{85}\text{Kr}$ の大気中濃度の観測を継続してきた。大気試料は気象研究所屋上において1995年5月から採取を始めた。採取期間は1週間で約 $10\text{m}^3$ を採取し、当初は全球に観測網を展開しているドイツ大気放射能研究所(BfS-IAR)に試料を送付し、BfS-IARにおいて分析が行われてきた。2000年からはBfS-IAR方式に基づく $^{85}\text{Kr}$ 測定装置を気象研究所においても整備し、つくばにおいて採取された試料をBfS-IARと気象研究所双方で測定できる体制を確立した。実試料による比較試験により、ほぼ6%以内で双方の分析値が一致することを確認している。つくばにおける観測は、2006年3月で終了した。

1995年からのつくばで観測した大気中 $^{85}\text{Kr}$ 濃度をFig. 1に示す。1997年3月～2000年6月を除いて、一時的に通常よりも1桁近くも高い大気中 $^{85}\text{Kr}$ 濃度が観測された。これらは気象研究所の北東約60kmに位置する東海村核燃料再処理施設稼働日と一致しており、再処理施設からの放出された $^{85}\text{Kr}$ の影響によるものと判断される。一方、東海村再処理施設が休止していた1997年3月～2000年6月にあってもイギリスやフランスにおける再処理施設は稼働していたにもかかわらずつくば市においてはその影響が顕著に現れることはなく、観測された $^{85}\text{Kr}$ 濃度は他の北半球中緯度(北緯 $30\sim 40^\circ\text{N}$ )地点での観測値(およそ $1.3\text{Bq}/\text{m}^3$ )と同程度であった。また、1999年9月末のJCO臨界事故の際には緊急モニタリングを行ったが、つくばでは、有意な濃度上昇は認められなかった。

東海村施設からの影響のない期間のデータを、つくばにおける大気中 $^{85}\text{Kr}$ のバックグラウンド濃度とすると、バックグラウンド濃度は夏に低く、冬に高いという季節変動を示した。これは、つくば市上空をおおう気団中の $^{85}\text{Kr}$ 濃度の差異を反映したものであろう。すなわち冬季の大陸性気団では $^{85}\text{Kr}$ 濃度は高く、また夏季の海洋性気団では $^{85}\text{Kr}$ 濃度が低いことを示している。バックグラウンド濃度は季節変動を伴いながら年々増加する傾向にあることがわかった。急激な濃度増加の見られた1995-1996年間を除けば、1996-2004年間では $0.03\text{Bq}/\text{m}^3/\text{年}$ の速度でほぼ直線的に増加を続けており、核燃料再処理施設からの放出により、全球的な $^{85}\text{Kr}$ 濃度の上昇が依然として続いていることが示された。つくばにおける大気中 $^{85}\text{Kr}$ のバックグラウンド濃度は2004年の時点で約 $1.4\text{Bq}/\text{m}^3$ にまで達した。

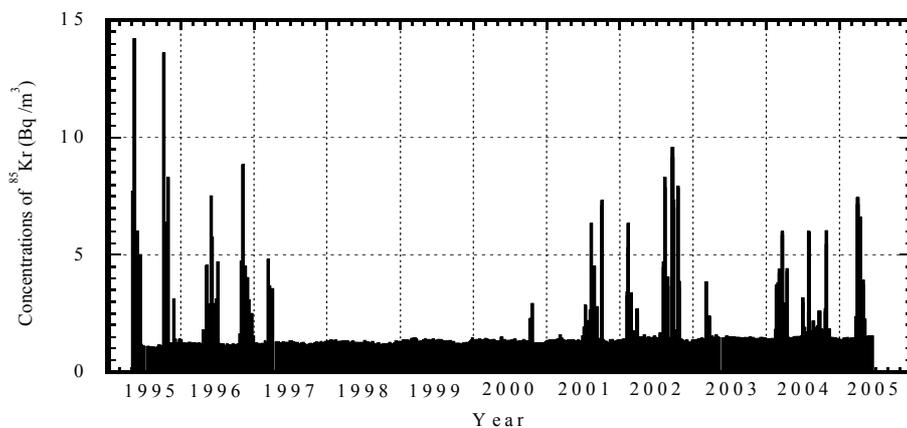


Fig.1:  $^{85}\text{Kr}$  concentration observed at MRI, Tsukuba during 1995 to 2005

また、2005年10月から2007年3月まで気象研究所と（財）日本分析センターとの共同研究として、「日本における大気中<sup>85</sup>Krの長期実態把握のための科学技術基盤の確立に関する研究」を実施した。この共同研究の目的は、「日本の広域にわたる地表大気中の<sup>85</sup>Krの長期実態把握を可能とする科学技術基盤を確立するとともにその継承を可能とする科学技術文書を作成する。それにより日本における<sup>85</sup>Krの長期モニタリング体制の確立に寄与する。」ことであった。現在の日本の大気中の<sup>85</sup>Kr濃度の監視については、両者の共同研究の結果により、2006年7月から日本の3地点で日本分析センターが実施している。

〔掲載論文〕

なし

### 3. 海水中の人工放射能 - 世界の海洋について

海洋環境における人工放射性核種は 1945 年以前には全く存在しなかったものであり、これらが数十年という期間に海洋環境においてどのように振る舞うかについて、気象研究所地球化学研究部では約 50 年間の長期にわたり研究を実施してきた。環境中の人工放射性元素の分布とその挙動の 50 年以上にわたる観測・研究の蓄積の結果、環境放射能について世界的にも他に類を見ない貴重な時系列データを内外に提供すると共に、様々な気象学・海洋学的発見をもたらしてきている。

気象研究所では、太平洋と縁辺海を広くカバーする観測をおこない、 $^{137}\text{Cs}$  の 3 次元分布を得つつある。また、HAM データベース (Aoyama and Hirose, 2004) として公表してきたデータベースの更新を行い、国際原子力機関と協力して太平洋中心であったデータベースを全球へ拡張した HAM2007 Global Version を作成した。これらのデータを用いて、北太平洋の海域毎の表面水中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の時系列データを解析し、最近の濃度変動の特徴を抽出した。

#### 1) $^{137}\text{Cs}$ の表面海水中濃度の最近の変動

太平洋を 12 の海域にわけ、1970 年から 2005 年までの時系列データを用い、見かけの半減時間を求めた。これらの海域の中で、日本に近い海域 2 (黒潮域、図 1) での表面海水中  $^{137}\text{Cs}$  濃度の長期時系列を示す (図 2)。

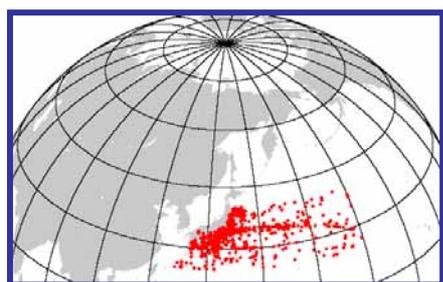


図 1 太平洋海域 2 のデータ分布

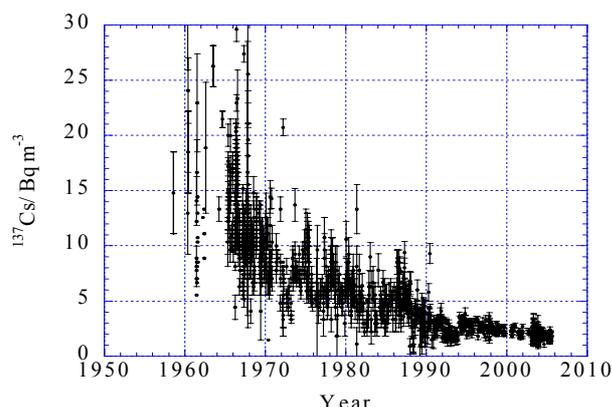


図 2 海域 2 での  $^{137}\text{Cs}$  濃度の時系列

1990 年代後半までは、(Aoyama et al., 2006; Hirose and Aoyama, 2003; 青山・廣瀬, 2006) 表面海水中  $^{137}\text{Cs}$  の濃度は見かけの半減時間 15.7 年で減少しているが、最近の 10 年間を見るとほとんど減少していない。大気側からの新たな供給がない状況で、海洋表層での  $^{137}\text{Cs}$  の濃度を維持するためには、相対的に高濃度の海水の移流がソースとして必要となる。海域 2 の南側の亜熱帯域で海洋表層の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の半減時間が長くなることから (Aoyama and Hirose, 2004) 中部北太平洋でサブダクションにより表層から亜表層や中層に沈みこんだ  $^{137}\text{Cs}$  が亜表層から中層における中緯度から低緯度側への南向きの内部輸送により、輸送されていることがわかった。近年海域 2 で見られている表層の  $^{137}\text{Cs}$  濃度が減少しない現象は、海洋表面に降下したのち南向きに輸送された  $^{137}\text{Cs}$  の一部が、亜熱帯循環に乗って再び日本周辺に輸送されてきたためとすれば説明可能である。

#### 2) HAM2007 Global Version について

IAEA が保有していた大西洋中心のデータベース MARIS の全データを取り込み、かつ最近まで公表されている太平洋のデータを組み込んで HAM2007 Global Version を作成した。収録されたデータ数は、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、Pu の 3 核種ともに、それぞれ約 4 倍、2 倍、1.5 倍に増加した。このデータベースは世界の海洋における放射能汚染の実態把握とともに、海洋における人工放射性核種の長

期挙動の研究および他の地球環境研究にも貢献できるものとなった。

表 1 データベース中の海域毎の収録レコード数

	地域コード	<sup>137</sup> Cs	<sup>90</sup> Sr	<sup>239,240</sup> Pu
Eastern North Pacific	NEP	2593	465	711
Western North Pacific	NWP	3032	2079	1189
Eastern South Pacific	SEP	549	120	56
Western South Pacific	SWP	107	5	20
Sea of Japan	SOJ	1970	1842	1042
Sea of Okhotsk	SOO	45	35	39
East China Sea	ECS	78	71	20
South China Sea	SCS	24	1	6
North Atlantic	NA	4751	724	274
South Atlantic	SA	181	287	118
Indian Ocean	IO	52	13	5
Antarctic	ANTO	17	13	16
Arctic Ocean	AO	724	103	37
Baltic Sea	BALT	2861	406	52
Barents Sea	BARE	471	59	22
Bering Sea	BERS	32	11	36
Black Sea	BLAS	80	20	0
English Channel	ENGC	1592	23	2
Irish Sea	IRIS	6999	0	19
Mediterranean Sea	MEDS	292	190	164
Arabian Sea	NIO	44	71	1
North Sea	NORS	4837	515	30
Southern Ocean	SO	47	9	12
<b>合計</b>		<b>31378</b>	<b>7062</b>	<b>3871</b>

〔掲載論文〕

Hirose, K., M. Aoyama, M. Fukasawa, C. S. Kim, K. Komura, P. P. Povinec, J. A. Sanchez-Cabeza, Plutonium and <sup>137</sup>Cs in surface water of the South Pacific Ocean, Science of the Total Environment, 381, 243-255, 2007.

Folsmo, T. R., K. Saruhashi, A comparison of analytical techniques used for determination of fallout cesium in sea water for oceanographic purpose, Journal of Radiation Research, 4, 39-53, 1963.

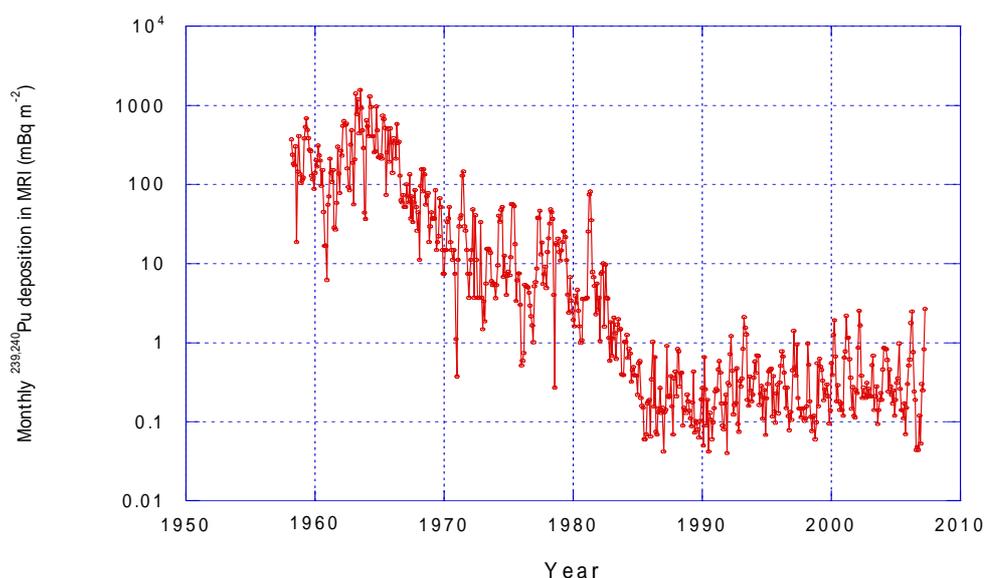
Miyake, Y., K. Saruhashi, Y. Sugimura, T. Kanazawa, K. Hirose, Contents of <sup>137</sup>Cs, plutonium and americium isotopes in the southern ocean waters, Papers in Meteorology and Geophysics, 39, 95-113, 1988.

## 4 . 大気降下物及び海水中のプルトニウム

プルトニウムは放射能毒性などが高く半減期も長いため、環境で監視が必要な人工放射性核種である。気象研究所の大気降下物及び海水中のプルトニウムの研究は、 $^{137}\text{Cs}$  や  $^{90}\text{Sr}$  と比べてやや遅れて開始された。ただし、天然の線放出核種(U、Th 同位体)の研究は 1960 年代の初めに開始されているので、人工線放出核種測定のための技術的研究も 1960 年代に始まっている。大気降下物及び海水中のプルトニウムに関する気象研究所の研究成果は、1968 年に初めて公表された。

大気降下物のプルトニウムに関する研究については、1964 年に  $^{238}\text{Pu}$  を含む燃料電池を搭載した米国の人工衛星が打上に失敗し、南半球上層大気圏で燃焼し、 $^{238}\text{Pu}$  を大気中に放出した事故を契機として始まった。気象研究所でも 1967 年には、衛星事故に由来する  $^{238}\text{Pu}$  を降下物試料中に検出し、その結果を報告している。 $^{239,240}\text{Pu}$  降下量については、1958 年 3 月より今回まで測定結果があるが、世界的にも最も長い記録である。なお、一部プルトニウム降下量については 2~4 ヶ月間まとめた試料について測定されているが、1987 年以後は 1 ヶ月単位で測定が行われている。 $^{239,240}\text{Pu}$  降下量の長期にわたる観測結果から、その経時変動は基本的には核分裂核種( $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$  など)の挙動と類似であるが、1960 年代の中国の核実験では主に  $^{235}\text{U}$  が用いられた点、プルトニウムが比較的大きな粒子(Hot particles)に含まれている点で、核分裂核種とは異なった大気中の挙動をすることを明らかにすることができた。

1986 年のチェルノブイリ原子力発電所事故に関連して、異常な  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  放射能比が大気降水中で測定され、事故に伴い放出されたプルトニウムの一部が日本まで輸送されたことがわかった。しかし、その程度は  $^{137}\text{Cs}$  や  $^{90}\text{Sr}$  に比べて極めて小さいことも明らかにすることができた。また、1990 年代以後のプルトニウムについては再浮遊に由来すると推定している。さらに最近の成果として、プルトニウムの再浮遊が主に中国の乾燥地域起源の黄砂と関連している他、気候変動を伴うアジア大陸の砂漠化の進展は日本におけるプルトニウム降下量の増加の原因となっていることが分ってきた。



気象研究所では、1960年代に北太平洋及び縁辺海の海水中のプルトニウム濃度について報告しているが、これは世界的にみても先駆的研究である。その後、表面水に限っては、太平洋全域及びインド洋、南大洋の分布を明らかにすることができた。その結果によると、1970年代には北太平洋中緯度域で、比較的高い表面海水のプルトニウム濃度が出現することがわかった。プルトニウムは、海水中で $^{137}\text{Cs}$ とは異なった挙動を示す。その挙動の違いは、鉛直分布に典型的にみられる。水柱の $^{137}\text{Cs}$ は、表層で濃度が高く深さとともに減少し(ただし、北太平洋亜熱帯域では、100mから500m付近に極大を示す)、1000m以深では極めて低い濃度であることが知られている。一方、プルトニウムは表層で低く、深さ500mから1000mに極大をもつ分布を示す。この分布は、プルトニウムが表層で生物由来の粒子と結合し、粒子の沈降とともに深海へ輸送され、輸送される途中で粒子が分解され、プルトニウムが放出されることによって形成されるものと説明されている。事実、北太平洋表面水中のプルトニウム濃度の経時変化から、表層水中のプルトニウムの滞留時間(約7年)を求めたところ、 $^{137}\text{Cs}$ より短いことが分かった。また、西部北太平洋の場合、海水中のプルトニウムのインベントリーはグローバルフォールアウトから予想されるよりもかなり高い。これは、ビキニ環礁等で行われた実験により、西部北太平洋の亜熱帯域でプルトニウム汚染が起こったためと考えられる。この影響は、深海で顕著である。

