Artificial Radionuclides in the Environment 2011

環境における人工放射能の研究 2011 (PDF 版)



Geochemical Research Department and Atmospheric Environment and Applied Meteorology Research Department, Meteorological Research Institute

JAPAN (December 2011) March 2012

気象研究所 環境・応用気象研究部

最終ページに図の詳しい説明があります。 See figure caption at the end page of this publication. 「環境における人工放射能の研究 2011」について

気象研究所では、1954年以来、50年以上にわたり大気及び海洋の環境放射能の研究 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周知していただくために、「環境における人工放射能の研 究」と題した論文集を発刊して参りました。本論文集「環境における人工放射能の研 究 2011」は、この二年のあいだに出版された論文(主に英語論文)を、過去から現在 までの成果と最近のトピックスに関するテーマ毎に分類し、各テーマの冒頭に簡単な 日本語の解説を加えて、一冊にまとめたものです。

50年以上にわたり継続的に続けられた環境放射能研究は、1950年代から1960年代 にかけて行われた原水爆実験や、1986年の旧ソ連のチェルノブイリ原子力発電所事故 など、その時代時代の人工放射性核種の放出に伴う大気環境への長期間に及ぶ影響を 明らかにしてきました。そして、今新たに、本研究は、2011年3月11日に発生した 東日本大震災に伴う福島第一原子力発電所事故という悲しむべき事態の推移を冷静か つ科学的に記述し理解するという大きな課題をも担うことが期待されています。本論 文集が、環境における人工放射能の研究に係わる多くの研究者の研究の糧となり、関 係省庁をはじめとする担当者の皆様の業務の一助となることを念じて止みません。

最後に、本研究を推進するにあたり、ご協力いただ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いたします。なお、この研究は文部科学省 放射能調査研究費により実施されています。

平成 23 年 12 月

気象研究所環境·応用気象研究部長 三上正男

気象研究所では、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・研究の実施により、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・研究できる日本で数少ない研究室であり、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 かった海洋における放射能汚染や大気を経由した日本への影響などの放射能汚染拡大の実態 を明らかにした。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、 福岡の五つの管区気象台、秋田、稚内、釧路、石垣島の4地方気象台、輪島、米子の2測候所 の全国 11気象官署で採取した降水・落下塵及び観測船で採取した海水中の人工放射性核種 (⁹⁰Sr、Cs、³H及びプルトニウム)の分析を実施してきた。

大気からの人工放射性核種の降下量(フォールアウト)は 1961 年から 1962 年に行われた 大規模大気圏核実験の翌年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¹³¹I、¹³⁷Cs、¹³⁴Cs 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¹³⁷Cs 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 ると考えられた。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に由来する可能性が高いことを明らかにした。黄砂の発生は、大陸域 における気象や土壌等の環境変化と深く関連しており、降下物中の人工放射性核種が大陸域の 環境変化の指標となりうる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も調査研究を実施している。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を改良し低レベル・少試料量による分析を可能にした。その結果、海洋の¹³⁷Cs 濃度の精密鉛直断面を描くことができ、核実験由来の¹³⁷Csの主な部分が北太平洋亜熱帯域の海洋中層に存在していることを明らかにした。大規模核実験に由来する人工放射性核種の海洋へのファールアウト以来 40 年以上が経過し、その広がりは北太平洋から、インド洋など他の海盆に及んでいる。ほぼ全海洋にわたる観測と国内外の機関の公表データをデータベース化し、さらに海洋大循環モデルを使った研究と組み合わせて解析することにより、太平洋中緯度に降下した核実験由来の¹³⁷Csの海盆内および海盆間の3 次元的な輸送経路を明らかにすることができた。

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気象研究所からも参加した。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ウラン燃料工場における臨界事故が起きたが、 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あり、放射能による影響は殆ど なかった。しかしながら、2011年3月に起きた東日本大震災にともなう東京電力福島第一原 子力発電所事故により、¹³⁷Csの総量にして10PBq以上という過去日本では経験したことのな い大量の人工放射性核種が環境中に放出され、その2割程度が日本の国土に降下し、残りの8 割は北太平洋に降下したと考えられている。これらの影響評価やその後の環境中での拡散状況 の把握のためにも、環境放射能調査・研究は今後とも重要である。

2006年4月より2011年3月まで、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きた。また2011年8月からは、「大気を通じた人工放射性核種の陸圏・水圏への沈着およびその後の移行過程の解明研 究」の課題のもと、過去の知見を十分に活用しながら、3月11日に発生した東日本大震災に ともなう福島第一原子力発電所の事故以降の新たな事態に対応し、放出された大量の人工放射 性核種の挙動を解明する研究を開始した。本報告書では、過去50年以上の長期間にわたり実施されてきた研究の成果と最近のトピックスについて、テーマ毎に取りまとめて記述している。

2011年12月

気象研究所 地球化学研究部

環境·応用気象研究部

海洋研究部

Contents

1. Radioactive fallout in Japan since 1957	1
2. Artificial radionuclides in the Pacific Ocean	15
3.Radioactivity in the surface air at Tsukuba just after Fukushima NPP accident	59
4. Chemical transport model simulation of released radioactivity from Fukushima NPP	61
5.Artificial radionuclides released to marine environment from Fukushima NPP	91
Publication list 1954-2011	103
Publication list (in Japanese) 1954-2011	117
History of the studies on environmental radioactivity at Meteorological Res. Inst	123
Publications appeared in "Artificial radionuclides in the Environment 2009"	125

目次

1.	人工放射性降下物	1
2.	海水中の人工放射能:	
	太平洋における ¹³⁷ Csの観測結果と海洋大循環モデルをつかった研究結果	15
3.	福島第一原子力発電所事故によるつくば市における大気放射能の変動	59
4.	大気モデルの結果	61
5.	福島第一原子力発電所事故から海洋に放出された人工放射性核種	91
論文	リスト(英文誌)1954-2011	. 103
論文	リスト(和文誌)1954-2011	. 117
表:	研究の歴史 1954-2011	. 123
「環	境における人工放射能の研究 2009」に掲載した論文のリスト	. 125

1. 人工放射性降下物

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、米国、旧ソ連等が盛んに大気圏内で核実験を実施していた 1954 年 4 月に放射性降下物(いわゆるフォールアウト)の全β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 年を超えて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、福島事故以前においても検出限界以下とせず、必ず数値化を行ってきた。この観測時系列データは、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いるのと同時に、まだ完全に分析を終えていないが、2011 年 3 月の福島事故によりどのような水準で変動が生じたかを示す貴重な時系列となると考えている。対象は重要核種である ⁹⁰Sr、¹³⁷Cs である。

人工放射能は主に大気圏内核実験により全球に放出されたため、部分的核実験禁止条約の発効 前に行われた米ソの大規模実験の影響を受け1963年6月に最大の降下量となり(⁹⁰Sr 約170Bq/m²、 ¹³⁷Cs 約550 Bq/m²)、その後、成層圏でのエアロゾル滞留時間、すなわちおよそ1年の半減時間を もって指数関数的に低下した。しかし、1960年代中期から中国核実験の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は中止されたので漸く低下した。さらに、1986年4月の旧ソ 連チェルノブイリ原子力発電所の大規模な事故により放射能の降下量が再び増大した。大気圏内核 実験とは異なり、チェルノブイリ事故では成層圏に大量に放射能は輸送されなかったため、この影 響は長く続かず、1990年代になると⁹⁰Sr、¹³⁷Csの降下量は大きく低下した。このため、試料採取 に 4m²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 できなくなり、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 年代以降、⁹⁰Sr、¹³⁷Csの月間降下量は数~数10 mBq/m²で推移して、「放射性降下物」とは呼べない 状況が福島事故発生まで継続した。