海洋におけるプルトニウムの挙動を明らかにするためには、海水中のプルトニウムの化学形についての知識が必要である。この目的のため、プルトニウムと海水中の粒子状物質の間の化学的相互作用を研究したところ、海洋生物起源の粒子中の配位子とプルトニウムが錯体を形成していることが明らかになった。この知見を基に、プルトニウムの除去過程については有機粒子とプルトニウムとの錯形成過程を含むモデル化も試みた。

#### 〔掲載論文〕

Hirose, K., Y. Igarashi, M. Aoyama, Recent trends of plutonium fallout observed in Japan: Comparison with natural lithogenic radionuclides, thorium isotopes. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 273 No.1, 115-118, 2007

## 5、環境における人工放射能 50 年： $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 及びプルトニウム降下物

気象研究所地球化学研究部では、1950 年代後期から 40 年以上の期間にわたり大気圏での人工放射性核種の濃度変動の実態とその変動要因を明らかにすべく、環境影響の大きい重要な核種について観測を続けてきた。特に人工放射能の月間降下量 ( $^{90}\text{Sr}$  および  $^{137}\text{Cs}$ ) の長期観測結果は 2007 年の 4 月で満 50 年となる (Fig. 1)。本章では半世紀に亘る研究を概観する。

研究の進展と核実験や原子力施設の展開とを考慮しつつ、時代を区分した。1) 1950 年代の黎明期、2) 1960 年代の米ソなどの大型核実験期および 3) 1960 年代中後期以降の中・仏の核実験期、3') 1970 年代以降の中・仏の核実験期、4) 1980 年代半ばのチェルノブイリ原発事故をはさむ時期、5) 1990 年代以降の時期、6) 2000 年代～最近、という時代区分で整理した。なお、プルトニウムについては  $^{90}\text{Sr}$  および  $^{137}\text{Cs}$  の時代区分とは別にまとめている。

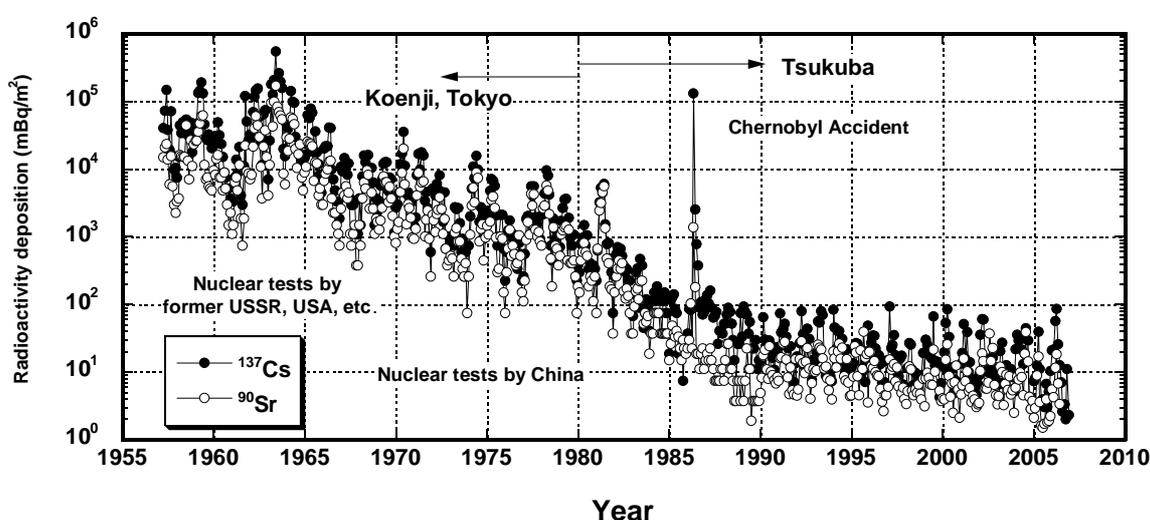


Fig. 1: Monthly deposition time series for  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  at the Meteorological Research Institute since 1957 to the present time

### 1) 黎明期

広島・長崎の事例を別にして、我が国における組織的な環境放射能研究は、1954年3月に北太平洋の赤道域にあるビキニ諸島で実施された大規模な大気圏内核実験に始まる。最初の人工放射性雨の報告は、三宅(1954)によると1954年5月14日である。北太平洋のビキニ環礁での核実験に対応して人工放射能を含む降水が日本各地で報告された。最大値は、 $0.5 \times 10^{-6}$  Ci/L、すなわち  $18,500 \text{ Bq L}^{-1}$  と記されている。鹿児島、広島、大阪、京都、名古屋、静岡、東京、仙台、金沢、弘前、新潟の大学または、衛生研究所における観測結果が記述されていて、すでに広域的な観測とネットワークの必要性が考えられていたことを感じることができる。Miyake(1954)は、これらの事実を英文報告としていち早く世界に発信した論文と位置づけることができる。この背景としては、当時の放射能分析は現代の質量分析法のような最新の超微量分析手法であったこと、三宅研究室では自然放射能の地球化学的トレーサー利用をすでに思考・指向していたことがあった。



Photo 1: Researchers at the time carrying out the radiochemical analysis (石井, 測候時報より)

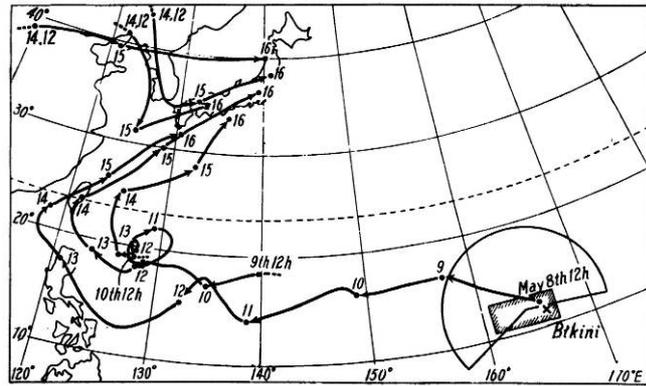


Fig. 2: A case study for the air mass transport; from the Pacific to Japan during May, 1954. Although trajectory analysis is nowadays popular and calculated even by using the web site, manual analysis had been performed those days.

しかし、その当時は放射線測定技術も未熟であり、かつまた研究資金も潤沢ではなかったため、シンチレーション検出器や半導体検出器はまだなく、観測に用いられた主力測定器は、今では放射線管理にしか使われないような GM 計数器であった(全測定)。そのため、放射能強度とその見かけの半減期が主なデータである。場合によっては、イオン交換や沈殿法による核種の分離を行ってから (Photo 1) GM で計測したり、線エネルギーをアルミ板による吸収法で測定している。しかし、このときすでに、放射能の起源推定法としての気塊の流跡線解析 (Fig. 2) 全測定における自然放射能と人工放射能の区別の仕方、降水による大気柱からの除去 (Fig. 3) など、極めて現代的な考え方や手法が盛り込まれようとしていた。このことはある意味当然だが、同時に驚きでもある。この他にも、観測・計測方法の標準化・マニュアル化が、気象庁・気象研究所では進められていた。

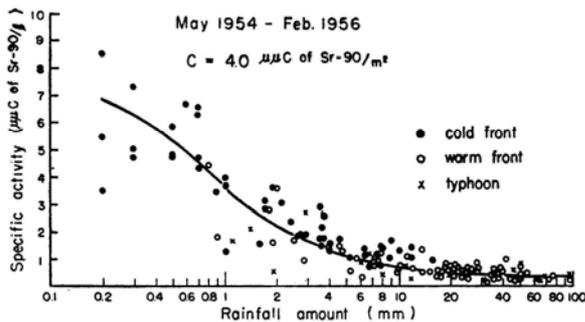


Fig. 3: Relationship between specific radioactivity (R) in rain water and precipitation amount (P) Equation  $R=C(1-e^{-kP})$  was derived based on the data.

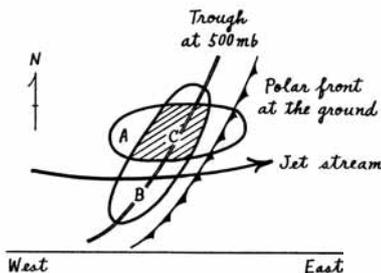


Fig. 4: Schematic explanation of intensifying fallout (A) Area of subsidence of air north of jet stream (B) Area of subsiding air to the rear of the polar front (C) Area of superposition of two subsiding zones

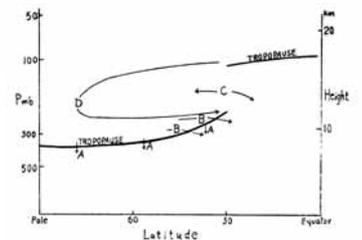


Fig. 5: Schematic drawing of O<sub>3</sub> transport from the stratosphere to the troposphere (Original was from Brewer)

## 2) 1960年代前期の米ソなどの大型核実験期

1960年代前期には、米・ソを中心として大型の大気圏内核実験が継続された。特に、部分的核実験禁止条約発効前に、駆け込みで特に大規模な実験が相次いだ。そのため、1963年の5月に人工放射能降下量は、最大値を記録した。この頃、成層圏から対流圏への放射能輸送について議論が活発化した。この時代以前は、成層圏の空気は容易に対流圏の空気と混合しないと考えられていたが、成層圏フォールアウトが続いたことから、成層圏/対流圏交換過程についての理解が深まった。また、1950年代の終わりに米国によって、放射性的タンゲステンを成層圏で生成させる大規模な「実験」があったことも背景になり、対流圏を通じての降下と成層圏を通じての地表面への降下という経路の違いが明確になりつつあった (Figs. 4 and 5)。そのため、対流圏・成層圏それぞれでの人工放射能の滞留時間 (対流圏では約1ヶ月、成層圏では約1年) の概念が導入され、いわゆる「スプリングピーク」 - 春季の降下量の極大 (すなわち夏季に向けて北半球上空の成層圏循環が活発化し、下部成層圏へ放射能が蓄積する効果と成層圏/対流圏の交換の活発化による) 北半球中緯度域における降下量の極大などが議論された。また、成層圏オゾンと関連付けての議論も行われた。

## 3) 1960年代中後期以降の中・仏の核実験の時期

1960年代も半ば以降となると、核種分析の手法である放射化学分析が一般的な手法となり、核種毎の報告が増えてくる。きちんとしたローバック カウンタや 線分光が可能な NaI シンチレーション検出器などが、研究室に整備されだしたこともそのひとつの理由であろう。

ところで、米・ソを中心とした大型の核実験は、部分的核実験禁止条約の発効によって中止となったが、遅れた開発国である中・仏 (仏は南半球主体) は実験を継続した。核実験の度に降下量が増大したことが時系列に記録されている。こうした状況下、Kuroda et al. (1965) は、1965年9月の第二回中国核実験プルームが北半球を周回し、最初のピークから約3週間後に第2の濃度ピークが現れたことを示した。特に、新しい試みとして、Sr 同位体比- $^{89}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}$  比を時系列観測し、これに 500 hPa での流跡線解析を組み合わせた (Figs. 6 and 7)。

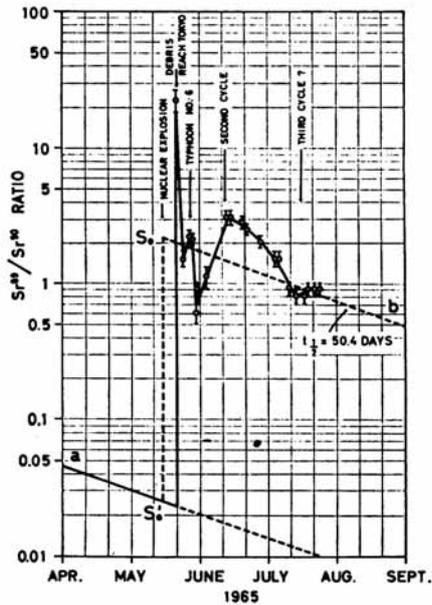


Fig. 6: Variation of the  $Sr^{90}/Sr^{86}$  ratio in rain after the Chinese nuclear explosion of 14 May 1965. The error limit indicated is due primarily to the counting statistics. The straight line  $aS_0'$  is the  $Sr^{90}/Sr^{86}$  ratio in the stratosphere prior to 14 May. The straight line  $S_0b$  indicates the estimated  $Sr^{90}/Sr^{86}$  ratio in the stratosphere after the second injection of strontium isotopes by the Chinese.

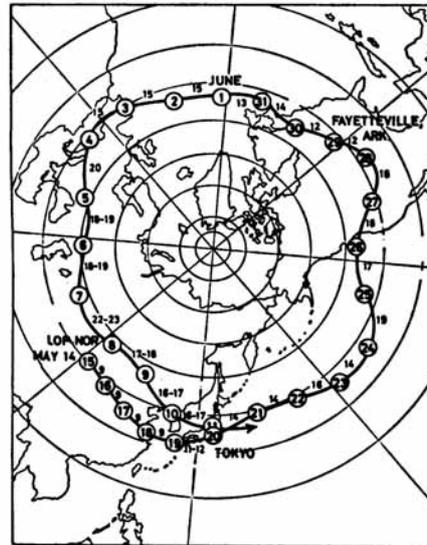


Fig. 7: Air trajectory in the Northern Hemisphere during May and June 1965. This figure indicates the air movement at the height of 5650 meters in the troposphere, which is known to give a representative overall average value of the tropospheric air movement. The numbers in the circles show dates and the numbers between circles show average wind velocities in meters per second.

### 3') 1970年代以降の中・仏の核実験の時期

この時代になると、放射性降下物に対する観測体制はかなり整備され、ほぼ1990年代と変わらない程度となった。それに伴い、データの解析がより高度化していく。葛城(1971)、Katsuragi(1983)では $^{90}Sr$ の日本各地での降下量の違い(日本海側の秋田で大;太平洋側の2倍、Fig. 8)、スプリングピーク、中国の各々の実験による $^{90}Sr$ の寄与率の推定( $^{89}Sr/^{90}Sr$ 比を用いる、Fig. 9)、核実験の実施時期によるフォールアウトの季節変化への影響、成層圏での滞留時間、南北両半球の大気交換時間、成層圏での物質輸送機構などを詳細に議論した。地球化学的トレーサー利用が進んだ時期である。

1980年を最後に大気圏内核実験は行われなくなり、核実験は地下実験に移行した。その結果、1981年の春季を極大として、人工放射能の降下量は漸く、徐々に減っていくことになった。一方、わが国における商用原子力発電はこの時期から本格化したが、環境にインパクトを与えるような大規模な事故は発生していない。そのため、人工放射能降下量には影響は見えない。

ところで、1980年代になると、直接ビキニ事件の影響を受けなかった世代の研究者が主体となった。Hirose et al.(1987)は、それまでに蓄積された降下量データを活用して、成層圏・対流圏ボックスモデルの改良を行い、実験毎による見かけの滞留時間の違いを説明した。また、各年各月の降下物に対する各々の大気圏核実験の寄与を計算した。モデルの特徴は、対流圏界面上層に混合層を設け、大気上層部を3層としたこと、滞留半減期をそれぞれ上部成層圏0.5年、下部成層圏0.7年、混合層0.3年としたことである。

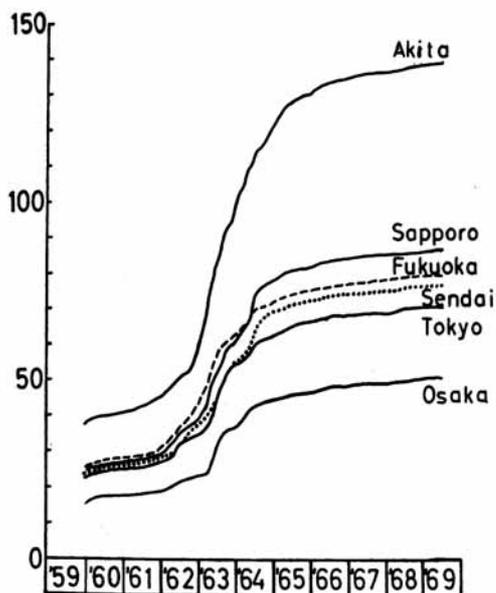


Fig. 8: Cumulative deposition of  $^{90}\text{Sr}$  at 6 sites over Japan during the 1960s

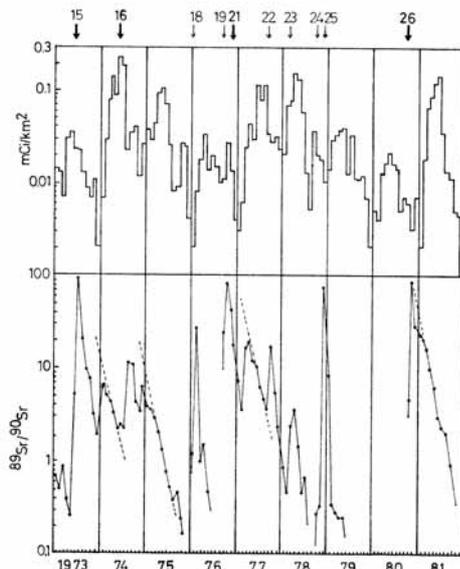


Fig. 9:  $^{89}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}$  ratio in monthly fallout and  $^{90}\text{Sr}$  monthly deposition at MRI from 1973 to 1981. Arrow and numeral at the top of the figure represent the number and time of year of the Chinese nuclear testing.

#### 4) 1980年代半ばのチェルノブイリ原発事故をはさむ時期

1986年4月末に旧ソビエト連邦のウクライナ・チェルノブイリ原発で重大事故が発生し、大量の放射能が環境中にまき散らされた。当初、放射能は対流圏下部にしか放出されていないことから、放射能雲の日本への到達やさらに遠方(8000 km以遠)への輸送はないだろうというのが、大方の予想だった。しかし、5月3日以降、つくば市の気象研究所では、 $^{131}\text{I}$ 、 $^{132}\text{Te-I}$ 、 $^{103}\text{Ru}$ 、 $^{106}\text{Ru-Rh}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{144}\text{Ce}$ 、 $^{140}\text{La-Ba}$ 、 $^{99}\text{Mo}$ などを大気中及び降水中に検出し(Fig. 10)放射能雲の到達を国内の諸機関に先んじて報告した。また、 $^{137}\text{Cs}$ についても濃度が同時に急上昇したことを報告した。1986年5月の人工放射能の降下量は、 $^{131}\text{I}$ で約 $5900 \text{ Bq m}^{-2}$ 、 $^{103}\text{Ru}$ で約 $360 \text{ Bq m}^{-2}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ では、約 $130 \text{ Bq m}^{-2}$ を記録した。これらの検出にはGe半導体検出器が活躍した。

核実験の降下物と比べて特徴的だったのは、放射性ヨウ素(Fig. 11)をはじめとする揮発性核種に加えて安定体の放射化生成物 $^{134}\text{Cs}$ が含まれていたことであった。つまり、核実験ではごく短時間に核分裂が生ずるが、原子炉事故では長期に亘る核燃料の燃焼で蓄積している核種が放出されるため、検出される核種組成が異なっていた。大気中の $^{137}\text{Cs}$ のみかけの半減時間(6~11月)は約25日で、従来から言われている対流圏でのエアロゾルの滞留半減期を示した。また、チェルノブイリからの放射能も北半球を周回したことが確かめられている(Fig. 12)。

続いて、Aoyama(1988)およびAoyama et al.(1991)は事故当時とその後の数年間に得られたデータを検討し、 $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}=96$ (1986年5月時点)から、 $^{137}\text{Cs}$ に偏った放出だったこと、核種の平均粒径の違いによる輸送途上での分別について議論した。また、 $^{134}\text{Cs}$ 降下量を元に $^{137}\text{Cs}$ 降下量を核実験起源成分とチェルノブイリ起源成分とに分離し、1987年降下量のうち80%がチェルノブイリ起源であることを確かめた。また、類似手法で、成層圏へのチェルノブイリ放射能輸送量を評価し、1990年代に主役となっていく再浮遊の役割についても言及した。

チェルノブイリ事故は、ロシア・ヨーロッパに深刻な $^{137}\text{Cs}$ の汚染をもたらしたが、日本では、時系列データに明らかだが、核実験による $^{137}\text{Cs}$ 降下量に比べて、わずか数%にしかならない。いかに核実験による全球フォールアウトが大規模な放射能汚染事象であったかが、よくわかる。全球フォールアウトは、人類が直面したまさに最初の地球環境問題であり、地球環境

へのトレーサー注入による拡散実験であったと言える。

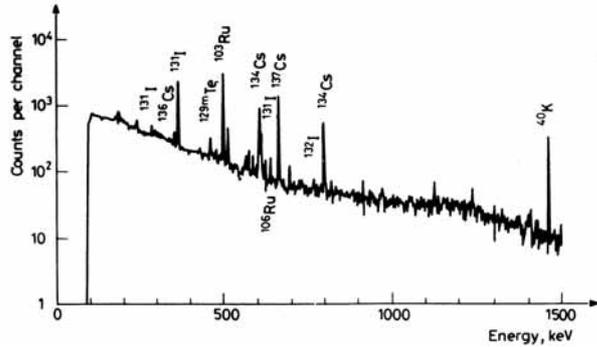


Fig. 10: Gamma-ray spectrum of a filter sample taken at the time of the Chernobyl accident in Tsukuba

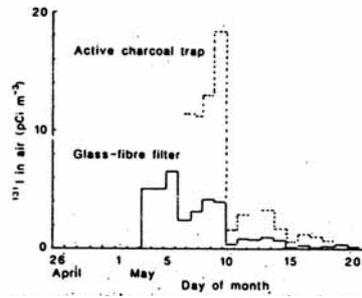


Fig. 11: Time series of  $^{131}\text{I}$  in the atmosphere captured by the activated charcoal trap and GF/filter

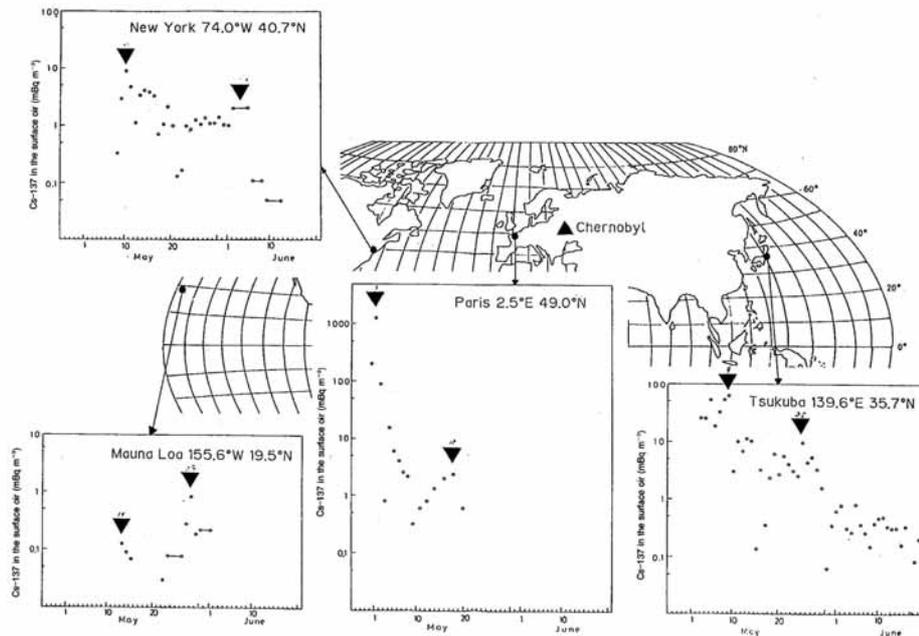


Fig. 12: Hemispheric circulation of the Chernobyl  $^{137}\text{Cs}$  plume at 4 sites over the globe at the time of the accident known by the time series Peaks indicate the arrival of the Chernobyl radioactive plume

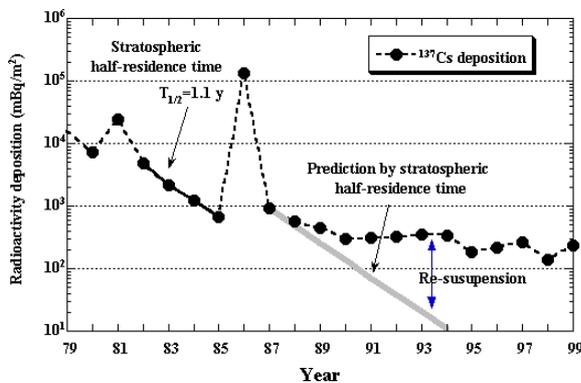


Fig. 13: Decreasing trends of annual  $^{137}\text{Cs}$  deposition observed at the MRI exhibiting the stratospheric and re-suspension components

1990年代以降、人工放射能降下量の水準はなお一層低下して、 $1\text{m}^2$ の水盤を用いた場合は、極めて困難となった。そのため、分析精度の向上を目指し、他研究機関との分析相互比較と環境標準の確立が改められた。こうした努力の下、Igarashi et al. (1996)は、1990年代以降の降下量減少は、成層圏滞留時間からの予測よりも緩やかであること、放射能と相当する安定体との比( $r/s$ 比)から、春季ピークが $r/s$ 比が高いと想定できる成層圏由来の成分ではないことを示した。この解析によって初めて、人工放射能の長期動態において、再浮遊の果たしている役割がきちんと論じられた。すなわち、1990年代の降下物中の人工放射能は、成層圏成分とも

うひとつの成分の2つで構成されていること、後者は人工放射能を含む表土粒子の浮遊に起因するだろうことを推定した (Fig. 13)。また、後年議論の中心となる  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  比に言及し、再浮遊には、近傍成分以外の他の成分がある可能性をはじめて指摘した。この当時、近傍成分以外の再浮遊成分は風送ダスト (黄砂) ではないか? という考え方は、全く新規の仮説であり、懐疑的な傾向もあった。

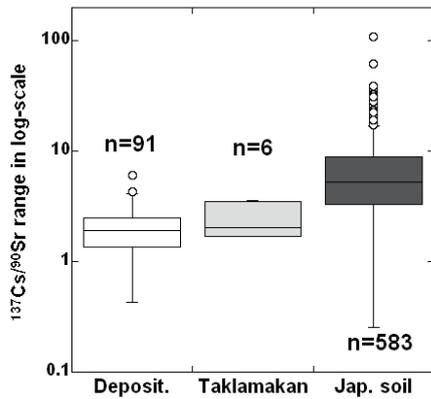


Fig. 14: The data distribution of the  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  ratio found in the deposition at the MRI, Asian desert soil and Japanese soil samples exhibiting the different distribution

しかし、Igarashi et al. (2001) は、引き続き解析を継続して、1990年代以降の降下物試料中の  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  比の分布は、日本の表土での分布と一致しないこと、大陸砂漠表土では、 $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  比が低く (およそ2)、降下物中の比と近いことを実際の分析値等で示した (Fig. 14)。このことは、再浮遊には、間違いなく長距離輸送成分と近傍成分があることを示し、ごく単純な2成分系と仮定した場合、 $^{90}\text{Sr}$  では9割、 $^{137}\text{Cs}$  では7割が大陸起源と計算された。

#### 6) 2000年代～最近の研究動向

五十嵐 (2002) および Igarashi et al. (2005) は、さらに1990年代の降下量データを解析した。月間降下量の季節変動は、春季については全国の黄砂目視日数とよく同期すること (Fig. 15)、降下物中の  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  比は季節変動し、春季に高め、夏・秋季に低めを示すことなどがわかった。春季の同比は日本の表土の混入によって上昇している可能性もあるが、むしろ、従来考えられてきた風送ダスト - 黄砂発生地域と別の発生源があることを示唆すると議論した。五十嵐 (2002) は、初めて黄砂 = 砂漠 (タクラマカン、ゴビ) 起源ではなく、黄土高原などの耕作地域からの浮遊の可能性を議論した。

ところで、2000～2002年の3年間は黄砂が頻発した。これらの年では春季に日本各地で人工放射能降下量が増大し、いくつかの地方自治体では検出された  $^{137}\text{Cs}$  に困惑した (健康影響を及ぼす水準では全くないが)。五十嵐 (2004) は、Kurosaki and Mikami (2003) が、黄砂年には発生源が東に拡がり、中国北部平原、中国北東部などでも発塵したことを明らかにしたのを受け、春季の主体は一定の降水量がある、またはかつてあった地域からの発塵と推測して、発生源を修整した。

また、Igarashi et al. (2005) では、夏・秋季のダストは、より遠方から由来する可能性があることも、次の3次元全球輸送モデル計算の結果を引用しながら述べた。

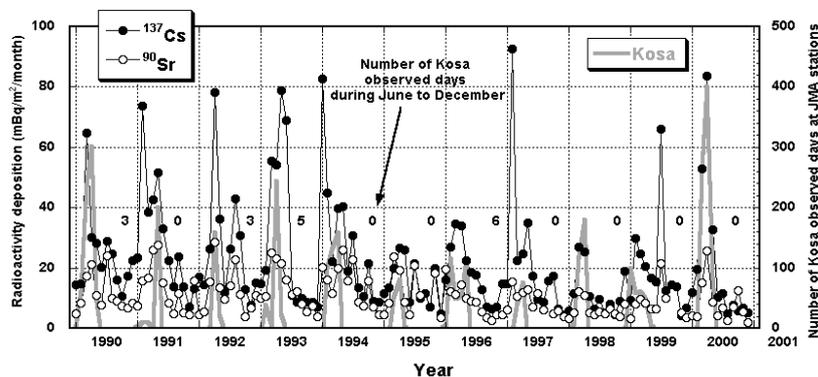


Fig. 15: Time series of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  deposition comparing with number of the Kosa event recorded at meteorological observatories (nationwide)

Lee et al. (2003; 2006)は、気象研究所の全球輸送モデルに独自の手法によるダスト発生プロセスを組み合わせ、風送ダストの発生源 - 日本での沈着との関係(ソース - レセプター関係)について調べた。その結果、日本での降下物の重量は、国内の局所的なダストではなく、海外から日本に輸送される風送ダストによって説明されること、また、黄砂以外のダストも寄与していることを示した。特に、中央アジア、アラビア、サハラなどの地域からもダストが日本上空にも輸送されて沈着していることを初めて論じた。

Aoyama et al. (2006)は、海洋に対するインプット情報として重要な核実験起源の<sup>137</sup>Cs降下量の総合評価を行った。降下物データ及び土壌また海水カラム量などを世界中から収集し、北半球での降下量を10度メッシュ毎に見積もった(Fig. 16)。その結果、従来信じられていた国連科学委員会の報告値の約1.4倍の770 PBq(1970年1月時点)という値を評価値として得た。国連科学委員会で採用されている考え方 - 降下量は経度方向には一定 - は、重要な因子である降水量の役割を正しく評価しておらず、日本や北米大陸東側での降下量極大域が無視されていた。そのため、従来の評価値は小さな数値となっていた。この新規評価により、海洋大循環モデルやダスト輸送モデルでの物質輸送評価にとって極めて重要なデータセットが用意された。

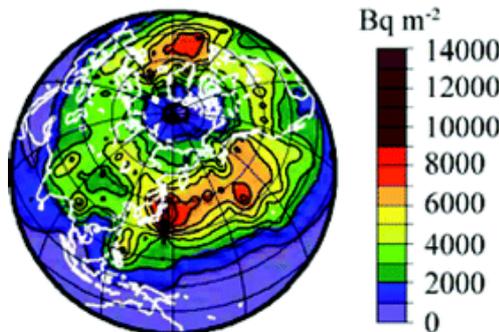


Fig. 16: Global deposition of <sup>137</sup>Cs derived from nuclear tests as of January 1970 showing heavier depositions over the Far East, northernmost Pacific and northernmost Atlantic

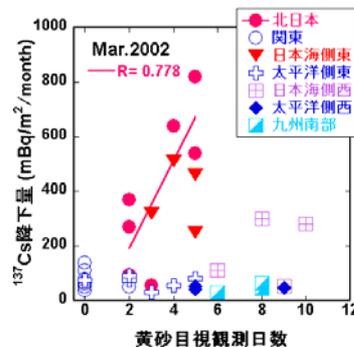


Fig. 17: Correlation between <sup>137</sup>Cs depositions over Japanese islands and Kosa observation days at corresponding weather station