人工放射能の地球環境への投入は全地球規模のトレーサー実験に例えることが出来、気象研究 所では、投入されてからの期間におけるこの変化を降下物という形態で眺め続けてきた。この 20 年間あまりの観測で明らかとなったのは、大気中の人工放射性核種の発生源が、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)が主となったことである。再浮遊 は、永らく、近傍の畑地などからの表土粒子が主体と信じられてきた。ところが、気象研究所での 降下物の¹³⁷Cs/⁹⁰Sr 放射能比は、つくばで採取した表土、さらに我が国表土全般の¹³⁷Cs/⁹⁰Sr 比と一 致せず、再浮遊には近傍以外の起源があることがわかった。すなわち、大規模、かつ長距離を輸送 される黄砂などの風送塵(正体は大気中に浮遊した大陸の表土粒子)が微量ながら放射能を運んで いることがわかってきた。2000 年代には黄砂現象が激しくなり全国各地で¹³⁷Cs が大気降下物試料 に検出され話題となった。また、化学輸送モデルによる研究も進展したため、我が国での風送塵仮 説に関連する研究が増え、定説となりつつある。

他方、1990年代後半には我が国の核施設における事故や、2000年代半ば以降には北朝鮮による地下核実験が実施されるなど、さまざまな出来事があったが、大気中へ放出された人工放射能の 量は我が国の放射能降下量に影響するほど膨大なものではなく、気象研究所の時系列にもその痕跡 はうかがえなかった。

このような背景の元に進められた研究、すなわち、本誌に採録した最近の英文論文の内容をまとめると、以下の如くである。

(1) 2000 年代以降、我が国に影響を及ぼすような大規模な黄砂が頻発している。大陸での発 生領域が、従来からのタクラマカン、ゴビ砂漠から、さらに東および北へ拡大していることと関連 すると指摘されている。この領域拡大は、アジア大陸におけるダスト放出域が、従来の乾燥地帯か ら、2000 年代に砂漠化が進行した半乾燥-ステップ地帯へ移動しているためと推定できる。ごく 微量だが、⁹⁰Sr、¹³⁷Cs 等を我が国に運搬している黄砂につき、その発生領域が上記のように変動し、 我が国に影響している可能性を調べるため、黄砂発生が近年報告されている地域-モンゴルの東半 分の地域で 2007 年秋に現地調査を実施、表土試料を多数採取した。

(2) ⁹⁰Sr と ¹³⁷Cs は、ともに降水により沈着しているため、降水量に比例して土壌カラムに存 在すると想定できる。また、⁹⁰Sr は降水による溶脱が ¹³⁷Cs に比し早いことから、両核種の表土で の比放射能(濃度)と放射能比(¹³⁷Cs/⁹⁰Sr 比)は、降水量に依存性があると考えられる。このこ とを確認するため、モンゴルにおける降水量観測値から年平均降水量マップを作成し、各試料採取 地点での平均降水量と表土中の ⁹⁰Sr、¹³⁷Cs 濃度、¹³⁷Cs/⁹⁰Sr 比との関係を調べた。

(3) ⁹⁰Sr、¹³⁷Cs 濃度、¹³⁷Cs/⁹⁰Sr 比のいずれについても、年平均降水量と有意な相関を示し、 相対的に湿潤な(乾燥した)領域において、⁹⁰Sr、¹³⁷Cs 濃度および¹³⁷Cs/⁹⁰Sr 比が高い(低い)傾 向にあることがわかった。表土ダストに含まれる⁹⁰Sr、¹³⁷Cs 濃度や放射能比は、ダスト発生地域の 気候条件のプロキシとして利用できることが示された。また、黄砂発生源の地域的な変動があった 場合には、発生するダストのこれらパラメーターに変化が生ずると考えられる。

(4) ¹³⁷Cs を横軸とし、¹³⁷Cs/⁹⁰Sr 比を縦軸としてプロットしたとき、つくばの表土、つくばでの降下物、大陸表土は異なる領域にプロットされることがわかった。つくばでの降下物は、つくば 表土と大陸乾燥領域の表土の混合によって表現でき、また 1990 年代春季の降下物に比し、2000 年 代春季の降下物は、特に ¹³⁷Cs/⁹⁰Sr 比が増加する傾向にあり、大陸の相対的に湿潤な領域からの表 土の寄与を受けていることが示された。

(5) 2000 年代以降、我が国に影響を及ぼすような大規模な黄砂は、タクラマカンではなく、 ゴビ砂漠やさらに東や北の領域で発生していると考えられるが、このダスト放出領域拡大は、従来 の乾燥地帯に加えて、半乾燥-ステップ地帯が砂漠化したことによると結論できた。

(6)本研究のモンゴル表土の分析値は、53 μ mの篩を通過する土壌粒子画分から得たもので あるため、大気中を実際に数千 km 輸送され得る数~10 μ m というような微少粒径画分の分析値を 元に、検証する必要がある。そこで、空気力学的な分離法を用いて得た微小な粒径画分(~10 μ m) について分析を進めた結果、微小粒径画分での⁹⁰Sr、¹³⁷Cs 濃度値は 53 μ m 画分より上昇するもの の、¹³⁷Cs/⁹⁰Sr 比は 53 μ m 画分と微小粒径画分のデータはほとんど変化せず、全体的な結論は変わ らないことが示された。

2011 年 3 月 11 日の東日本大震災にともなう東京電力福島第一原子力発電所の事故により、新たに大気環境へ放射性物質が大量に放出され付加された。この大規模な汚染によって、大気環境中での人工放射性核種の濃度水準も大きな影響を受けた。関東地方においても表土の汚染は顕著であり、これまで黄砂のトレーサーとして⁹⁰Sr、¹³⁷Cs に着目してきたが、環境における人工放射性物質の分布は大きく変わってしまった。今後の大気降下物の観測データに、関東地方よりも小さな領域スケールでの再浮遊の状況が大きな影響を及ぼしていくのは間違いないことであろう。

〔掲載論文〕

Y. Igarashi1, H. Fujiwara, and D. Jugder, Change of the Asian dust source region deduced from the composition of anthropogenic radionuclides in surface soil in Mongolia, Atmospheric Chemistry and Physics, 11, 7069–7080, doi:10.5194/acp-11-7069-2011,2011. (この部分は著作権法規定により本 PDF 版には収録せず)

2. 海水中の人工放射能:太平洋における¹³⁷Csの観測結果と海洋大循環モ

デルをつかった研究結果

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る。太 平洋における人工放射性核種の起源の大部分は 1960 年代前半までの大気圏核実験によるもの である。これらの人工放射性核種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、気象研究所では長期にわたり研究を実施してきた。本章では、2000 年代に入り 主に研究船「みらい」を使って行ってきた太平洋の広い範囲での¹³⁷Cs の3 次元分布の観測結 果、北太平洋亜熱帯循環西部での表層¹³⁷Cs 濃度の長期時系列観測結果および¹³⁷Csの海水中蓄 積量についてモデル計算による結果を併せて報告する。