つくばの気象研究所の観測では、2000-2002年の黄砂年でも年降下量にすると著しい増大はなかった。どのように黄砂の影響を捉えるべきかが課題となった。黄砂年の人工放射能降下量には地域性が顕著で、北日本/日本海側で<sup>90</sup>Srおよび<sup>137</sup>Csの降下量が著しいことが報告されている。特に2002年3月には全国で人工放射能が検出され、その最大降下量は、<sup>90</sup>Srで160 mBq m<sup>-2</sup>(青森)、<sup>137</sup>Csで820 mBq m<sup>-2</sup>(青森)に達した。降下量の多かった北日本/日本海地域では、降下物中の<sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr比が高く、<sup>137</sup>Cs比放射能も高い。さらに、Igarashi et al. (2007)は、2002年3月の北日本/日本海側で黄砂目視観測と<sup>137</sup>Cs降下量に正の相関を認めた(Fig. 17)。他方、南日本/太平洋側では降下量は小さく、降下物中の<sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr比が低く、<sup>137</sup>Cs比放射能は低い。このように地域的に違う性状を降下物が示すことは、地理的・気候学的に異なるダスト発生源からの由来を表すと考えた。そこで後方流跡線解析などの気象解析を行ったところ、黄砂イベント時に北日本/日本海側では近年の発塵地域である北東中国、モンゴルなどの地域上空を、南日本/太平洋側ではゴビ・タクラマカンのある北部および西部中国上空を經由して、到達するパターンが見られ、気塊の輸送経路が異なることがわかった。そこで、発塵地域が従来とは地理的に異なる“新しいタイプの黄砂”が北日本/日本海側に、一方で“従来型の黄砂”が南日本/太平洋側に降下したためと推定した。この現象は、近年の気候変動や人為的な改変に伴い、大規模な環境変動が生じていることを反映した結果と考えている。

## 7) プルトニウム降下物について

現在、地球環境中には、微量ではあるが至る所にプルトニウムは存在している。天然ではプ

プルトニウムはウラン鉱石の中に微量に含まれているが、一般環境には存在しないとされている。プルトニウムの同位体内のひとつである、 $^{239}\text{Pu}$  は中性子照射により核分裂を起こすため原子爆弾の材料となることが明らかにされた。この発見を受けて 1945 年米国により原子爆弾が製造され、アラゴモードの核実験に引き続き、長崎で投下された。これらが世界規模のプルトニウム汚染の始まりとなった。長崎原爆に由来するプルトニウムはグリーンランドの氷柱でも発見されている。

現在、地表に存在するプルトニウムの大部分は大気圏核実験に由来する。大気圏核実験により地球上に放出されたプルトニウムの総量は 11 PBq と推定されている。核実験に加えて、世界規模のプルトニウムの汚染は 1964 年原子力電池を搭載した衛星が南半球の上層大気で燃え尽きたことから起った。この時、0.63 PBq の  $^{238}\text{Pu}$  が大気中に放出された。一方、局地的なプルトニウム汚染も多く存在している。公表されている例の中には、水爆搭載航空機の落下事故（スペインのパロマレス(1966 年 1 月 16 日)、グリーンランドのチュール(1968 年 1 月 21 日)) の他、プルトニウム工場(米国、ロッキーフラッツ)の火災事故に伴い発生したこと等がある。さらにチェルノブイリ原子力発電所事故に伴い、かなりの量のプルトニウムが環境を汚染した。

気象研究所地球化学研究部では 1958 年以降降下物中のプルトニウムの測定を行ってきた。2008 年の 3 月で観測以来 50 年に相当する。この半世紀にわたるプルトニウム降下量の観測は世界で最も長い記録である。現在、ドイツでも降下物中のプルトニウムが測定されているが、1970 年代からに過ぎない。プルトニウムの場合、他の人工放射性核種と異なり、幾つかの長半減期の同位体( $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ )が存在する。プルトニウム同位体比は核兵器の材料や爆発の規模などで異なっており、降下物中のプルトニウム同位体比は変動していると考えられる。従って、プルトニウム同位体比もその発生源を特定するための有力な指標となる。ここでは、このようなプルトニウムの特徴も含め半世紀にも及ぶプルトニウム降下量の変遷について紹介する。

## 大気圏核実験

現在の環境中のプルトニウムの主要な発生源は大気圏核爆発である。Fig. 18 に 1957 年以來の気象研究所で測定された  $^{239,240}\text{Pu}$  年間降下量の経年変動を示す。中でも、米国と旧ソ連による 1961-62 年の大規模核実験の後の 1963 年に最大の年間降下量 ( $7.4 \text{ Bq m}^{-2}$ ) を観測した。部分核実験停止条約締結後も、中国等による大気圏核実験が 1980 年まで行われ、その影響によるプルトニウム降下量の増加が観測された。世界的なプルトニウムの降下量の分布は、Hardy 等が、土壤中の値から評価した。その結果によると、 $^{239,240}\text{Pu}$  の降下は中緯度に極大を示す緯度分布を示すと共に、核実験が主に北半球で行われたため、北半球(9.5 PBq)が南半球(2.6 PBq)と比べて約 3.7 倍高い。さらに、プルトニウム降下量の経年変化より、核実験により放出されたプルトニウムの大部分は成層圏に打ち上げられ、約 1 年の成層圏滞留時間で地上に降下してくることが分かってきた。成層圏における放射性物質の輸送については、北半球成層圏を、高度別に 3 個のボックスで構成するモデルにより、中緯度域の降下量の経年変化を定量的に説明できることが明らかになっている。また、プルトニウム降下量は春期に極大を示す季節変化が観測されている。この季節変化は成層圏と対流圏の間の物質の交換過程と関連している。これに関連して、Fig. 19 に第 26 回中国核実験に由来する地表大気中のプルトニウム濃度の時間変動を示す。

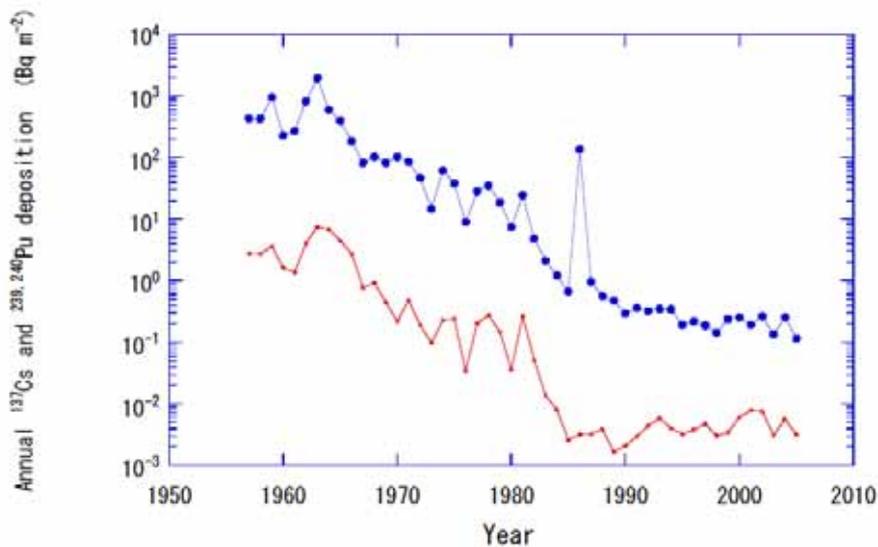


Fig. 18: Annual deposition of  $^{239,240}\text{Pu}$  observed in the MRI, Japan

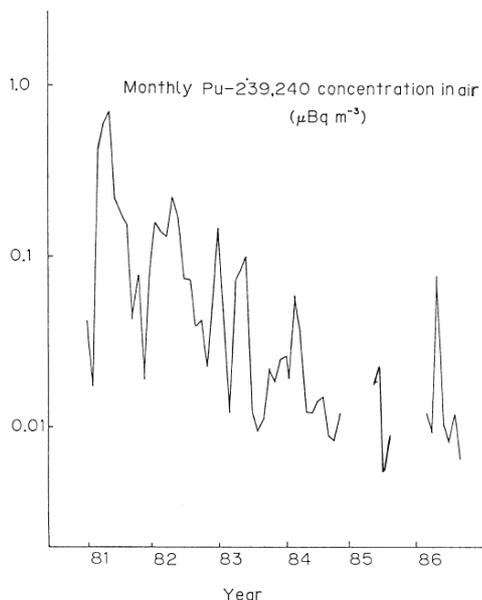


Fig. 19:  $^{239,240}\text{Pu}$  concentration in surface air

核実験により大気中に放出されたプルトニウムの同位体組成は核兵器の種類や爆発の規模等に依存して変化する。1961-62年に行われた大規模大気圏核実験に由来するプルトニウムについて  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比として 0.18 の一定値が与えられている。しかし、実際には変動があることが分かってきた。一方、1954年に米国により行われたビキニ環礁での水爆実験では、大きく異なった  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比(0.33)のプルトニウムが放出されたことが報告されている。

### 人工衛星落下事故

1964年4月プルトニウム原子力電池搭載の人工衛星が南半球の大気圏に突入し燃え尽きた。その結果、大気圏に 0.63 PBq の  $^{238}\text{Pu}$  が放出された。事故後4ヶ月で、放出された  $^{238}\text{Pu}$  は南半球の上空 33km で初めて検出された。この  $^{238}\text{Pu}$  は 1967年日本でも観測された。降下物中の

$^{238}\text{Pu}$  は、上層大気物質の動きの良いトレーサーとなる。 $^{238}\text{Pu}$  の観測結果から両半球間の物質の交換過程には約 3 年かかることがわかる。この事故に由来する  $^{238}\text{Pu}$  の年間降下量の経年変化は簡単なボックスモデルで説明できることが明らかにされた (Fig. 20)。このモデルによる北半球の  $^{238}\text{Pu}$  の降下量の総量は 0.074PBq (Krey の上層大気の観測値からの推定値: 0.11PBq) で、全体の 12 ないし 17% が南半球から北半球に輸送されたことが分かった。ちなみに、土壌中の  $^{238}\text{Pu}$  の値からの評価によると、全体の 22% と推定されている。

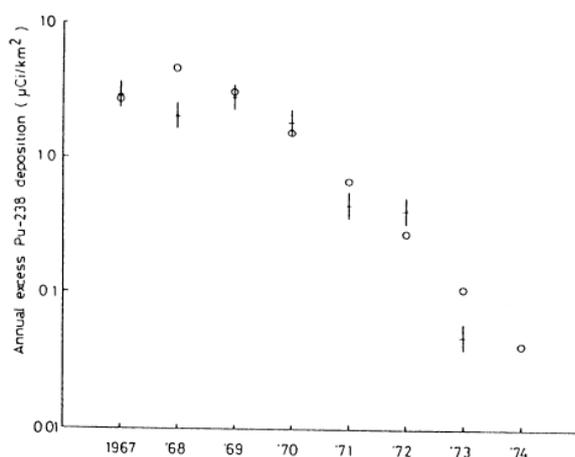


Fig. 20: The serial trends of estimated and calculated excess Pu-238 from the atmospheric burnup of the SNAP-9A satellite. +: value estimated from observations, o: value calculated from the four compartments model.

### チェルノブイリ原子力事故に由来するプルトニウム

1986年4月チェルノブイリ原子力発電所事故により、0.06 PBqのプルトニウム ( $^{239,240}\text{Pu}$ ) が放出された。日本でも、降下物や大気試料でチェルノブイリ由来のプルトニウムを検出する試みが行われた。チェルノブイリ原子力発電所事故由来のプルトニウムは、高燃焼度を反映して、核実験に由来するプルトニウムとは異なった同位体比を示す(例えば、 $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  : 0.5,  $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  : 85)。プルトニウム同位体比から確かにチェルノブイリ由来のプルトニウムが日本へも輸送されてきたことは明らかになったが、 $^{137}\text{Cs}$  等揮発性放射性核種とは異なり、日本では顕著なプルトニウムの増加は見られなかった。この原因は、プルトニウムが比較的大きな粒径の粒子に含まれており (Fig. 21) 輸送の間でサブミクロンの粒子に含まれている  $^{137}\text{Cs}$  と比較して効率的に大気中から除去されたためである (Fig. 22)。

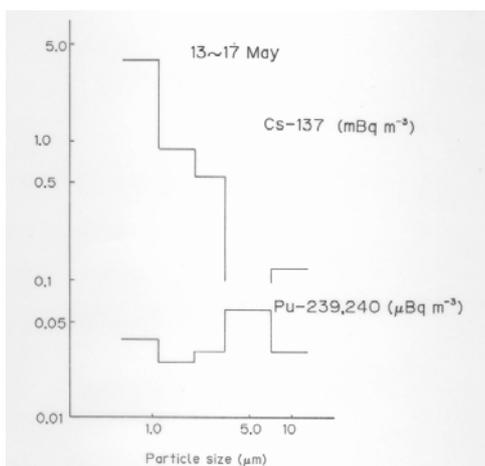


Fig. 21: Particle size distribution of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  in surface air observed in May 1986

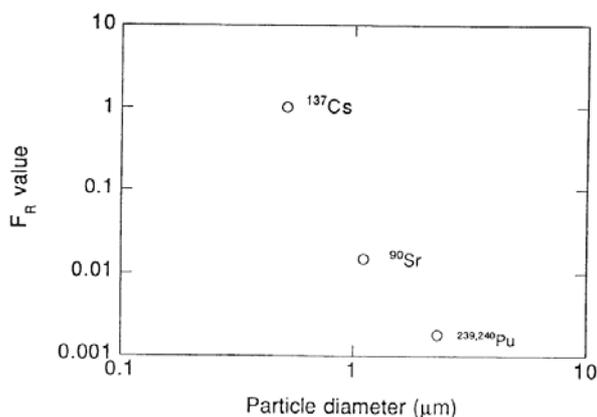


Fig. 22: The relationship between FR value and particle size of radionuclide bearing particles derived from the Chernobyl

### 最近の降下物中のプルトニウム

1985 年以降は大気圏中国核実験による成層圏フォールアウトの影響がなくなったにも拘わらず、成層圏フォールアウトから期待されるレベルより高いプルトニウム降下量が観測され現在に至っている。1985 年以降 2005 年まで、つくばで観測された  $^{239,240}\text{Pu}$  年間降下量は 1.7 から  $7.8 \text{ mBq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$  の範囲にあった。この間、最も低い値は 1989 年に、最も高い値は 2001 年に観測されている。1985 年以前と比べて、プルトニウム年間降下量は過去 20 年間系統的な減少を示していない。過去 5 年間のプルトニウム年間降下量を比較すると、2000-2002 年は高く、1999 と 2003 年は低い年間降下量が観測された。この傾向は黄砂の出現頻度の経年変動と一致している。一方、つくばにおける月間  $^{239,240}\text{Pu}$  降下量は毎年類似の季節変化を示す (Fig. 23)。特に、年間降下量が大きな年は明瞭な春期の降下量極大がみられる。春期の極大の出現時期は、日本における大陸からの風送塵(黄砂)の飛来の時期と一致している。2006 年の春期には、2000-2002 年と同程度の高い降下量が観測された。これらの結果は、過去 20 年つくばで観測されている  $^{239,240}\text{Pu}$  のかなりの部分は大陸由来の風送塵に由来する可能性が高いことを示唆している。さらに、プルトニウム降下量の地理的分布を調べた所、黄砂発生域に近い韓国(テジョン)で高い値を、日本では黄砂の影響が顕著な長崎で比較的高い値が観測された。また、高感度 ICP-MS で  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比を測定した所、グローバルフォールアウト由来であることが明らかになった。

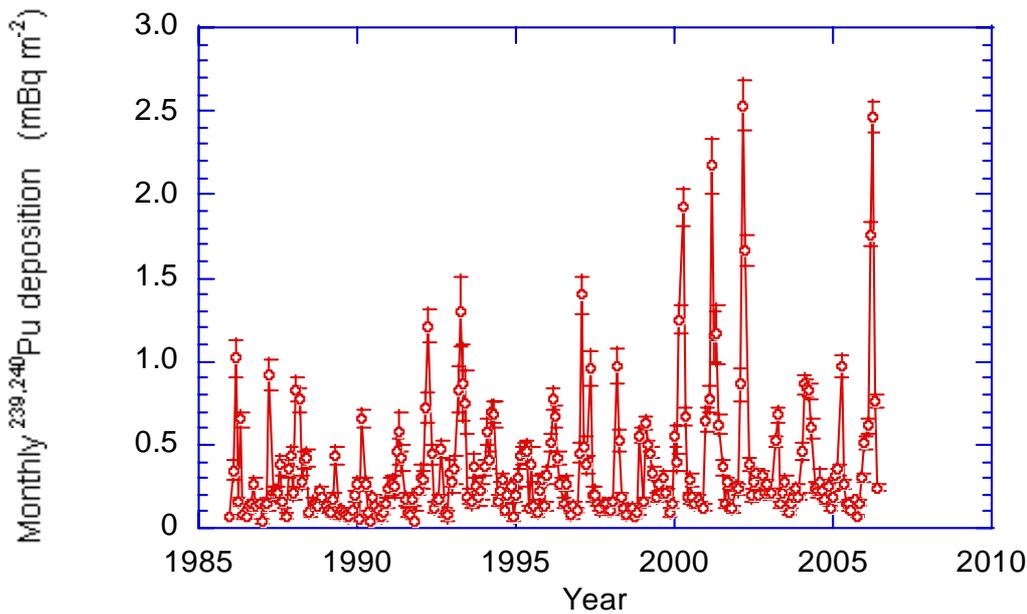


Fig. 23: Monthly  $^{239,240}\text{Pu}$  deposition observed in Tsukuba during the period of 1986 to June, 2006