1) 研究概要

試料採取は、海洋研究開発機構の「みらい」による複数の WOCE 再観測航海および 2002 年の気象庁「凌風丸」による東経 165 度線での 2 回の定期海洋観測において行なった。図1に 航海海域を、表 1 に航海一覧を示す。得られた試料は、船上で酸を添加し陸上に持ち帰って 処理を行い、¹³⁷Cs 等を測定した。測定に使用する試料の量が少なくても測定できる方法を開 発し採用することにより(Aoyama and Hirose, 2008)、試料採取の空間密度を上げることができ た。これらのデータを用いて、2000 年代の¹³⁷Cs の太平洋での精密な 3 次元分布を得た。また 複数の海洋大循環モデル(OGCM)を用いた 1945 年からの時空間変動の研究を行っている。



図 1 Cruise tracks

表 1 Cruise summary from 2002 to 2007

	2		
年	航海名	船舶名	海域
2002	RY0206, RY0210	凌風丸	北太平洋 東経 165 度
2003	BEAGLE2003	みらい	南太平洋 南緯 30 度 P6
2005	MR0502	みらい	北太平洋 東経 149 度 P10
2005	MR0505	みらい	北太平洋 北緯 24 度 P3
2007	MR0704, MR 0706	みらい	南北太平洋 北緯 47 度 P1、東経 179 度 P14

電力中央研究所においては中規模の解像度を持つ海洋大循環モデル(Parallel Ocean Program)と高解像度の海洋モデル(Regional Ocean Model System)による¹³⁷Cs 濃度の再現計算を実施した(Tsumune et al., 2011)。Parallel Ocean Program (POP2.0)は中規模の解像度の渦パラメタリーゼーションモデルとした。水平解像度は経度方向に1.125°、緯度方向には赤道付近を高解像とし、0.28°から0.54°とした。また、鉛直分割は40層とし、海洋表層の最小で10m、海底付近の最大で250mとした。また、北極における座標の集中をさけるため、極を北米大陸上に座標変換した。また Regional Ocean Model System (ROMS)は高解像度の渦解像モデル(坪野考樹ら、2010)をもとに、北太平洋に拡張した。水平解像度は約1/10°(10 km)、鉛直解像度はσ座標系を用い、30層で最低水深は50mとした。対象領域は15°S-70°N、110°E-75°Wの北太平洋全域を含む海域とした。双方のモデルともに、季節変動を考慮した風応力や熱・淡水フラックスなどの気候値フォーシングデータ(Large and Yeager, 2004)によって駆動したが、年々変動は考慮していない。

気象研究所においては、気象研究所共用海洋モデル(MRI.COM)をつかい経度1度、緯度 0.5度、JRAの再解析値から作成した気候値を用いて、1945年から2005年までの再現計算をおこなった。

¹³⁷Cs の海面へのフラックスは Aoyama et al., (2006) による全球への¹³⁷Cs の降下量を再構成したもので、すべてのモデルで同じものを使用した。

2) 太平洋での3次元分布

福島第一原子力発電所事故以前の太平洋の海水中の人工放射性核種は、主に大気圏核実験 に由来するグローバルフォールアウトが起源である。大部分の人工放射性核種が海洋表面に降 下したのは大気圏核実験が盛んに行われた 1960 年代の前半である (Hirose et al., 2001; United Nations, 2000)。1957 年以来、50 年以上にわたり、年代により程度の差はあるが、全海洋にお いて海水中の放射性核種濃度が測定されてきた (Aoyama and Hirose, 2004)。また、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¹³⁷Cs 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。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 765±79 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一降下量は経度方向には一定一は、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。さらに作成された 10 度メッシュデータを使って北 太平洋に降下した¹³⁷Cs の総量の評価が可能となり、1970 年 1 月時点で 290 PBq と推定できた。 北太平洋での降下の特徴としては、日本を含む亜熱帯循環北西側での降下量が大きいことが挙 げられる (Aoyama et al., 2006)。

1950 年代後半から 1960 年代前半の大規模核実験に起源を持つ ¹³⁷Cs は、海面に降下した あと海洋内部の輸送過程に従って海洋内部へと輸送された。降下後ほぼ40年経過した2000年 代での海洋内部の分布の特徴として、最初に発見された東経 165 度線に沿う¹³⁷Cs の断面で見 られた濃度極大の特徴はすでに報告している(Aoyama et al., 2008)。北緯 24 度線に沿う¹³⁷Cs の鉛直分布においても、日付変更線西側の西部北太平洋、深さにして 400-600 m、密度にし て σ_θ = 26.0-26.5 付近に濃度の極大が見出された。これらの極大は東経 180 度線での北緯 20 度付近の深さ400-500mに見られる極大とつながっており、さらに図2に示すようにすでに 報告した東経165度線での北緯20度付近の深さ400-500mに見られる極大ともつながってい る。これらのつながりは中央モード水による¹³⁷Csの海洋内部の輸送経路を明瞭に捉えたもの であり、世界で初めて明らかになった¹³⁷Csの海洋内部での3次元分布である。北太平洋中緯 度に降下した¹³⁷Csは、中央モード水による内部輸送(亜熱帯循環内を北緯24度線日付変更線 の東側では南西方向に輸送される) に乗るが、西端で深度が浅くなるとともに赤道に沿う東向 き輸送となり、太平洋の東端で赤道を越え、赤道の南で西向きに輸送される(Nakano et al.,2010)。 その後一部はタスマン海に輸送される。北太平洋では、一部は亜熱帯循環に沿って日本沿岸に 戻っている。この点については、亜熱帯循環域での表層濃度の時系列の解析からも明らかとな っている(Inomata, 2010)。モデルによる計算結果を、2003年の観測値である南太平洋(南緯 32 度)、インド洋(南緯 20 度)、南大西洋(南緯 32 度)の経度方向断面の観測値と比較し、 よい結果を示すことを確認した。¹³⁷Cs は北太平洋に多く降下していることが観測から指摘さ れており、北太平洋に降下した¹³⁷Csは40年程度の時間スケールの海域間の水塊交換を通じて、 インド洋を経由して南大西洋、また南太平洋、北極海への供給源になっていることを計算結果 から把握した。モデルのバージョンを更新し (POP 1.4.3 → POP 2.0)、新しいモデルのほうが ¹³⁷Csの貫入が深く、観測値により近くなっていることが分かった。東経165度線に沿う¹³⁷Csの 断面で見られた亜熱帯循環南側の中央モード水に相当する¹³⁷Csの濃度極大(Aoyama et al., 2008)は、気象研モデルによる逆追跡により中央モード水の東端を流れていることが分かった。



☑ 2 Combined ¹³⁷Cs transects in the Pacific Ocean in 2000s from surface to 1000 m depth

3) 北太平洋亜熱帯循環西部での表層¹³⁷Cs 濃度

図 3A に示すように 1990 年代後半までは、表面海水中¹³⁷Csの濃度は見かけの半減時間 15.7 年で減少している(Hirose and Aoyama, 2003; Inomata et al., 2009)。しかし、1990年代から最近 まで¹³⁷Csの表層での濃度は半減期30年の放射壊変の程度あるいはそれよりもゆっくり減少し ている。この現象を説明するためには、何らかのソースが必要であり、そのソースとして亜表 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の後、南向きに輸送された¹³⁷Cs 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いると判断される。

図 3B に示すように、モデルによる再現計算の結果においても、図 3A に示す観測結果と 類似の結果が得られている。



subtropical gyre. Solid line: ¹³⁷Cs decay rate

 \boxtimes 3A ¹³⁷Cs activity in surface water in the \boxtimes 3B ¹³⁷Cs activity in surface water in the subtropical gyre by model calculations

4) 海水中蓄積量の分布

図4および図5に東経179度線に沿う海水中蓄積量の南北分布よび北緯24度線に沿う表 面から 1000 m 深までの¹³⁷Cs の海水中蓄積量の東西分布を示す。北太平洋日付変更線付近での 1970年までの降下量は北緯45度付近に極大を示し、降下量はおよそ7500 Bg m⁻²、南太平洋で も同様に南緯45度付近に極大を示し、降下量はおよそ1000 Bq m⁻² であった(Aoyama et al., 2006)。それらに対し、約35年後の観測結果は極大の緯度は両半球とも赤道方向に20度分シフトしていること、また半減期を考慮すると、北半球では蓄積量は降下量の約3分の1となり、南半球では1.5倍に増加していることが明らかになった。北緯24度線に沿う東西分布は、亜熱帯循環西側で蓄積量が多く、東側で少ないという分布を示し、主温度躍層の深さと密接な関係があると考えられる(Nakano et al., 2010)。



☑ 4 Meridional distribution of ¹³⁷Cs inventory along P14 line, 179 deg. E, in 2007



☑ 5 Horizontal distribution of ¹³⁷Cs inventory along P3 line, 24 deg. N, in 2005

またモデル計算結果において、半減期を考慮した総降下量とインベントリーの全球分布の 比較を行っている(Tsumune et al., 2011)。海域毎に見ると、2003年時点での北太平洋への総降 下量は150.2 PBq、インベントリーの総量は86.2 PBqで57%に減少している。海域内の分布 を考慮すると減少量がさらに大きい地点もあり、観測と概ね一致していると言える。また南太 平洋においては、総降下量は20.3 PBq、インベントリーの総量は36.7 PBqで1.8倍程度増加し ている。南太平洋においては海域内の分布が小さいので、観測結果とほぼ同様な結果となった。

本章のまとめ

中央モード水による¹³⁷Csの海洋内部の輸送経路を明瞭に捉えた2000年代における太平洋 での¹³⁷Csの3次元分布が明らかになった。さらに、赤道を越え南太平洋にいたる輸送経路も 捉えることができた。北太平洋では、一部は亜熱帯循環に沿って日本沿岸に戻っていることが 推察でき、日本周辺海域表層で¹³⁷Cs濃度が2000年代に入って減少しないことと整合性がある。 複数のモデルを使った再現計算で、再現性がよくなってきており、将来の予測モデル構築の一 歩といえる。また、1000 m 深までの¹³⁷Csの海水中蓄積量を半減期を考慮して降下量と比較す ると、北半球では蓄積量は降下量の約3分の1となり、南半球では1.5倍に増加していること が明らかになった。また1000 m 深までの¹³⁷Csの海水中蓄積量の北緯24度線に沿う東西分布 は、亜熱帯循環西側で蓄積量が多く、東側で少ないという分布を示し、主温度躍層の深さと密 接な関係があると考えられる。

[掲載論文]

M. Aoyama, M. Fukasawa, K. Hirose, Y. Hamajima, T. Kawano, P.P. Povinec, J. A. Sanchez-Cabeza. Cross Equator transport of ¹³⁷Cs from North Pacific Ocean to South Pacific Ocean (BEAGLE2003 cruises), In: Special issue of Southern Hemisphere Ocean Tracer Study of Progress in Oceanography, 7-16, Doi:10.1016/j.pocean.2010.12.003, 2011. (この部分は著作権法規定により本 PDF 版には収録せず)

D. Tsumune, M. Aoyama, Katsumi Hirose, Frank Bryan, Keith Lindsay, Gokhan Danabasoglu. Transport of ¹³⁷Cs to the Southern Hemisphere in an Ocean General Circulation Model, In: Special issue of Southern Hemisphere Ocean Tracer Study of Progress in Oceanography, 38-48, Doi:10.1016/j.pocean.2010.12.006, 2011. (この部分は著作権法規定により本 PDF 版には収録せず)

Nakano, H., T. Motoi, K. Hirose, and M. Aoyama. Analysis of ¹³⁷Cs concentration in the Pacific using a Lagrangian approach. Journal of Geophysical Research, 115, C06015, doi:10.1029/2009JC005640, 2010. (この部分は著作権法規定により本 PDF 版には収録せず)

3. 福島第一原子力発電所事故によるつくば市における大気放射能の変動

はじめに

1986年のチェルノブイリ事故以降、重大な原子力事故は発生しておらず、大気環境中での人工放射性核種の濃度水準は、きわめて低いレベルで推移してきた。ところが、2011年3月11日の東北地方太平洋沖地震にともない福島第一原子力発電所が被災して重大事故となり、新たに大気環境へチェルノブイリ事故の数分の一に達する放射性物質が放出・付加された。この大規模な汚染によって、大気環境中での人工放射性核種の濃度水準も大きな影響を受けた。気象研究所では、大気試料の採取及び試料中の放射能の分析を事故前後で継続しており、その結果をまとめた。

調査研究概要

茨城県つくば市の気象研究所観測露場に設置した大容量サンプラー(柴田科学製 HV-1000F)により、石英繊維フィルター(アドバンテック QR100、サイズ 203mm×254mm)に 大気を通し、大気エーロゾルを捕集して試料とした。通常は1回につき1週間以上の捕集時間 だが、事故が明らかになったことから、1回の捕集時間は6時間~1日とした。サンプラーの 流量は1分あたり700リットルで設定され、収集された空気の量は約250、500、または1000 立方メートル(それぞれ捕集時間が6、12、24時間のとき)になる。試料は油圧プレス器によ りペレット状(小さな塊)に圧縮し、Ge 半導体検出器を用いたガンマ線分析装置で核種ごと の放射能を計測した。最初に濃度ピークが見られた。15 日以前の試料は濃度が低く、つくば にある検出器は汚染を受けて測定が困難であったため、(大きな汚染が及んでいない西日本に ある)京都大学原子炉実験所で測定した。

結果および考察

検出された核種と濃度変動の様子および、移流・拡散の状況把握を目的に実施した数値モ デルによる簡易計算結果(5章ではより精密な計算結果を記述)との比較を図1に示す。検出 された放射性核種は、⁹⁹Mo^{-99m}Tc(T_{1/2}:65.9時間)、^{129m}Te⁻¹²⁹Te(T_{1/2}:33.6日)、¹³²Te⁻¹³²I(T_{1/2}: 3.20日)、¹³¹I(T_{1/2}:8.02日)、¹³³I(T_{1/2}:20.8時間)、¹³⁴Cs(T_{1/2}:2.07年)、¹³⁶Cs(T_{1/2}:13.2 日)及び¹³⁷Cs(T_{1/2}:30.0年)である。粒子状物質を捕集して分析しているため、気体状のヨ ウ素については、今回捕集されていないことに注意が必要である。

つくばでの時系列データは、2度の濃度上昇を示した。これらのピークは、2011年3月に おける、福島原発からの放射性物質を多く含む気塊の関東平野への顕著な移流拡散事象を捉え ていると考えられる。それぞれのピークは、事故現場での放出物の違いを反映して、異なる放 射性核種の組成を示した。この組成の違いは、関東、東北地方における、場所による放射性核 種降下量の違いを生み出した可能性がある。