このような結果から、最近の降下物中のプルトニウムの起源として、土壌粒子に付着した人工放射能の再浮遊が主要であると考えられている。特に、つくばで観測されている降下物中の人工放射性核種( $^{137}\text{Cs}$  など)の起源として黄砂が重要であるとの仮説を提案してきている。さらに、再浮遊由来のプルトニウムの性質を明らかにするために、プルトニウムの比放射能の経年変動を調べた。結果を Fig. 24 に示す。この値は、土壌中のプルトニウム濃度に対応している。ちなみに、日本の表層土壌中(つくば)の  $^{239,240}\text{Pu}$  濃度は  $0.02\text{-}0.4\text{mBq g}^{-1}$  であった。 $^{239,240}\text{Pu}$  比放射能は、大陸からのダストの影響がある期間(1月から5月)がダストの影響のない期間と比較して、系統的に高いことが明らかになった。さらに、2000年から2002年にかけて、黄砂が顕著であったが、この期間の  $^{239,240}\text{Pu}$  比放射能も顕著な高い値を示した。2000年から2002年の黄砂は、従来の黄土高原やゴビ、タクラマカンの砂漠地帯と異なり中国東北部や朝鮮半島が起源とされている。これらの結果から、1960-70年代降水が比較的多く、結果として放射能の降下量が多かった地域が、気候変動による砂漠化ないし過耕作による砂漠化により、比較的高比放射能の  $^{239,240}\text{Pu}$  を含むダストの飛散地域になったものと推定される。このような結果から、 $^{239,240}\text{Pu}$  降下量の観測は、ただ単に放射能バックグラウンド値の把握ばかりでなく、人類活動による大陸等の環境変化の指標として有効なことが分かる。

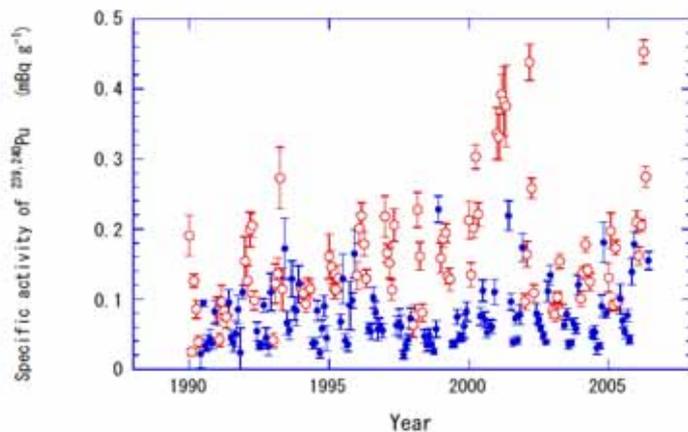


Fig. 24:  $^{239,240}\text{Pu}$  specific activity in monthly deposition samples during the period from 1990 to June 2006. Open circle: Jan. – May, closed circle: June – Dec.

環境中のプルトニウムは放射線防護の観点から、監視されなければならない核種である。一方、降下物中のプルトニウムの長期観測から、プルトニウムが大気循環や環境変化の指標として用いることができることが分かってきた。今後も、降下物中のプルトニウムの観測を続けることは、放射線防護ばかりでなく地球環境監視の観点からも重要である。

〔掲載論文〕

Miyake, Y., The artificial radioactivity in rain water observed in Japan from May to August, 1954, Papers in Meteorology and Geophysics, 5, 173-177, 1954

Miyake, Y., K. Saruhashi, Y. Katsuragi, T. Kanazawa, S. Tsunogai, Deposition of Cs-137 and Sr-90 in Tokyo through the end of July 1963, Papers in Meteorology and Geophysics, 14, 58-65, 1963.

Kuroda, P. K., Y. Miyake, J. Nemoto, Strontium isotopes Global circulation after the Chinese nuclear explosion of 14 May 1965, Science, 150, 1289-1290, 1965.

Katsuragi, Y., A study of  $^{90}\text{Sr}$  fallout in Japan, Papers in Meteorology and Geophysics, 33, 277-291, 1983.

Katsuragi, Y., K. Kawamura, H. Inoue, Tritium fallout in Tokyo, Papers in Meteorology and Geophysics, 34, 21-30, 1983.

Igarashi, Y., M. Otsuji-Hattori, K. Hirose, Recent deposition of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  observed in Tsukuba, Journal of Environmental Radioactivity, 31, 157-169, 1996.



Publication list 1954-2007

論文リスト（英文誌）1954-2007



## Publications

### 2007

1. Hirose, K., Y. Igarashi, M. Aoyama, 50 years records of atmospheric deposition of long-lived anthropogenic radionuclides in Japan, In: International Conference on Environmental Radioactivity: From Measurements and Assessments to Regulation, IAEA-CN-145, 95-96, 2007.
2. Hirose, K., Y. Igarashi, M. Aoyama, Recent trends of plutonium fallout observed in Japan: Comparison with natural lithogenic radionuclides, thorium isotopes, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 273 No.1, 115-118, 2007.
3. Hirose, K., M. Aoyama, M. Fukasawa, C. S. Kim, K. Komura, P. P. Povinec, J. A. Sanchez-Cabeza, Plutonium and  $^{137}\text{Cs}$  in surface water of the South Pacific Ocean, Science of the Total Environment, 381, 243-255, 2007.
4. Aoyama, M., K. Hirose, K. Nemoto, Y. Takatsuki, D. Tsumune, Water mass labeled with global fallout  $^{137}\text{Cs}$  formed by subduction in the North Pacific, Geophysical Res. Letters. In press.

### 2006

1. Yamamoto, M., A. Sakaguchi, K. Sasaki, K. Hirose, Y. Igarashi, C. K. Kim, Seasonal and spatial variation of atmospheric  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  deposition: features of the Japan Sea side of Japan, Journal of Environmental Radioactivity, 86, 110-131, 2006.
2. Hirose, K., M. Aoyama, C. S. Kim, C. K. Kim, P. P. Povinec, "Plutonium isotopes in seawater of the North Pacific: Effects of close-in fallout", INTERNATIONAL CONFERENCE ON ISOTOPES AND ENVIRONMENTAL STUDIES. Eds. P. P. Povinec, J. A. Sanchez-Cabeza. Vol. 8 of Radioactivity in the Environment, Elsevier, London, 2006.
3. Aoyama, M., K. Hirose, Y. Igarashi, Re-construction and updating our understanding on the global weapons tests  $^{137}\text{Cs}$  fallout, Journal of Environmental Monitoring, 8, 431-438, 2006.
4. Aoyama, M., M. Fukasawa, K. Hirose, R. F. C. Mantoura, P. P. Povinec, C. S. Kim, K. Komura, "Southern Hemisphere Ocean Tracer Study (SHOTS): An overview and preliminary results", INTERNATIONAL CONFERENCE ON ISOTOPES AND ENVIRONMENTAL STUDIES. Eds. P. P. Povinec, J. A. Sanchez-Cabeza. Vol. 8 of Radioactivity in the Environment, Elsevier, London, 2006.
5. Inoue, H. Y., H. Matsueda, Y. Igarashi, Y. Sawa, A. Wada, K. Nemoto, H. Sartorius, C. Schlosser, Seasonal and long-term variations in atmospheric  $\text{CO}_2$  and  $^{85}\text{Kr}$  in Tsukuba, Central Japan, Journal of the Meteorological Society of Japan, 84/6, 959-968, 2006.

### 2005

1. Hirose, K., M. Aoyama, Y. Igarashi, K. Komura, Extremely low background measurements of  $^{137}\text{Cs}$  in seawater samples using an underground facility (Ogoya), Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 263, 349-353, 2005.
2. Povinec, P. P., A. Aarkrog, K. O. Buesseler, R. Delfanti, K. Hirose, G. H. Hong, T. Ito, H. D. Livingston, H. Nies, V. E. Noshkin, S. Shima, O. Togawa,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  concentration surface water time series in the Pacific and Indian Oceans - WOMARS results, Journal of Environmental Radioactivity, 81, 63-87, 2005.
3. Igarashi, Y., M. Aoyama, K. Hirose, P. P. Povinec, S. Yabuki, What anthropogenic radionuclides ( $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$ ) in atmospheric deposition, surface soils and aeolian dusts suggest for dust transport over Japan, Water, Air, and Soil Pollution: Focus, 5, 51-69, 2005.

### 2004

1. Hirose, K., C. K. Kim, C. S. Kim, B. W. Chang, Y. Igarashi, M. Aoyama, Wet and dry depositions of plutonium in Daejeon, Korea, The Science of the Total Environment, 332, 243-252, 2004.
2. Povinec, P. P., K. Hirose, T. Honda, T. Ito, E. MarianScott, O. Togawa, Spatial distribution of  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  in surface waters of the Pacific and Indian Oceans - GLOMARD database, Journal of Environmental Radioactivity, 76, 113-137, 2004.
3. Aoyama, M., K. Hirose, Artificial Radionuclides database in the Pacific Ocean: Ham database, TheScientificWorldJOURNAL, 4, 200-215, 2004.

4. Hirota, M., K. Nemoto, A. Wada, Y. Igarashi, M. Aoyama, H. Matsueda, K. Hirose, H. Sartorius, C. Schlosser, S. Schmid, W. Weiss, K. Fujii, Spatial and temporal variations of atmospheric  $^{85}\text{Kr}$  observed during 1995-2001 in Japan: Estimation of atmospheric  $^{85}\text{Kr}$  inventory in the Northern Hemisphere, *Journal of Radiation Research*, 45, 405-413, 2004.
5. Hirose, K., Chemical speciation of thorium in marine biogenic particulate matter, *TheScientificWorldJOURNAL* 4, 67-76, 2004.

### 2003

1. Hirose, K., M. Aoyama, Analysis of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  concentrations in surface waters of the Pacific Ocean, *Deep-Sea Research II*, 50, 2675-2700, 2003.
2. Hirose, K., M. Aoyama, P. P. Povinec, Concentration of particulate plutonium in surface and deep-water, samples collected during the IAEA'97 expedition, *Deep-Sea Research II*, 50, 2639-2647, 2003.
3. Povinec, P. P., H. D. Livingston, S. Shima, M. Aoyama, J. Gastaud, I. Goroncy, K. Hirose, L. Huynh-Ngoc, Y. Ikeuchi, T. Ito, J. L. Rosa, L. L. W. Kwong, S. H. Lee, H. Moriya, S. Mulsow, B. Oregioni, H. Pettersson, O. Togawa, IAEA'97 expedition to the NW Pacific Ocean-Results of oceanographic and radionuclide investigations of the water column, *Deep-Sea Research II*, 50, 2607-2637, 2003.
4. Ito, T., P. P. Povinec, O. Togawa, K. Hirose, Temporal and spatial variation of anthropogenic radionuclides in seawater of the Japan Sea, *Deep-Sea Research II*, 50, 2701-2711, 2003.
5. Tsumune, D., M. Aoyama, K. Hirose, Behavior of  $^{137}\text{Cs}$  and concentrations in the North Pacific in an ocean general circulation model, *Journal of Geophysical Research*, 108, C8, 3262, 2003.
6. Hirose, K., M. Aoyama, Present background levels of surface  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  concentrations in the Pacific, *Journal of Environmental Radioactivity*, 69(1-2), 53-60, 2003.
7. Tsumune, D., M. Aoyama, K. Hirose, Numerical simulation of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  concentrations by an ocean general circulation model, *Journal of Environmental Radioactivity*, 69(1-2), 61-84, 2003.
8. Aoyama, M., K. Hirose, Temporal variation of  $^{137}\text{Cs}$  water column inventory in the North Pacific since the 1960s, *Journal of Environmental Radioactivity*, 69(1-2), 107-117, 2003.
9. Hirose, K., Y. Igarashi, M. Aoyama, C. K. Kim, C. S. Kim, B. W. Chang, Recent trends of plutonium fallout observed in Japan: Plutonium as a proxy for desertification, *J. Environ. Monit.*, 5, 302-307, 2003.
10. Igarashi, Y., M. Aoyama, K. Hirose, T. Miyao, K. Nemoto, M. Tomita, T. Fujikawa, Resuspension: Decadal monitoring time series of the anthropogenic radioactivity deposition in Japan, *Journal of Radiation Research*, 44, 319-328, 2003.
11. Kim, C. K., C. S. Kim, B. U. Chang, S. W. Choi, C. S. Chung, G. H. Hong, K. Hirose, Y. Igarashi, Plutonium isotopes in seas around the Korean Peninsula, *The Science of the Total Environment*, 318, 197-209, 2003.
12. Kim, C. K., C. S. Kim, B. U. Chang, S. W. Choi, C. S. Chung, G. H. Hong, K. Hirose, H. B. L. Pettersson,  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios in the bottom sediments of the NW Pacific Ocean, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 258(2), 265-268, 2003.
13. Lee, H. N., T. Tanaka, M. Chiba, Y. Igarashi, Long range transport of Asian dust from dust storms and its impact on Japan, *Water, Air, and Soil Pollution*, 3, 231-243, 2003
14. Hirose, K., Implication of  $\text{POC}/^{234}\text{Th}$  ratios in oceanic particulate matter: an approach to particle aggregation, *Papers of Meteorology and Geophysics*, 53, 4, 109-118, 2003.

### 2002

1. Hirose, K., T. Miyao, M. Aoyama, Y. Igarashi, Plutonium isotopes in the Sea of Japan, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 252, 293-299, 2002.
2. Hirose, K., M. Aoyama, Chemical speciation of plutonium in seawater, *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 372, 418-420, 2002.
3. Hong, G. H., Y. I. Kim, S. H. Lee, L. W. Cooper, S. M. Choe, A. V. Tkalin, T. Lee, S. H. Kim, C. S. Chung, K. Hirose,  $^{239+240}\text{Pu}$  and  $^{137}\text{Cs}$  concentrations for zooplankton and nekton in the Northwest Pacific and Antarctic Oceans (1993-1996), *Marine Pollution Bulletin*, 44, 660-665, 2002.

## 2001

1. Igarashi, Y., M. Aoyama, K. Nemoto, K. Hirose, T. Miyao, K. Fushimi, M. Suzuki, S. Yasui, Y. Asai, I. Aoki, K. Fujii, S. Yamamoto, H. Sartorius, W. Weiss,  $^{85}\text{Kr}$  measurement system for continuous monitoring at Meteorological Research Institute, Japan, *Journal of Environmental Monitoring*, 3, 688-696, 2001.
2. Igarashi, Y., M. Aoyama, K. Hirose, T. Miyao, S. Yabuki, Is it possible to use  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  as tracers for the aeolian transport?, *Water, Air, and Soil Pollution*, 130, 349-354, 2001.
3. Hirose, K., Y. Igarashi, M. Aoyama, T. Miyao, Long-term trends of plutonium fallout observed in Japan, In "Plutonium in the Environment", 251-266, 2001.
4. Aoyama, M., K. Hirose, T. Miyao, Y. Igarashi, P. P. Povinec,  $^{137}\text{Cs}$  activity in surface water in the western North Pacific, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 248, 3, 789-793, 2001.
5. Aoyama, M., K. Hirose, T. Miyao, Y. Igarashi, P. P. Povinec, Temporal variation of  $^{137}\text{Cs}$  inventory in the western North Pacific, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 248, 3, 785-787, 2001.
6. Hirose, K., M. Aoyama, T. Miyao, Y. Igarashi, Plutonium in seawaters on the western North Pacific, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 248, 3, 771-776, 2001.
7. Tsumune, D., M. Aoyama, K. Hirose, K. Maruyama, N. Nakashiki, Calculation of artificial radionuclides in the ocean by an ocean general circulation model, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 248, 3, 777-783, 2001.

## 2000

1. Shiraishi, K., S. Kimura, H. Yonehara, J. Takada, M. Ishikawa, Y. Igarashi, M. Aoyama, K. Komura, T. Nakazima, Survey of external dose around the JCO facility using sugar samples and ESR method., *Adv. ESR Appl.*, 16, 9-14, 2000.
2. Komura, K., M. Yamamoto, T. Muroyama, Y. Murata, T. Nakanishi, M. Hoshi, J. Takada, M. Ishikawa, K. Kitagawa, S. Suga, A. Endo, N. Tozaki, T. Mitsugashira, M. Hara, T. Hashimoto, M. Takano, Y. Yanagawa, T. Tsuboi, M. Ichimasa, Y. Ichimasa, H. Imura, E. Sasajima, R. Seki, Y. Saito, M. Kondo, S. Kojima, Y. Muramatsu, S. Yoshida, S. Shibata, H. Yonehara, Y. Watanabe, S. Kimura, K. Shiraishi, T. Bannai, S.K. Sahoo, Y. Igarashi, M. Aoyama, K. Hirose, M. Uehiro, T. Doi, T. Matsuzawa, The JCO criticality accident at Tokai-mura, Japan : An overview of the sampling campaign and preliminary results, *J. Environ. Radioactivity*, 50, 3-14, 2000.
3. Igarashi, Y., T. Miyao, M. Aoyama, K. Hirose, H. Sartorius, W. Weiss, Radioactive noble gases in the surface air monitored at MRI, Tsukuba, before and after the JCO accident, *J. Environ. Radioactivity*, 50, 107-118, 2000.
4. Miyao, T., K. Hirose, M. Aoyama, Y. Igarashi, Trace of the recent deep water formation in the Japan Sea deduced from historical  $^{137}\text{Cs}$  data, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 22, 3731-3734, 2000.
5. Aoyama, M., K. Hirose, T. Miyao, Y. Igarashi, Low level  $^{137}\text{Cs}$  measurements in deep seawater samples, *Appl. Radiat. Isot.*, 53, 159-162, 2000.
6. Igarashi, Y., H. Sartorius, T. Miyao, W. Weiss, K. Fushimi, M. Aoyama, K. Hirose, H. Y. Inoue,  $^{85}\text{Kr}$  and  $^{133}\text{Xe}$  monitoring at MRI, Tsukuba and its importance, *J. Environ. Radioactivity*, 48, 191-202, 2000.

## 1999

1. Hirose, K., H. Amano, M.S. Baxter, E. Chaykovskaya, V. B. Chumichev, G. H. Hong, Isogai, K., C. K. Kim, S. H. Kim, Miyao, T., Morimoto, T., A. Nikitin, Oda, K., H. B. L. Pettersson, P. P. Povinec, Seto, Y., A. Tkalin, Togawa, O and N. K. Veletova, Anthropogenic radionuclides in seawater in the East Sea/Japan Sea: Results of the first-stage Japanese-Korean-Russian expedition, *J. Environ. Radioactivity*, 43, 1-13, 1999.
2. Igarashi, Y., M. Aoyama, T. Miyao, K. Hirose, K. Komura and M. Yamamoto, Air concentration of radiocaesium in Tsukuba, Japan following the release from the Tokai waste treatment plant: Comparisons of observations with predictions, *Applied Radiation and Isotopes*, 50, 1063-1073, 1999.
3. Igarashi, Y., M. Aoyama, T. Miyao, K. Hirose and M. Tomita, Anomalous  $^{90}\text{Sr}$  deposition during the fall, 1995 at MRI, Tsukuba, Japan, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 239(3), 539-542, 1999.
4. Ikeuchi, Y., H. Amano, M. Aoyama, V. I. Berezhnov, E. Chaykovskaya, V. B. Chumichev, C. S. Chung,

J. Gastaud, K. Hirose, G. H. Hong, C. K. Kim, S. H. Kim, T. Miyao, T. Morimoto, A. Nikitin, K. Oda, H. B. L. Pettersson, P. P. Povinec, A. Tkalin, O. Togawa, N. K. Veletova, Anthropogenic radionuclides in seawater of the Far Eastern Seas, *Sci. Total Environ.*, 237/238, 203-212, 1999.

5. Pettersson, H. B. L., H. Amano, V. I. Berezhnov, E. Chaykovskaya, V. B. Chumichev, C. S. Chung, J. Gastaud, K. Hirose, G. H. Hong, C. K. Kim, S. H. Lee, T. Morimoto, A. Nikitin, K. Oda, P. P. Povinec, E. Suzuki, A. Tkalin, O. Togawa, N. K. Veletova, Y. Volkov, K. Yoshida, Anthropogenic radionuclides in sediments in the NW Pacific Ocean and its marginal seas: Results of the 1994-1995 Japanese-Korean-Russian expeditions, *Sci. Total Environ.*, 237/238, 213-224, 1999.
- 6.

### 1998

1. Igarashi, Y., K. Hirose and M. Otsuji-Hatori, Beryllium-7 deposition and its relation to sulfate Deposition, *J. Atmos. Chem.*, 29, 217-231, 1998.
2. Miyao, T., K. Hirose, M. Aoyama and Y. Igarashi, Temporal variation of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  in the sea of Japan, *J. Environ. Radioactivity*, 40, 239-250, 1998.

### 1997

1. Hirose, K., Complexation-scavenging of plutonium in the ocean, *Radioprotection - Colloq.*, 32, C2-225 - C2-230, 1997.

### 1996

1. Igarashi, Y., M. Otsuji-Hattori and K. Hirose, Recent deposition of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  observed in Tsukuba, *J. Environ. Radioactivity*, 31, 157-169, 1996.
2. Otsuji-Hattori, M., Y. Igarashi and K. Hirose, Preparation of a reference fall out material for activity measurements, *J. Environ Radioactivity*, 31, 2, 143-155, 1996.
- 3.

### 1995

1. Aoyama, M., and K. Hirose, The temporal and spatial variation of  $^{137}\text{Cs}$  concentration in the western North Pacific and its marginal seas during the period from 1979 to 1988, *J. Environ. Radioactivity*, 29, 57-74, 1995.
2. Hirose, K., Geochemical studies on the Chernobyl radioactivity in environmental samples, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, 197, 315-335, 1995.

### 1994

1. Hirose, K., S. Takatani and M. Aoyama, Deposition of  $^{90}\text{Sr}$  and plutonium isotopes derived from the Chernobyl accident in Japan, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, 182, 349-358, 1994.

### 1993

1. Hirose, K., and Y. Sugimura, Chemical speciation of particulate  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  and Th isotopes in seawater, *Sci. Total Environ.*, 130/131, 517-524, 1993.
2. Hirose, K., S. Takatani and M. Aoyama, Wet deposition of radionuclides derived from the Chernobyl accident, *J. Atmos. Chem.*, 17, 61-71, 1993.
3. Shiraishi, K., Y. Igarashi, M. Yamamoto and T. Nakajima, Concentrations of thorium and uranium in freshwater samples collected in the former USSR, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 185, 157-165, 1993.

### 1992

1. Aoyama, M., K. Hirose and S. Takatani., Particle size dependent dry deposition velocity of the Chernobyl radioactivity, In: *Precipitation Scavenging and Atmosphere - Surface Exchange*. volume 3, The Summers Volume: Application and Appraisals. Coordinated by S. E. Schwartz and W. G. N. Slinn. Hemisphere Publishing Corporation, Washington, 1581-1593, 1992.
2. Hirose, K., Y. Sugimura and M. Aoyama, Plutonium and  $^{137}\text{Cs}$  in the western North Pacific: Estimation of residence time of plutonium in surface water, *Appl. Radiat. Isot.*, 43, 349-359, 1992.

## 1991

1. Aoyama, M., K. Hirose and Y. Sugimura, The temporal variation of stratospheric fallout derived from the Chernobyl accident, *J. Environ. Radioactivity*, 13, 103-115, 1991.
2. Hirose, K., and Y. Sugimura, Chemical speciation of particulate uranium in seawater, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, 149, 83-96, 1991.

## 1990

1. Hirose, K., and Y. Sugimura, Plutonium isotopes in the surface air in Japan: Effect of Chernobyl accident, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, 138, 127-138, 1990.
2. Hirose, K., M. Aoyama and Y. Sugimura, Plutonium and cesium isotopes in river waters in Japan, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, 141, 191-202, 1990.
3. Hirose, K., M. Aoyama and Y. Sugimura, Short and long term effects of Chernobyl radioactivity on deposition and air concentrations in Japan, *IAEA-SM 306/129*, 141-149, 1990.

## 1988

1. Aoyama, M., Evidence of stratospheric fallout of caesium isotopes from Chernobyl accident, *Geophys. Res. Lett.*, 15, 327-330, 1988.
2. Miyake, Y., K. Saruhashi, Y. Sugimura, T. Kanazawa and K. Hirose, Contents of  $^{137}\text{Cs}$ , plutonium and americium isotopes in the southern ocean waters, *Pap. Met. Geophys.*, 39, 95-113, 1988.

## 1987

1. Aoyama, M., K. Hirose and Y. Sugimura, Deposition of gamma-emitting nuclides in Japan after the reactor-IV accident at Chernobyl, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, 116, 291-306, 1987.
2. Hirose, K., M. Aoyama, Y. Katsuragi and Y. Sugimura, Annual deposition of Sr-90, Cs-137 and Pu-239, 240 from the 1961-1980 nuclear explosions: A simple model, *J. Meteor. Soc. Japan*, 65, 259-277, 1987.

## 1986

1. Aoyama, M., K. Hirose, Y. Suzuki and Y. Sugimura, High level radioactive nuclides in Japan in May, *Nature*, 321, 819-820, 1986.
2. Hirose, K., Y. Sugimura and Y. Katsuragi,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{239+240}\text{Pu}$  in the surface air in Japan: their concentrations and size distributions, *Pap. Met. Geophys.*, 37, 255-269, 1986.
3. Katsuragi, Y., and M. Aoyama, Seasonal variation of Sr-90 fallout in Japan through the end of 1983, *Pap. Met. Geophys.*, 37, 15-36, 1986.
4. Suzuki, Y., H. Inoue, Y. Katsuragi and Y. Sugimura, The distribution of  $^{85}\text{Kr}$  in the air over the North and South Pacific Ocean Mem., *Natl. Inst. Polar Res., Spec. Issue*, 40, 462-466, 1986.

## 1985

1. Hirose, K., and Y. Sugimura, A new method of plutonium speciation in seawater, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, 92, 363-369, 1985.

## 1984

1. Hirose, K., and Y. Sugimura, Plutonium in the surface air in Japan, *Health Phys.*, 46, 1281-1285, 1984.
2. Inoue, H., Y. Katsuragi, K. Shigehara, Tritiated water vapor in the surface air at Tokyo, *Pap. Met. Geophys.*, 35, 11-20, 1984.

## 1983

1. Katsuragi, Y., A study of  $^{90}\text{Sr}$  fallout in Japan, *Pap. Met. Geophys.*, 33, 277-291, 1983.
2. Katsuragi, Y., K. Kawamura and H. Inoue, Tritium fallout in Tokyo, *Pap. Met. Geophys.*, 34, 21-30, 1983.

## 1982

1. Inoue, H., and Y. Katsuragi, A study of tritium fallout in Japan, *Pap. Met. Geophys.*, 32, 21-28, 1982.

2. Katsuragi, Y., K. Hirose and Y. Sugimura, A study of plutonium fallout in Japan, *Pap. Met. Geophys.*, 33, 85-93, 1982.

### 1981

1. Hirose, K., and Y. Sugimura, Concentration of uranium and the activity ratio of  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  in surface air-effect of atmospheric burn-up of cosmos-954, *Pap. Met. Geophys.*, 32, 317-322, 1981.
2. Hirose, K., and Y. Sugimura, Plutonium content of river water in Japan, *Pap. Met. Geophys.*, 32, 301-305, 1981.
3. Sugimura, Y., and M. Mayeda, An improved method of analysis of uranium in sea water using chelating resin, *Pap. Met. Geophys.*, 32, 167-171, 1981.

### 1980

1. Sugimura, Y., The uranium content and the activity ratio  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  in sea water in the Pacific ocean, *Isotope Marine Chemistry*, 211-246, 1980.

### 1979

1. Sugiura, Y., K. Saruhashi and Y. Miyake, Evaluation on the disposal of radioactive wastes into the North Pacific. - the effect of steady flow and up - welling, *Proc. The 3rd NEA Seminar on Marine Radioecology*, 1979.

### 1978

1. Miyake, Y., Nuclear weapons and radioactive pollution of the earth's environment, In: *Proc. Internal Symp. on the Damage and After-effects of the Atomic Bombing of Hiroshima and Nagasaki July 21-Aug., 9, 1977, Tokyo*, 164-188, 1978.

### 1976

1. Miyake, Y., and K. Saruhashi, A critical study on the IAEA definition of high level radioactive waste unsuitable for dumping at sea, *Pap. Met. Geophys.* 27, 75-80, 1976.
2. Miyake, Y., and K. Saruhashi, Disposal of radioactive waste into deep seas, *J. Radiat. Res.*, 17, 42-43, 1976.
3. Miyake, Y. and Y. Sugimura, The plutonium content in the Pacific Ocean waters, *Proc. of Symp. on Transuranium Nuclides in the Environment, San Francisco, 17-21 Nov. 1975, USERDA and IAEA, IAEA-SM-199/22*, 91-105, 1976.
4. Sugimura, Y., Symposium II "Plutonium in environment": II-1. Distribution and behavior of plutonium in the global environments, *J. Radiat. Res.*, 17, 4-5, 1976.
5. Sugiura, Y., K. Saruhashi and Y. Miyake, Evaluation on the disposal of radioactive wastes into the North Pacific, *Pap. Met. Geophys.*, 27, 81-87, 1976.

### 1975

1. Miyake, Y., T. Shimada, K. Kawamura, Y. Sugimura, K. Shigehara and K. Saruhashi, Distribution of tritium in the Pacific ocean, *Rec. Oceanogr. Works Japan*, 13, 17, 1975.
2. Miyake, Y., Y. Katsuragi and Y. Sugimura, Plutonium fallout in Tokyo, *Pap. Met. Geophys.*, 26, 1-8, 1975.
3. Miyake, Y., Y. Sugimura and Y. Hirao, Uranium, thorium and potassium contents in granitic and basaltic rocks in Japan, In: *The Natural Radiation Environment II, II, Proc. 2nd Intl. Symp. on Natural Radiation Environment, Aug. 7-11, 1972, Houston, Texas, USA, Eds. J. A. S. Adams, W. M. Lowder, T. F. Gesell*, 535-558, 1975.
4. Saruhashi, K., I-1 The global radioactive contamination due to nuclear weapon testings, *J. Radiat. Res.*, 16, 47, 1975.
5. Saruhashi, K., Y. Katsuragi, T. Kanazawa, Y. Sugimura and Y. Miyake,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the Pacific waters, *Rec. Oceanogr. Works Japan*, 13, 1-15, 1975.

### 1973

1. Miyake, Y., and K. Saruhashi, The radio-carbon model of the ocean, *Pap. Met. Geophys.*, 24, 263-271, 1973.
2. Miyake, Y., K. Saruhashi and Y. Sugimura, The isotopic ratio  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  in sea water and its bearings on the isotopic ratio in river waters, *Oceanogr. Works Japan*, 12, 23-25, 1973.
3. Miyake, Y., Y. Sugimura and K. Saruhashi, Content of plutonium in river water in Japan, *Pap. Met. Geophys.*, 24, 75-78, 1973.
4. Miyake, Y., Y. Sugimura and T. Yasujima, Thorium isotope content in river water in Japan, *Pap. Met. Geophys.*, 24, 67-73, 1973.

### 1972

1. Miyake, Y., Y. Sugimura and T. Uchida, A new method of spectrophotometric determination of uranium in sea water and uranium content with  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  ratio in the Pacific water, *Rec. Oceanogr. Works Japan*, 11, 53-63, 1972.

### 1970

1. Miyake, Y., Y. Katsuragi and Y. Sugimura, A study on plutonium fallout, *J. Geophys. Res.*, 75, 2329-2330, 1970.
2. Miyake, Y., Y. Sugimura and M. Mayeda, The uranium content and the activity ratio  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  in marine organisms and sea water in the western North Pacific, *J. Oceanogr. Soc. Japan*, 26, 123-129, 1970.

### 1969

1. Miyake, Y., Radioactive contamination of the ocean, *Bull. Jpn. Soc. Fisheries Oceanogr.*, Nov., 1969, 1969.

### 1968

1. Miyake, Y. and Y. Sugimura, Plutonium content in the western North Pacific waters, *Pap. Met. Geophys.*, 19, 481-485, 1968.
2. Miyake, Y., Y. Katsuragi and Y. Sugimura, Deposition of plutonium in Tokyo through the end of 1966, *Pap. Met. Geophys.*, 19, 267-276, 1968.

### 1967

1. Miyake, Y., and T. Kanazawa, Atmospheric ozone and radioactive fallout, *Pap. Met. Geophys.*, 18, 311-326, 1967.
2. Miyake, Y., Radioactive contamination of the ocean, *J. Radiat. Res.*, 8, 1, 1967.
3. Miyake, Y., Sea, radioactivity. In: *International Dictionary of Geophysics*, 1-7, 1967.