関東平野への空気塊の輸送をもたらした気象場は特異な事例では無い。1997年の東海村の原子力施設事故による関東平野への放射性空気塊の輸送は、Aoyama et al. (1999)や Igarashi et al. (1999)により報告されている。茨城県つくば市において、東海村に位置する核燃料再処理工場から放出された⁸⁵Kr が大気中濃度のピークとなって、しばしば検出されて いる(Igarashi et al., 2001)。これらの先行研究の結果から、1週間のサイクルで現れる春季の北東風により、放射性空気塊が茨城県北部から関東平野へ流入する可能性が指摘されている。2011年3月の二度にわたるイベントも同様の気流パターンであった。

他方、現状の数値モデルには、放出量、湿性および乾性沈着率、拡散係数、雲物理・降水 過程など、多くの不確定要素が存在する。より再現性の高いモデルの開発のためには、輸送モ デルの素過程を改良し、事故による放出量の高精度な推定と、湿性及び乾性沈着過程等の改善 を行う必要がある。



図1 つくばにおける人工放射性核種の大気濃度変動とトレーサー移流・拡散モデル計算 結果(¹³¹Iの単位量を毎時連続的に発生、移流・拡散のみを計算、2011年4月時点での簡易計 算)

謝辞:測定を快諾いただいた京都大学原子炉実験所の沖准教授、長田氏に感謝する。

〔掲載論文〕

なし

4. 大気モデルの結果

気象研究所環境・応用気象研究部では、2011年3月11日の東北地方太平洋沖地震にと もなう福島第一原子力発電所の被災事故による大気環境への放射性物質の放出を受けて、移流 拡散モデルによる放射能と空間線量率の数値シミュレーションを実施してきた。特に、エアロ ゾルを介した放射性核種の輸送過程に着目し、モデル素過程の開発に努めた。

従来の放射能拡散モデルでは、核種毎に輸送特性を決めている。たとえば、乾性沈着速度 や、湿性除去係数は、I、Csなどの核種毎に設定されている。しかし、実際の核種の動態は、 それらがどのようなエアロゾルと内部混合しているか、あるいはそのガスーエアロゾル分配比、 またその化学組成(元素状、酸化物、有機化合物)によっても大きく異なる。チェルノブイリ など過去の原発事故に伴い大気中に放出された放射性物質については、主に粒径 1µm 以下の サブミクロン粒子に存在していると報告されている(Hirose et al., 1993)。しかし、福島事故事 例については、Csが 1µm 以上の粗大粒子に多く存在していたこと、数 10µm 程度の花粉粒子 と混合していたことが分かっている(長田ほか、2011)。2011 年 3 月から 4 月にかけては強風に よる土埃の巻き上げが茨城県において観察され、土壌表層に沈着した Csの再飛散も懸念され ている。

以上の背景から、エアロゾルの集合を発生・二次生成過程に応じて分類するカテゴリ法 (Kajino and Kondo, 2011)を用いて、モーダル・モーメント法(Kajino, 2011)により粒子成長 を記述する、気象研パッシブトレーサーモデル(MRI-PM)を構築した。考慮したエアロゾル カテゴリは、①放射性一次粒子(放射性核種が均一核形成により粒子化したもの)、②エイト ケン粒子(硫酸ガスが均一核形成により粒子化したもの)、③サブミクロン粒子、④海塩粒子、 ⑤土壌粒子、⑥花粉の6種である。考慮した核種は、I、Cs、Xeであり、放出時は40%が反応 性の高いヨウ素(I,で物性を代表)、40%が反応性の低いヨウ素(CH₄Iで物性を代表)残る20% がエアロゾル態ヨウ素(Cslを仮定)とし、Xeは100%ガス、Csは100%Cslを仮定した。ま たエアロゾルのうち5%は均一核形成を生じ、残る95%は既存粒子の表面積に比例して凝縮す ると仮定した。放射能の放出量は、Chino et al., J. Nuclear Sci. Tech. (2011) の改良版を使用し た:¹³¹I、¹³²Te、¹³⁴Cs、¹³⁷Csの放出量と放出高度が1分単位の時間分解能で与えられている。 ¹³³Xe については単位放出(1Bq/s)を仮定した。気象庁メソ解析値(MANAL)を初期・境界 条件として非静力学モデル NHM により気象場を作成し、それを用いて MRI-PM により放射性 核種の濃度、沈着量を予測する。水平解像度は 4km、鉛直解像度は、NHM は高度約 22km ま でを 48 層、MRI-PM は 10km までを 12 層とした。本計算では大気境界層内の輸送をターゲッ トにしているため、MRI-PM は 13 層のうち 2km までに 8 層与えている。



図:MRI-PM で計算した(左) 3/15 06 JST における粒子態¹³¹Iと、(右) 3/20 12 JST における 粒子態¹³⁷Cs の地表濃度(Bq/m³)。

図に、つくば市において観測された2度の粒子態放射能の飛来イベント時のモデル結果を 示す。3/15 06 JST は北西風に乗って直線的に飛来した。3/20 12JST では、一度西風によって福 島原発から太平洋沖へ出たプリュームが、北一北西風によって吹き戻され鹿島灘から上陸した 様子が見られる。このときつくばで観測された粒子態放射能は、3/15 06JST で¹³¹I 70Bq/m³、 3/20 12JST は¹³⁷Cs 40Bq/m³ であり、定量的に良く一致する。また図は省略するが、3/11 から 3/22 までの 12 日間平均の粒子態核種の粒径分布は、粒径 1µm 以下、粒径 1 – 10µm、粒径 10µm 以上に、それぞれ 1000: 10~100: 1 の割合で存在した。乾性沈着速度はそれぞれ、1: 1~10: 10 程 度の比であり、また 100nm 以上の粒子はほぼ雲核活性を持つと考えられることから、粒径 1µm 以上の粗大粒子は大気中の濃度としては低いものの、効率的に除去されて地上に到達すると考 えられる。

放射能の大気濃度については、JAEA の WSPEEDI を始め、NIES や JAMSTEC の数値モデ ルでも良く再現出来ているが、湿性沈着量についてはまだモデルの再現性は極めて低い。千葉 県北東部から茨城県南部にかけてのホットスポットや、福島県中通りから栃木県、群馬県にか けての高濃度汚染地域は、湿性沈着により形成されたと考えられているため、数値モデルの高 度化と同時に、複数の数値モデルを用いたマルチモデルアンサンブル、または高度なデータ同 化手法を用いての再現性の向上が望まれる。

[掲載論文]

Kajino, M., Y. Kondo, EMTACS: Development and regional-scale simulation of a size, chemical, mixing type, and soot shape resolved atmospheric particle model. Journal of Geophysical Research, 116, D02303, 28 pp., doi:10.1029/2010JD015030, 2011. (この部分は著作権法規定により本 PDF 版に は収録せず)