### 1966

1. Miyake, Y., and K. Saruhashi, On the radio-carbon age of the ocean waters, *Pap. Met. Geophys.*, 17, 218-223, 1966.
2. Miyake, Y., and Y. Sugimura, Ratio  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  and the uranium concentration in seawater in the western North Pacific, *J. Geophys. Res.*, 71, 3083-3087, 1966.

### 1965

1. Kuroda, P. K., Y. Miyake and J. Nemoto, Strontium isotopes global circulation after the Chinese nuclear explosion of 14 May 1965, *Science*, 150, 1289-1290, 1965.
2. Miyake, Y., K. Saruhashi, K. Katsuragi and T. Kanazawa, Radioactivity of dust and rain – the ratio of Cs-137 and Sr-90 in the radioactive fallout, *Proc. Internl. Conf. on Cloud Physics*, Tokyo, IAMAP, 395-399, 1965.
3. Park, K., M. J. George, Y. Miyake, K. Saruhashi, Y. Katsuragi and T. Kanazawa, Strontium-90 and caesium-137 in Columbia river plume, July 1964, *Nature*, 208, 1084-1085, 1965.

## 1964

1. Miyake, Y. and Y. Sugimura, Uranium and radium in the western North Pacific waters, *Studies on Oceanography*, Prof. K. Hidaka Sixtieth Birthday Commemorative Volume, Univ. of Tokyo Press, Tokyo, 274-278, 1964.
2. Miyake, Y. and Y. Ohtsuka, Beryllium-7 in rain water, *Pap. Met. Geophys.*, 15, 89-92, 1964.
3. Miyake, Y., A sequential procedure for the radiochemical analysis of marine material, Annex to Safety Series 11. "Method of surveying and monitoring marine radioactivity, IAEA, Vienna, 26, 1964.
4. Miyake, Y., Atomic weapons and the pollution of the sea, *The East*, 3, 64-68, 1964.
5. Miyake, Y., K. Saruhashi, Y. Katsuragi, T. Kanazawa and Y. Sugimura, Uranium, radium, thorium, ionium, strontium 90 and cesium 137 in coastal waters of Japan, In, *Recent Researches in the Fields of Hydrosphere, Atmosphere and Nuclear Geochemistry*, published by Editorial Committee of Sugawara Festival Volume, Maruzen Co. Ltd., PP. 127-141, 1964.
6. Miyake, Y., Y. Sugimura and H. Tsubota, Content of uranium, radium, and thorium in river waters in Japan, In: *The Natural Radiation Environment*, Eds. J. A. S. Adams and W. M. Lowder, Univ. of Chicago Press, Chicago (Rice Univ. Semicentennial Series), 219-225, 1964.
7. Sugimura, Y., T. Torii and S. Murata, Uranium distribution in drake passage waters, *Nature*, 204, 464-465, 1964.

## 1963

1. Folsom, T. R. and K. Saruhashi, A comparison of analytical techniques used for determination of fallout cesium in sea water for oceanographic purpose, *J. Radiat. Res.*, 4, 39-53, 1963.
2. Miyake, Y. and H. Tsubota, Estimation of the direct contribution of meteoric water to river waters by means of fall-out radio-cesium and radiostrontium, "Radioisotopes in Hydrology" Proc. IAEA Symp., Tokyo. IAEA, Vienna, 425-431, 1963.
3. Miyake, Y., Artificial radioactivity in the Pacific ocean, IUGG Monograph, 20 (Radioactive traces in oceanography), 1963.
4. Miyake, Y., K. Saruhashi, K. Katsuragi and T. Kanazawa, Deposition of Cs-137 and Sr-90 in Tokyo through the end of July 1963, *Pap. Met. Geophys.*, 13, 180-181, 1963.
5. Miyake, Y., K. Saruhashi, Y. Katsuragi, T. Kanazawa and S. Tsunogai, Deposition of <sup>90</sup>Sr and <sup>137</sup>Cs in Tokyo through the end of July 1963, *Pap. Met. Geophys.*, 14, 58-65, 1963.

## 1962

1. Miyake, Y., K. Saruhashi, Y. Katsuragi and T. Kanazawa, Seasonal variation of radioactive fallout, *J. Geophys. Res.*, 67, 189-193, 1962.
2. Miyake, Y., K. Saruhashi, Y. Katsuragi and T. Kanazawa, Penetration of <sup>90</sup>Sr and <sup>137</sup>Cs in deep layers of the Pacific and vertical diffusion rate of deep water, *J. Radiat. Res.*, 3, 141-147, 1962.
3. Miyake, Y., K. Saruhashi, Y. Katsuragi and T. Kanazawa, The peak in radioactive fallout in the temperate zone of the northern hemisphere, *J. Radiat. Res.*, 3, 148-152, 1962.
4. Sugimura, Y., and T. Sugimura, Uranium in recent Japanese sediments, *Nature*, 194, 568-569, 1962.

## 1961

1. Miyake, Y., K. Saruhashi, Y. Katsuragi and T. Kanazawa, Cesium 137 and strontium 90 in sea water, *J. Radiat. Res.*, 2 25-28, 1961.
2. Miyake, Y., K. Saruhashi, Y. Katsuragi and T. Kanazawa, Cesium 137 and strontium 90 in sea water, *Pap. Met. Geophys.*, 12, 85-88, 1961.

## 1960

1. Miyake, Y., and K. Saruhashi, Vertical and horizontal mixing rates of radioactive material in the ocean, *Disposal of Radioactive wastes IAEA Vienna*, 167-173, 1960.
2. Miyake, Y., and Y. Katsuragi, Strontium 90 in western North Pacific surface waters, *Pap. Met. Geophys.*, 11, 188-190, 1960.
3. Miyake, Y., K. Saruhashi, Y. Katsuragi and T. Kanazawa, Radioactive fallout in Japan and its bearings

on meteorological conditions, *Pap. Met. Geophys.*, 11, 151-158, 1960.

### **1959**

1. Miyake, Y., K. Saruhashi and Y. Katsuragi, The Sr-90 fallout and the air motion, *Pap. Met. Geophys.*, 9, 172-176, 1959.
2. Miyake, Y., Special committee on oceanic research, Working Group on Radioactivity in the Ocean, 1959.

### **1958**

1. Miyake, Y., and K. Saruhashi, Distribution of man-made radio-activity in the North Pacific through summer 1955, *J. Mar. Res.*, 17, 383-389, 1958.
2. Miyake, Y., and Y. Sugiura, The method of measurement of radioactivity in sea water, *Pap. Met. Geophys.*, 9, 48-50, 1958.
3. Miyake, Y., Hazards to human health of radioactive dust, *Radio Japan*, 2, 3-5, 1958.
4. Miyake, Y., The distribution of artificial radioactivity in the equatorial region in the Pacific in the summer of 1956, *The Proc. 9th Pacific Science Congress*, 16, 227, 1958.

### **1957**

1. Miyake, Y., and K. Saruhashi, The world-wide strontium 90 deposition during the period from 1951 to the fall of 1955, *Pap. Met. Geophys.*, 8, 241-243, 1957.
2. Miyake, Y., The biological effects of nuclear tests - warning by Japanese scientists, *Radio Japan*, 1, 3-5, 1957.
3. Miyake, Y., Y. Sugiura, K. Saruhashi and T. Kanazawa, The estimation of the amount of Sr-90 deposition and the external infinite gamma dose in Japan due to man-made radioactivity, *Pap. Met. Geophys.*, 8, 222-231, 1957.

### **1956**

1. Miyake, Y., On the distribution of radioactivity in the North Pacific ocean in 1954-1955, *Internl. Conf. for Peaceful Uses of Atomic Energy in Geneva*, August 1955, 13, pp.381-384, 1956.
2. Miyake, Y., Radioactivity in rain water and air, *Proc. Internl. Conf. for Peaceful Uses of Atomic Energy in Geneva*, August 1955, 13, 345-349, 1956.
3. Sugiura, Y., and T. Kanazawa, On the radioactive fall out collected in Tokyo on 26th November, 1955, *Pap. Met. Geophys.*, 7, 128-135, 1956.

### **1955**

1. Miyake, Y., and Y. Sugiura, Radiochemical analysis of radio-nuclides in sea water collected near BIKINI atoll, *Pap. Met. Geophys.*, 6, 90-92, 1955.
2. Miyake, Y., Effects of atomic explosions on the atmosphere and sea, *The research in the effects and influences of the nuclear bomb test explosions*, 1-6, 1955.
3. Miyake, Y., K. Kigoshi and K. Saruhashi, Radiochemical analysis of fission products contained in the soil collected at Tokyo, May, 1954, *Pap. Met. Geophys.*, 6, 93-94, 1955.
4. Miyake, Y., K. Kigoshi and K. Saruhashi, Radiochemical analysis of fission products contained in the soil collected at Tokyo, May, 1954, *Pap. Met. Geophys.*, 6, 1, 93-94, 1955.
5. Miyake, Y., The artificial radioactivity in rain water observed in Japan, 1954-1955, *Research in the effects and influences of the nuclear bomb test explosions science*, 151-159, 1955.
6. Miyake, Y., The artificial radioactivity in rain water observed in Japan, from autumn 1954 to spring 1955, *Pap. Met. Geophys.*, 6, 26-32, 1955.
7. Miyake, Y., Y. Sugiura and K. Kameda, On the artificial radioactivity in the sea near Japan, *Pap. Met. Geophys.*, 6, 90-92, 1955.
8. Miyake, Y., Y. Sugiura and K. Kameda, On the distribution of radioactivity in the sea around Bikini atoll in June, 1954, *Pap. Met. Geophys.*, 5, 253-262, 1955.
9. Miyake, Y., Y. Sugiura and K. Kameda, Research in the effects and influence of the nuclear bomb test explosions, *Soc. for Promotion of Science*, 415-417, 1955.

## 1954

1. Miyake, Y., K. Kigoshi Y. Sugiura and K. Saruhashi, A study on the productivity in coastal waters by means of the radio-carbon, *Pap. Met. Geophys.*, 5, 89-94, 1954.
2. Miyake, Y., The artificial radioactivity in rain water observed in Japan from May to August, 1954, *Pap. Met. Geophys.*, 5, 173-177, 1954.

Publication list 1954-2007

論文リスト（和文誌）1954-2007



## 論文リスト（和文学協会誌） 1954 - 2007

### 2007

1. 三浦誓也, 貝森優希, 工藤英嗣, 野呂幸男, 時枝隆之, 廣瀬勝己, 青森県における大気中クリプトン-85 濃度調査, 青森県原子力センター所報, 1, 43-44, 2007.

### 2006

1. 青山道夫, 大気と海洋深層における核実験起源フォールアウトの超低レベル放射能測定, Radioisotopes, 55, 429-438, 2006
2. 小村和久, 青山道夫, 秋山正和, 氏平祐輔, 大田裕二, 大塚良仁, 大西勝基, 櫻井敬久, 篠原伸夫, Ge 検出器の使用状況に関するアンケート報告, Radioisotopes, 55, 699-707, 2006

### 2004

1. 廣瀬勝己, 化学トレーサーを利用した海洋変動の研究, 測候時報第 71 巻特別号, 71, S81-S86, 2004.
2. 五十嵐康人, 廣瀬勝己, 放射性降下物標準試料の調製を通じた  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , プルトニウムなどの人工放射性核種分析の相互比較と参照値の決定, 放射化分析, No. 17, 39-42, 2004.

### 2002

1. 五十嵐康人,  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を用いたダスト輸送過程と再飛散, エアロゾル研究, 12, 17(4), 252, 2002.

### 1986

1. 鈴木款, 井上久幸, 杉村行勇, 大気中の放射性クリプトンの分布, 地球化学, 20, 106-108, 1986.

### 1978

1. 葛城幸雄, 人工放射性物質, 天気, 25, 第 11 号, 20-23, 1978.
2. 猿橋勝子, 海洋中の放射性物質を指標とした物質の移動・拡散, 水汚染の機構と解析 — 環境科学持論一, 日本地球化学編, 東京, 産業図書, 271-287, 1978.
3. 三宅泰雄, 猿橋勝子, 杉村行勇, 葛城幸雄, 金沢照子, 核兵器と地球環境の放射能汚染, 被爆の実相と被爆者の実情 - 1977 年 NGO 被爆問題シンポジウム報告書, ISDA - JNPC 編集, 朝日イブニングニュース社発行, 182-212, 1978.

### 1976

1. 葛城幸雄, 日本における放射性降下物, 天気, 23, No. 7, 333-345, 1976.
2. 杉村行雄, 環境のなかのプルトニウム, 自然, 3 月号, 1976.

### 1975

1. 三宅泰雄, 島田利夫, 川村清, 重原好次, 地上大気トリチウム含量と気象との関係, 日本地球化学会“環境問題特別号”, 131-135, 1975.

### 1974

1. 三宅泰雄, 葛城幸雄, 最近の  $^{90}\text{Sr}$  降下物の起源, 天気, 21, 639-644, 1974.

### 1971

1. 葛城幸雄, 人工放射能による大気汚染, 気象研究ノート, 107, 258-282, 1971.

### 1970

1. 三宅泰雄, 葛城幸雄, 最近の日本における放射性塵の降下, 天気, 17, 593-598, 1970.

### 1965

1. 葛城幸雄, 日本における Cs-137 および Sr-90 降下について(I), 天気, 12, 323-328, 1965.
2. 葛城幸雄, 日本における Cs-137 および Sr-90 降下について(II)"成層圏における人工放射性物質の滞留時間の推定", 天気, 12, 377-384, 1965.

### 1964

1. 三宅泰雄, 葛城幸雄, 金沢照子, 放射性降下物の現状と将来, 科学, 34, 142-148, 1964.

### 1963

1. 三宅泰雄, フォールアウトの気象学の側面, 天気, 9, No. 1, 1962.

### 1962

1. 三宅泰雄, フォールアウトの気象学的側面, 天気, 9, 1-6, 1962.
2. 三宅泰雄, 猿橋勝子, 放射能による水の汚染, 水利科学, 23, 1-14, 1962.

### 1958

1. 三宅泰雄, 猿橋勝子, 放射化学と海洋, 科学, 28, 510-513, 1958.

### 1956

1. 三宅泰雄, 杉浦吉雄, 葛城幸雄, 1955 年 4 月旭川地方に降った放射性の落下塵, 気象集誌, 第 2 号, 34, 226-230, 1956.

### 1955

1. 三宅泰雄, 放射能雨の性格, 測候時報, 22, 196-202, 1955.
2. 三宅泰雄, 日本に降った人工放射性雨・雪[II]9 月~12 月, 天文と気象, 21, 1-8, 1955.
3. 三宅泰雄, 杉浦吉雄, 亀田和久, 日本近海の海水放射能について, 昭和 29 年度海洋資源開発調査報告(黒潮班), 81-82, 1955.
4. 三宅泰雄, 放射能雨の性格, 測候時報, 22, No. 7, 196-202, 1955.

### 1954

1. 三宅泰雄, 日本に降った人工放射性雨(1954 年 5-7 月), 天文と気象, 20, 1-8, 1954.
2. 三宅泰雄, 杉浦吉雄, 亀田和久, ビキニ海域における人工放射能の分布とその海洋学的考察"ビキニ灰とそれによる傷害 第三", 科学, 24, 601-605, 1954.
3. 三宅泰雄, 有住直介, 磯野謙治, 田島英三, ビキニの灰とそれによる傷害(つづき)日本に降った放射能雨, 科学, 24, No. 8, 405-409, 1954.

### 年代・雑誌名不明

1. 三宅泰雄, 放射能とその作用, 遺伝, (1975?)
2. 三宅泰雄, 第 II 編 環境の放射能汚染と化学分析, (1970?)
3. 三宅泰雄, 猿橋勝子, 杉村行勇, 海洋における放射性核種, 海洋化学講座, 第 6 巻, 海洋無機化学, 第 4 章, 109-170, (1969?)
4. 三宅泰雄, 田島英三, 日米放射能会議, 8-18, (1954?)

## 2005年版 掲載論文リスト

### 1 . 人工放射性降下物（死の灰のゆくえ）

Igarashi, Y., M. Aoyama, K. Hirose, T. Miyao, K. Nemoto, M. Tomita, T. Fujikawa, Resuspension: Decadal monitoring time series of the anthropogenic radioactivity deposition in Japan, *Journal of Radiation Research*, 44, 319-328, 2003.

Igarashi, Y., M. Aoyama, K. Hirose, P.P. Povinec, S. Yabuki, What anthropogenic radionuclides ( $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$ ) in atmospheric deposition, surface soils and aeolian dusts suggest for dust transport over Japan, *Water, Air, and Soil Pollution: Focus*, 5, 51-69, 2005.

### 2 . 大気浮遊塵

### 3 . 茨城県つくば市における大気中の放射性希ガスの観測

Hirota, M., K. Nemoto, A. Wada, Y. Igarashi, M. Aoyama, H. Matsueda, K. Hirose, H. Sartorius, C. Schlosser, S. Schmid, W. Weiss, K. Fujii, Spatial and temporal variations of atmospheric  $^{85}\text{Kr}$  observed during 1995-2001 in Japan: Estimation of atmospheric  $^{85}\text{Kr}$  inventory in the Northern Hemisphere, *Journal of Radiation Research*, 45, 405-413, 2004

### 4 . 環境中のトリチウムの挙動に関する研究

### 5 . 海水中の人工放射能 - 太平洋について

Hirose, K., M. Aoyama, Y. Igarashi, K. Komura, Extremely low background measurements of  $^{137}\text{Cs}$  in seawater samples using an underground facility (Ogoya) , *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 263, 349-353, 2005.

Aoyama, M., K. Hirose, Artificial radionuclides database in the Pacific Ocean: Ham database, *TheScientificWorldJOURNAL*, 4, 200-215, 2004.

Hirose, K., M. Aoyama, Analysis of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  concentrations in surface waters of the Pacific Ocean, *Deep-Sea Research Part II*, 50, 2675-2700, 2003.

Povinec, P. P., H. D. Livingston, S. Shima, M. Aoyama, J. Gastaud, I. Goroncy, K. Hirose, L. H. N. Kwong, S. H. Lee, H. Moriya, S. Mulsow, B. Oregioni, H. Pettersson, O. Togawa, IAEA'97 expedition to the NW Pacific Ocean-results of oceanographic and radionuclide investigations of the water column, *Deep-Sea Research Part II*, 50, 2607-2637, 2003.

Aoyama, M., K. Hirose, Temporal variation of  $^{137}\text{Cs}$  water column inventory in the North Pacific since the 1960s, *Journal of Environmental Radioactivity*, 69(1-2), 107-117, 2003.

Povinec, P. P., A. Aarkrog, K. O. Buesseler, R. Delfanti, K. Hirose, G. H. Hong, T. Ito, H. D. Livingston, H. Nies, V. E. Noshkin, S. Shima, O. Togawa,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  concentration surface water time series in the Pacific and Indian Oceans - WOMARS results, *Journal of Environmental Radioactivity*, 81, 63-87, 2005.

## 6 . 日本の主要河川水中の人工放射性核種

## 7 . 大気降下物及び海水中のプルトニウム

Hirose, K., M. Aoyama, P. P. Povinec, Concentration of particulate plutonium in surface and deep-water samples collected during the IAEA'97 expedition, *Deep-Sea Research*, 50, 2639-2647, 2003.

Hirose, K., Y. Igarashi, M. Aoyama, C. K. Kim, C. S. Kim, B. W. Chang, Recent trends of plutonium fallout observed in Japan: Plutonium as a proxy for desertification, *Journal of Environmental Monitoring*, 5, 302-307, 2003.

## 2003 年版 掲載論文リスト

### 1 . 人工放射性降下物 ( 死の灰のゆくえ )

Hirose, K., Y. Igarashi, M. Aoyama, T. Miyao, Long-term trends of plutonium fallout observed in Japan, In "Plutonium in the Environment", 251-266, 2001.

Igarashi, Y., M. Aoyama, K. Hirose, T. Miyao, S. Yabuki, Is it possible to use  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  as tracers for the aeolian transport?, Water, Air, and Soil Pollution, 130, 349-354, 2001.

### 2 . 大気浮遊塵

Hirose, K., S. Takatani and M. Aoyama, Wet deposition of radionuclides derived from the Chernobyl accident, J. Atmos. Chem., 17, 61-71, 1993.

### 3 . 茨城県つくば市における大気中の放射性希ガスの観測

Igarashi, Y., M. Aoyama, K. Nemoto, K. Hirose, T. Miyao, K. Fushimi, M. Suzuki, S. Yasui, Y. Asai, I. Aoki, K. Fujii, S. Yamamoto, H. Sartorius, W. Weiss,  $^{85}\text{Kr}$  measurement system for continuous monitoring at Meteorological Research Institute, Japan, Journal of Environmental Monitoring, 3, 688-696, 2001.

### 4 . 環境中のトリチウムの挙動に関する研究

### 5 . 日本海における $^{137}\text{Cs}$ ( セシウム-137 ) 及び $^{239,240}\text{Pu}$ ( プルトニウム-239、240 ) の時間的変動

Hirose, K., T. Miyao, M. Aoyama, Y. Igarashi, Plutonium isotopes in the Sea Japan, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 252(2), 293-299, 2002.

Miyao, T, K. Hirose, M. Aoyama, Y. Igarashi, Trace of the recent deep water formation in the Japan Sea deduced from historical  $^{137}\text{Cs}$  data, Geophys. Res. Lett., 27, 22, 3731-3734, 2000.

### 6 . 海水中の人工放射能 - 太平洋について

Hirose, K., M. Aoyama, Present background levels of surface  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  concentrations in the Pacific, Journal of Environmental Radioactivity, 69, 53-60, 2003.

Tsumune, D., M. Aoyama, K. Hirose, Numerical simulation of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  concentrations by an ocean general circulation model, Journal of Environmental Radioactivity, 69, 61-84, 2003.

Aoyama, M. K. Hirose, Temporal variation of  $^{137}\text{Cs}$  water column inventory in the North Pacific since the 1960s, Journal of Environmental Radioactivity, 69, 107-117, 2003.

### 7 . 日本の主要河川水中の人工放射性核種

### 8 . 大気降下物及び海水中のプルトニウム

Hirose, K., Y. Igarashi, M. Aoyama, C. K. Kim, C. S. Kim, B. W. Chang, Recent trends of plutonium fallout observed in Japan: plutonium as a proxy for desertification, Journal of Environmental Monitoring and restoration, 5, 302-307, 2003.

Hirose, K., M. Aoyama, Chemical speciation of plutonium in seawater, Analytical and Bioanalytical chemistry, 372, 418-420, 2002.

### 9 . 1986 年チェルノブイリ原子力発電所事故及び 1997 年動燃東海事故由来の放射性核種の輸送

Igarashi, Y., M. Aoyama, T. Miyao, K. Hirose, K. Komura and M. Yamamoto, Air concentration of radiocaesium in Tsukuba, Japan following the release from the Tokai waste treatment plant: Comparisons of observations with predictions, Applied Radiation and Isotopes, 50, 1063-1073, 1999.

## 2001 年版 掲載論文リスト

### 1 . 人工放射性降下物 ( 死の灰のゆくえ )

Igarashi, Y., M. Aoyama, K. Hirose, T. Miyao, S. Yabuki, Is it possible to use  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  as tracers for the aeolian transport?, *Water, Air, and Soil Pollution*, 130, 349-354, 2001.

Hirose, K., M. Aoyama, Y. Katsuragi and Y. Sugimura, Annual deposition of Sr-90, Cs-137 and Pu-239, 240 from the 1961-1980 nuclear explosions: A simple model, *J. Meteor. Soc. Japan*, 65, 259-277, 1987.

Katsuragi, Y., and M. Aoyama, Seasonal variation of Sr-90 fallout in Japan through the end of 1983, *Pap. Met. Geophys.*, 37, 15-36, 1986.

Katsuragi, Y., A study of  $^{90}\text{Sr}$  Fallout in Japan, *Pap. Met. Geophys.*, 33(4), 277-291, 1983.

### 2 . 大気浮遊塵

Hirose, K., S. Takatani and M. Aoyama, Wet deposition of radionuclides derived from the Chernobyl accident, *J. Atmos. Chem.*, 17, 61-71, 1993.

### 3 . 茨城県つくば市における大気中の放射性希ガスの観測

Igarashi, Y., M. Aoyama, K. Nemoto, K. Hirose, T. Miyao, K. Fushimi, M. Suzuki, S. Yasui, Y. Asai, I. Aoki, K. Fujii, S. Yamamoto, H. Sartorius, W. Weiss,  $^{85}\text{Kr}$  measurement system for continuous monitoring at Meteorological Research Institute, Japan, *Journal of Environmental Monitoring*, 3, 688-696, 2001

### 4 . 環境中のトリチウムの挙動に関する研究

Katsuragi, Y., K. Kawamura and H. Inoue, Tritium fallout in Tokyo, *Pap. Met. Geophys.*, 34, 21-30, 1983.

### 5 . 日本海における $^{137}\text{Cs}$ ( セシウム-137 ) 及び $^{239,240}\text{Pu}$ ( プルトニウム-239、240 ) の時間的変動

Miyao, T., K. Hirose, M. Aoyama, Y. Igarashi, Trace of the recent deep water formation in the Japan Sea deduced from historical  $^{137}\text{Cs}$  data, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 22, 3731-3734, 2000.

### 6 . 海水中の人工放射能 - 太平洋について

Aoyama, M., K. Hirose, T. Miyao, Y. Igarashi, P. P. Povinec,  $^{137}\text{Cs}$  activity in surface water in the western North Pacific, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 248, 3, 789-793, 2001.

Aoyama, M., K. Hirose, T. Miyao, Y. Igarashi, P. P. Povinec, Temporal variation of  $^{137}\text{Cs}$  inventory in the western North Pacific, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 248, 3, 785-787, 2001.

Tsumune, D., M. Aoyama, K. Hirose, K. Maruyama, N. Nakashiki, Calculation of artificial radionuclides in the ocean by an ocean general circulation model, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 248, 3, 777-783, 2001.

### 7 . 日本の主要河川水中の人工放射性核種

Hirose, K., M. Aoyama and Y. Sugimura, Plutonium and cesium isotopes in river waters in Japan, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, 141, 191-202, 1990.

### 8 . 大気降下物及び海水中のプルトニウム

Hirose, K., M. Aoyama, T. Miyao, Y. Igarashi, Plutonium in seawaters on the western North Pacific, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 248, 3, 771-776, 2001.

Hirose, K., M. Aoyama, Y. Katsuragi and Y. Sugimura, Annual deposition of Sr-90, Cs-137 and Pu-239, 240 from the 1961-1980 nuclear explosions: a simple model, *J. Meteor. Soc. Japan*, 65, 259-277, 1987. ( 人工放射性降下物の項に収録 )

### 9 . 1986 年チェルノブイリ原子力発電所事故及び 1997 年動燃東海事故由来の放射性核種の輸送

Aoyama, M., K. Hirose, Y. Suzuki and Y. Sugimura, High level radioactive nuclides in Japan in May, *Nature*, 321, 819-820, 1986.

Igarashi, Y., M. Aoyama, T. Miyao, K. Hirose, K. Komura and M. Yamamoto, Air concentration of radiocaesium in Tsukuba, Japan following the release from the Tokai waste treatment plant: Comparisons of observations with predictions, *Applied Radiation and Isotopes*, 50, 1063-1073, 1999.

## 1999年版 掲載論文リスト

### 1 . 人工放射性降下物 ( 死の灰のゆくえ )

Igarashi, Y., M. Otsuji-Hattori and K. Hirose, Recent deposition of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  observed in Tsukuba, J. Environ. Radioactivity, 31, 157-169, 1996.

Hirose, K., M. Aoyama, Y. Katsuragi and Y. Sugimura, Annual deposition of Sr-90, Cs-137 and Pu-239, 240 from the 1961-1980 nuclear explosions: a simple model, J. Meteor. Soc. Japan, 65, 259-277, 1987.

Katsuragi, Y., and M. Aoyama, Seasonal variation of Sr-90 fallout in Japan through the end of 1983, Pap. Met. Geophys., 37, 15-36, 1986.

Katsuragi, Y., A study of  $^{90}\text{Sr}$  fallout in Japan, Pap. Met. Geophys., 33, 277-291, 1983.

### 2 . 大気浮遊塵

Hirose, K., S. Takatani and M. Aoyama, Wet deposition of radionuclides derived from the Chernobyl accident, J. Atmos. Chem., 17, 61-71, 1993.

### 3 . 茨城県つくば市における大気中の放射性希ガスの観測

### 4 . 環境中のトリチウムの挙動に関する研究

Katsuragi, Y., K. Kawamura and H. Inoue, Tritium fallout in Tokyo, Pap. Met. Geo phys., 34, 21-30, 1983.

### 5 . 日本海における $^{137}\text{Cs}$ ( セシウム-137 ) 及び $^{239,240}\text{Pu}$ ( プルトニウム-239、240 ) の時間的変動

Miyao, T., Hirose, K., Aoyama, M. and Igarashi Y. Temporal variation of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  in the Sea of Japan. J. Environ. Radioactivity, Vol. 40, No. 3, 239-250, 1998.

### 6 . 海水中の人工放射能 - 太平洋について

Aoyama, M., and K. Hirose, The temporal and spatial variation of  $^{137}\text{Cs}$  concentration in the western North Pacific and its marginal seas during the period from 1979 to 1988, J. Environ. Radioactivity, 29, 57-74, 1995.

### 7 . 日本の主要河川水中の人工放射性核種

Hirose, K., M. Aoyama and Y. Sugimura, Plutonium and cesium isotopes in river waters in Japan, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 141, 191-202, 1990.

### 8 . 大気降下物及び海水中のプルトニウム

Hirose, K., Y. Sugimura and M. Aoyama, Plutonium and  $^{137}\text{Cs}$  in the western North Pacific: Estimation of residence time of plutonium in surface water, Appl. Radiat. Isot., 43, 349-359, 1992.

Hirose, K., M. Aoyama, Y. Katsuragi and Y. Sugimura, Annual deposition of Sr-90, Cs-137 and Pu-239, 240 from the 1961-1980 nuclear explosions: A simple model, J. Meteor. Soc. Japan, 65, 259-277, 1987. ( 人工放射性降下物の項に収録 )

### 9 . 1986年チェルノブイリ原子力発電所事故及び1997年動燃東海事故由来の放射性核種の輸送

Aoyama, M., K. Hirose, Y. Suzuki and Y. Sugimura, High level radioactive nuclides in Japan in May, Nature, 321, 819-820, 1986.

Igarashi, Y., M. Aoyama, T. Miyao, K. Hirose, K. Komura and M. Yamamoto, Air concentration of radiocaesium in Tsukuba, Japan following the release from the Tokai waste treatment plant: Comparisons of observations with predictions, Applied Radiation and Isotopes, 50, 1063-1073, 1999.

## 複製・転載許可

Hirose, K., M. Aoyama, M. Fukasawa, C. S. Kim, K. Komura, P. P. Povinec, J. A. Sanchez-Cabeza, Plutonium and  $^{137}\text{Cs}$  in surface water of the South Pacific Ocean, *Science of the Total Environment*, 381, 243-255, 2007. Reprint with permission from Elsevier Science, Oct. 22, 2007.

Hirose, K., Y. Igarashi, M. Aoyama, Recent trends of plutonium fallout observed in Japan: Comparison with natural lithogenic radionuclides, thorium isotopes, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 273, 115-118, 2007. With kind permission from Springer Science and Business Media, Oct. 22, 2007.

Kuroda, P. K., Y. Miyake, J. Nemoto, Strontium isotopes global circulation after the Chinese nuclear explosion of 14 May 1965, *Science*, 150, 1289-1290, 1965.

Igarashi, Y., M. Otsuji-Hattori, K. Hirose, Recent deposition of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  observed in Tsukuba, *Journal of Environmental Radioactivity*, 31, 157-169, 1996. Reprint with permission from Elsevier Science, Oct. 22, 2007.

Folsmo, T. R., K. Saruhashi, A comparison of analytical techniques used for determination of fallout cesium in sea water for oceanographic purpose, *Journal of Radiation Research*, 4, 39-53, 1963. 日本放射線影響学会: 転載許可 2007年10月23日

Aoyama, M., K. Hirose, Y. Igarashi, Re-construction and updating our understanding on the global weapons tests  $^{137}\text{Cs}$  fallout, *Journal of Environmental Monitoring*, 8, 431-438, 2006. Reproduced by permission of The Royal Society of Chemistry, Oct. 23, 2007.

DUMMY

2007 年（平成 19 年）12 月

編集兼発行者 : 気象研究所地球化学研究部  
Editor & Publisher : Geochemical Research Department,  
Meteorological Research Institute

住所 : 茨城県つくば市長峰 1 - 1  
Address : Nagamine 1-1, Tsukuba, Ibaraki, JAPAN

TEL : 029-853-8719

URL : <http://www.mri-jma.go.jp/Dep/ge/ge.html>

印刷所 : 前田印刷株式会社