5. 福島第一原子力発電所事故から海洋に放出された人工放射性核種

2011 年 3 月に起きた福島第一原子力発電所事故の結果、多量の放射能が海洋に加えられた。福島原発事故の場合、原子炉が海岸に立地しているため、事故に際し大気中に放出された放射能のかなりの部分が直接海上に降下したと推測できる。さらに、高濃度の放射能で汚染された水が海洋に直接漏洩していることも判明した。8 月末までの福島近傍 30 km 圏での¹³⁷Csの濃度変化を図1に示す。図1にあるように福島原子力発電所近傍の沿岸では4月上旬に 68 × 10⁶ Bq m⁻³を最高として、8 月末まで $10^4 \sim 10^5$ Bq m⁻³の値が測定されている。さらに 30 km 圏のすぐ外側での文部科学省および福島県による測定では $10^2 \sim 10^5$ Bq m⁻³となっている。事故前の同海域での¹³⁷Cs 濃度が 1.5~2 Bq m⁻³であったので 7 月末時点で比較しておよそ三桁大きい値である。また福島事故現場から 100~1000 km 離れた西部北太平洋での¹³⁷Cs 濃度は $10^1 \sim 10^3$ Bq m⁻³となっており、事故前の¹³⁷Cs 濃度に比べて 1~2 桁高い状態である (Honda et al., 2011)。さらに、著者による北太平洋全域の測定結果によると、わずかではあるが、3000 km 以上に離れている日付変更線を越えた東太平洋でも¹³⁴Cs が 1 Bq m⁻³程度検出されるとともに、¹³⁷Cs 游事故前から 2 倍程度に増加していることが示された。



福島事故で放出された¹³⁷Cs について再現シミュレーションを沿岸海洋モデル(坪野考樹 ら、2010)を用い、福島沖合海域を対象に行った。再現シミュレーションでは、沿岸海洋モデ ル(ROMS)を用い、福島沖合海域を対象に、水平解像度は1km、鉛直方向はσ座標系で20層 とした。福島第一原発の近傍2点(図1の●印)での観測結果の平均値とシミュレーション結 果による放出メッシュの平均値を合わせることによって、漏洩量を推定した。大きな直接漏洩 は3月26日から4月6日までほぼ一定の割合で生じ、その後大幅に減少しているが8月末の 時点で漏洩はゼロにはなっていない。漏洩が大きい5月末までの漏洩量は3.5±0.7 PBq である

と見積もられた(津旨 大輔ら、2011)。福島沖に漏洩した¹³⁷Cs は、図 2 に示すように渦などの影響によって複雑な挙動を示すが、主には沿岸に沿って南下し、黒潮に沿って東へ拡散する。



その濃度は 100 km 離れた場所で 10³ Bg m⁻³以下(図中では Bg L⁻¹単位であることに注意) と計算されている。その後の輸送経路については、直接漏洩した¹³⁷Cs は基本的には図2に示 す輸送経路に従い、亜熱帯循環に沿って東に向かった後海洋内部へ輸送されると推測できる。 また¹³⁷Cs は大気経由で広く北太平洋に広がったと考えられ、それを支持するモデル計算も行 われているので(Takemura et al., 2011)、広域での採水と測定が必要である。現時点では直接漏 洩は上述のように 3.5 ± 0.7 PBg と見積もられており、フランスの研究機関の見積もりでは 10 PBq 程度と考えられている(Institute de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, 13 May 2011) 大気 経由分を加えても、すでに核実験起源の¹³⁷Cs が 80 PBq 以上存在しているところに対して 20% 以下の増加となる。従って、海洋に付加された福島事故起源の¹³⁷Csの全体像を把握するには、 福島第一原子力発電所事故現場から数百km以内の相対的に高濃度海域を除く太平洋全域では 高精度の測定が必要である。何故ならば、北太平洋北緯30度以北に大気経由で広がったとす ると、その領域の面積と影響が及んだ深さ(100m深を仮定)に濃度を掛けたものが大気経由 で海洋に付加された総量となる。面積は $13 \times 10^6 \text{ km}^2$ 、深さ 100 m として、体積は $1.3 \times 10^{15} \text{ m}^3$ 、 濃度 1 Bq m⁻³で総量 1.3 PBq である。事故により大気中に放出された¹³⁷Cs の全量は 13 PBq と 言われているので(Chino, 2011)、少なくともその10分の一まで検討するには1 Bq m⁻³での測 定が必要である。もし検出下限値 50 Bq m⁻³で測定を行うならば北太平洋全域での総量の推定 の下限値は 65 PBq となり、定量的な推定はもはや不可能である。また核実験起源の¹³⁷Cs と福 島事故起源の¹³⁷Csを分離して評価するために¹³⁴Csのデータが重要である

[掲載論文]

Tsumune, D., T. Tsubono, M. Aoyama, K. Hirose, Distribution of oceanic ¹³⁷Cs from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant simulated numerically by a regional ocean model. Journal of Environmental Radioactivity, Doi: 10.1016/j.jenvrad.2011.10.007, 2011. (この部分は著作権法規定により本 PDF 版には収録せず)

Publication list 1954-2011

論文リスト(英文誌) 1954-2011

Publications

2011

- 1. Y. Igarashi1, H. Fujiwara, and D. Jugder, Change of the Asian dust source region deduced from the composition of anthropogenic radionuclides in surface soil in Mongolia, Atmospheric Chemistry and Physics,11, 7069–7080, doi:10.5194/acp-11-7069-2011,2011.
- 2. Daisuke Tsumune, Takaki Tsubono, Michio Aoyama, Katsumi Hirose, Distribution of oceanic ¹³⁷Cs from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant simulated numerically by a regional ocean model, *Journal of Environmental Radioactivity*, Doi: 10.1016/j.jenvrad.2011.10.007, 2011.
- 3. Ken Buesseler, Michio Aoyama, Masao Fukasawa, Impacts of the Fukushima nuclear power plants on marine radioactivity, *Environmental Science & Technology*, Doi: 10.1021/es202816c, 2011.
- 4. Michio Aoyama, Pavel P. Povinec, Joan-Albert, Sanchez-Cabeza, The Southern Hemisphere Ocean Tracer Studies (SHOTS) project, In Special issue of Southern Hemisphere Ocean Tracer Study of *Progress in Oceanography*, In Press, Doi:10.1016/j.pocean.2010.12.002, 2011.
- M. Aoyama, M. Fukasawa, K. Hirose, Y. Hamajima, T. Kawano, P.P. Povinec, J. A. Sanchez-Cabeza, Cross Equator transport of ¹³⁷Cs from North Pacific Ocean to South Pacific Ocean (BEAGLE2003 cruises), In Special issue of Southern Hemisphere Ocean Tracer Study of *Progress in Oceanography*, In Press, Doi:10.1016/j.pocean.2010.12.003, 2011.
- P. P. Povinec, M. Aoyama, M. Fukasawa, K. Hirose, K. Komura, J.-A. Sanchez-Cabeza, J. Gastaud, M. Jeskovsky, I. Levy, I. Sykora, ¹³⁷Cs water profiles in the South Indian Ocean an evidence for accumulation of pollutants in the subtropical gyre, In Special issue of Southern Hemisphere Ocean Tracer Study of *Progress in Oceanography*, In Press, Doi:10.1016/j.pocean.2010.12.004, 2011.
- J. Gastaud, P.P. Povinec, M. Aoyama, K. Hirose, J.A. Sanchez-Cabeza, I. Levy, P. Roos, M. Eriksson, E. Bosc, S. Rezzoug, Transport and scavenging of Pu in surface waters of the Southern Hemisphere Oceans, In Special issue of Southern Hemisphere Ocean Tracer Study of *Progress in Oceanography*, In Press, Doi:10.1016/j.pocean.2010.12.009, 2011.
- K. Hirose, C.S. Kim, S.A. Yim, M. Aoyama, M. Fukasawa, K. Komura, P.P. Povinec, J.A. Sanchez-Cabeza, Vertical profiles of plutonium in the central South Pacific, In Special issue of Southern Hemisphere Ocean Tracer Study of *Progress in Oceanography*, In Press, Doi:10.1016/j.pocean.2010.12.010, 2011.
- Daisuke Tsumune, Michio Aoyama, Katsumi Hirose, Frank Bryan, Keith Lindsay, Gokhan Danabasoglu, Transport of ¹³⁷Cs to the Southern Hemisphere in an Ocean General Circulation Model, In Special issue of Southern Hemisphere Ocean Tracer Study of *Progress in Oceanography*, In Press, Doi:10.1016/j.pocean.2010.12.006, 2011.
- J.A. Sanchez-Cabeza, I. Levy, J. Gastaud, M. Eriksson, I. Osvath, M. Aoyama, P.P. Povinec, K. Komura, Transport of North Pacific ¹³⁷Cs labeled waters to the south-eastern Atlantic Ocean, In Special issue of Southern Hemisphere Ocean Tracer Study of *Progress in Oceanography*, In Press, Doi:10.1016/j.pocean.2010.12.005, 2011.
- I. Levy, P.P. Povinec, M. Aoyama, K. Hirose, J.A. Sanchez-Cabeza, J-F. Comanducci, J. Gastaud, M. Eriksson, Y. Hamajima, C.S. Kim, K. Komura, I. Osvath, P. Roos, S.A. Yim, Marine anthropogenic radiotracers in the Southern Hemisphere: new sampling and analytical strategies, In Special issue of Southern Hemisphere Ocean Tracer Study of *Progress in Oceanography*, In Press, Doi:10.1016/j.pocean.2010.12.012, 2011.

2010

1. Yayoi Inomata, Yasuhito Igarashi , Katsuhiro Yoshioka , Taichu Y. Tanaka , Masaru Chiba, Temporal

variation of ²²²Rn at the summit of Mt. Fuji associated with the Asian continental outflow, *Atmospheric Environment*, 44,3856-3865, 2010.

- Nakano, H., T. Motoi, K. Hirose, and M. Aoyama, Analysis of 137Cs concentration in the Pacific using a Lagrangian approach. *Journal of Geophysical Research*, 115, C06015, doi:10.1029/2009JC005640, 2010.
- 3. K. Hirose, Y. Igarashi, M. Aoyama and Y. Inomata, Depositional behaviors of plutonium and thorium isotopes at Tsukuba and Mt. Haruna in Japan indicate the sources of atmospheric dust. *Journal of Environmental Radioactivity* 101,106-112, 2010.
- 4. Yongsan Zhang, Jian Zeng, Masatoshi Yamada, Fengchang Wu, Yasuhito Igarashi and Katsumi hirose, 2010: Characterization of Pu concentration and its isotopic composition in a reference fallout material. *Science of the Total Environment*, 408(5), 1139-1144.

2009

- Aoyama, M., Y. Hamajima, M. Fukasawa, T. Kawano and S. Watanabe, Ultra low level deep water ¹³⁷Cs activity in the South Pacific Ocean, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry doi:10.1007/s10967-009-0253-x, 2009
- 2. Hirose, K., M. Aoyama, P.P. Povinec, ^{239,240}Pu/¹³⁷Cs ratios in the water column of the North Pacific: a proxy of biogeochemical processes, Journal of Environmental Radioactivity, 100, 258-262, 2009.
- Igarashi, Y., Y. Inomata, M. Aoyama, K. Hirose, H. Takahashi, Y. Shinoda, N. Sugimoto, A. Shimizu, M. Chiba, Possible change in Asian dust source suggested by atmospheric anthropogenic radionuclides during the 2000s, Atmospheric Environment, 43, 2971–2980, 2009.
- 4. Inomata, Y., M. Aoyama, K. Hirose, Analysis of 50-y record of surface ¹³⁷Cs concentrations in the global ocean using the HAM-global database, Journal of Environmental Monitoring, 11(1), 116-125, DOI: 10.1039/b811421h, 2009
- 5. K.Hirose, Y.Igarashi, M.Aoyama and Y.Inomata*, 2009: Depositional behaviors of plutonium and thorium isotopes at Tsukuba and Mt.Haruna in Japan indicate the sources of atmospheric dust. *Journal of Environmental Radioactivity*, **101(2)**, 106-112, doi:10.1016/j.jenvrad.2009.09.003.
- 6. Igarashi Yasuhito. Yoshikazu Kikawada*, Kohei Oda*, Rieko Yamauchi*, Masao Nomura*, Teruyuki Honda*, Takao Oi*, and Katsumi Hirose, 2009: Anomalous Uranium Isotope Ratio in Atmospheric Deposits in Japan. *Journal of Nuclear Science and Technology*, **46(12)**, 1094-1098.

2008

- Aoyama, M., K. Hirose, K. Nemoto, Y. Takatsuki, D. Tsumune, Water masses labeled with global fallout ¹³⁷Cs formed by subduction in the North Pacific, Geophysical Research Letters, 35, L01604, doi:10.1029/2007GL031964, 2008.
- 2. Hirose, K., Y. Igarashi, M. Aoyama, Analysis of the 50-year records of the atmospheric deposition of long-loved radionuclides in Japan. Applied Radiation and Isotopes, 66, 1675-1678, 2008.
- 3. Hirose, K., M. Aoyama, Y. Igarashi, K. Komura, Improvement of ¹³⁷Cs analysis in small volume seawater samples using the Ogoya underground facility, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 276, 3, 795-798, 2008.
- Aoyama, M, K. Hirose, K. Nemoto, Y. Takatsuki, D. Tsumune, Water masses labeled with global fallout ¹³⁷Cs formed by subduction in the North Pacific, Geophysical Research Letters, 35, L01604, doi:10.1029/2007GL031964, 2008.

2007

1. Hirose, K., M. Aoyama, C.S. Kim, Plutonium in Seawater of the Pacific Ocean, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 274 No. 3, 635-638, 2007.

- 2. Hirose, K., Y. Igarashi, M. Aoyama, 50 years records of atmospheric deposition of long-lived anthropogenic radionuclides in Japan, International Conference on Environmental Radioactivity: From Measurements and Assessments to Regulation, IAEA-CN-145, 95-96, 2007.
- 3. 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.
- 4. Hirose, K., M. Aoyama, M. Fukasawa, C. S. Kim, K. Komura, P. P. Povinec, J. A. Sanchez-Cabeza, Plutonium and ¹³⁷Cs in surface water of the South Pacific Ocean, Science of the Total Environment, 381, 243-255, 2007.

2006

- Yamamoto, M., A. Sakaguchi, K. Sasaki, K. Hirose, Y. Igarashi, C.K. Kim, Seasonal and spatial variation of atmospheric ²¹⁰Pb and ⁷Be deposition: features of the Japan Sea side of Japan, Journal of Environmental Radioactivity, 86, 110-131, 2006.
- 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. 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 ¹³⁷Cs fallout, Journal of Environmental Monitoring, 8, 431-438, 2006.
- 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. Povinec, J.A. Sanchez-Cabeza. Vol. 8 of Radioactivity in the Environment, Elsevier, London, 2006.
- Inoue, H.Y., H. Matsueda, Y. Igarashi, Y. Sawa, A. Wada, K. Nemoto, H. Sartorius, C. Schlosser, Seasonal and long-term variations in atmospheric CO₂ and ⁸⁵Kr 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 ¹³⁷Cs in seawater samples using an underground facility (Ogoya), Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 263, 349-353, 2005.
- 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, ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs and ^{239,240}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 (⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs) in atmospheric deposition, surface soils and Aeolian dusts suggest for dust transport over JAPAN, Water, Air, and Soil Pollution: Focus, 5, 51-69, 2005.

- 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.
- Povinec, P.P., K. Hirose, T. Honda, T. Ito, E. MarianScott, O. Togawa, Spatial distribution of ³H, ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs and ^{239,240}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.

- 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 ⁸⁵Kr Observed During 1995-2001 in Japan: Estimation of Atmospheric ⁸⁵Kr 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 ¹³⁷Cs and ^{239,240}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.
- 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 ¹³⁷Cs 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 ¹³⁷Cs and ^{239,240}Pu Concentrations in the Pacific, Journal of Environmental Radioactivity, 69(1-2), 53-60, 2003.
- Tsumune, D., M. Aoyama, K. Hirose, Numerical simulation of ¹³⁷Cs and ^{239,240}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 ¹³⁷Cs 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.
- 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.
- Kim, C.K., C.S. Kim, B.U. Chang, S.W. Choi, C.S. Chung, G.H. Hong, K. Hirose, H.B.L. Pettersson, ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 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 POC/²³⁴Th 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.
- 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⁺²⁴⁰Pu and ¹³⁷Cs concentrations for zooplankton and nekton in the Northwest Pacific and Antarctic Oceans (1993-1996), Marine Pollution Bulletin, 44, 660-665, 2002.

2001

- 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, ⁸⁵Kr 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 ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs 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, ¹³⁷Cs 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 ¹³⁷Cs 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.
- Tsumune. D, M. Aoyama, K. Hirose, K. Maruyama, N. Nakashiki, Caluculation of Artificial Radionuclides in the Ocean by an Ocean General Circulation Model, J. Radioanal Nucl. Chem., 248, 3, 777-783, 2001.

- 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.
- 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 ¹³⁷Cs data, Geophys. Res. Lett., 27, 22, 3731-3734, 2000
- 5. Aoyama, M., K. Hirose, T. Miyao, Y. Igarashi, Low level ¹³⁷Cs measurements in deep seawater samples, Appl. Radiat. Isot., 53, 159-162, 2000.
- Igarashi, Y., H. Sarutorius, T. Miyao, W. Weiss, K. Fushimi, M. Aoyama, K. Hirose, H. Y. Inoue, ⁸⁵Kr and ¹³³Xe monitoring at MRI, Tsukuba and its importance, J. Environ. Radioactivity, 48, 191-202, 2000.

1999

- 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.
- 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 ⁹⁰Sr deposition during the fall, 1995 at MRI, Tsukuba, Japan, J. Radioanal. Nucl. Chem. 239(3), 539-542, 1999.
- 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.
- 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.

1998

- 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 ¹³⁷Cs and ^{239,240}Pu in the sea of Japan, J. Environ. Radioactivity, 40, 239-250, 1998.

1997

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

1996

- Igarashi, Y., M. Otsuji-Hattori and K. Hirose, Recent deposition of ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs observed in Tsukuba, J. Environ. Radioactivity, 31, 157-169, 1996.
- Otsuji-Hatori. M., Y. Igarashi and K. Hirose, Preparation of a Reference Fall out Material for Activity Measurements, J. Environ Radioactivity, 31, 2, 143-155, 1966.

1995

- Aoyama, M., and K. Hirose, The temporal and spatial variation of ¹³⁷Cs 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 ⁹⁰Sr and plutonium isotopes derived from the Chernobyl accident in Japan, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 182, 349-358, 1994.

- 1. Hirose, K., and Y. Sugimura, Chemical speciation of particulate ²³⁸U, ^{239,240}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

- 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 22e 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 ¹³⁷Cs 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

- 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 ¹³⁷Cs, 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.
- 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.

- 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, ⁹⁰Sr and ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 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 ⁸⁵Kr 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 ⁹⁰Sr 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.
- 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 ²³⁴U/²³⁸U 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

 Sugimura, Y., The uranium content and the activity ratio ²³⁴U/²³⁸U 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.

- 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.
- 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 Intnl. Symp. On Natural Radiation Environment, Aug. 7-11, 1972, Houston, Texas, USA, ed. 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, ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs 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 ²³⁴U/²³⁸U 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

 Miyake, Y., Y. Sugimura and T. Uchida, A new method of spectrophotometric determination of uranium in sea water and uranium content with ²³⁴U/²³⁸U 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.
- Miyake, Y., Y. Sugimura and M. Mayeda, The uranium content and the activity ratio ²³⁴U/²³⁸U 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.

- 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

- 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 ²³⁴U/ ²³⁸U 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.
- 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

- 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.
- 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., 127-141, 1964.
- Miyake, Y., Y. Sugimura and H. Tsubota, Content of uranium, radium, and thorium in river waters in Japan, In, The Natural Radiation Environment, ed. By 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.

- 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 ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs in Tokyo through the end of July 1963, Pap. Met. Geophys., 14, 58-65, 1963.
- 6. Miyake, Y., Y. Sugiura and H. Tsubota, II. Contents of uranium, radium, and thorium in river waters in Japan, The Natural Radiation Environment, RICE Univ. semicentennial Pub., 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 ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs 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., XI. Methods for the measurement of radioactivity in sea water, Annuals of International Geophysical Year, 5, 1957.
- 4. Miyake, Y., XII. Radioactivity as a tracer of air motions in the atmosphere, Symp. On radioactivity, IGY, Utrecht, 360, 1957.
- 5. Miyake, Y., Y. Sugiura, K. Saruhashi and T. Kanazawa, The estimation of the amount of Sr-90 deposition and the external infinite gamma does 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 text 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, 1, 93-94, 1955.
- 4. 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.
- 5. Miyake, Y., The artificial radioactivity in rain water observed in Japan, from autumn 1954 to spring 1955, Pap. Met. Geophys., 6, 26-32, 1955.
- 6. Miyake, Y., Y. Sugiura and K. Kameda, On the artificial radioactivity in the sea near Japan, Pap. Met. Geophys., 6, 90-92, 1955.
- 7. 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.
- 8. 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.

- 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 (in Japanese) 1954-2011

論文リスト(和文誌) 1954-2011

論文リスト(和文学協会誌) 1954 — 2011

2011

- 1. 青山道夫,大気圏核実験および福島原子力発電所事故による太平洋の海洋汚染, Isotope News, 692, 10-14, 2011.
- 2. 青山道夫,福島原子力発電所事故による海洋汚染,科学フォーラム,329,42-45, 2011.

2009

- 1. 五十嵐康人, 放射性同位体分析, In 岩坂泰信、西川雅高、山田丸、洪天祥(編),黄砂, 古 今書院, pp81-87. 2009, 東京
- 2. Igarashi, Y., Anthropogenic Radioactivity in Aerosol -A Review Focusing on Studies during the 2000s-, 保健物理, 44(3), 2009.
- 3. 猪股弥生、五十嵐康人、千葉長、青山道夫、廣瀬勝己, 再現期間を用いた降水時における 高ガンマ線線量率の異常値判定. Radioisotopes, 58, 37-42, 2009.

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.
- 廣瀬勝己、青山道夫、C.S. Kim、S.A. Kim、南北太平洋の海水中のプルトニウムの挙動に ついて、日本放射化学会誌 別冊, 8 supplement, 103, 2007.

2006

- 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.
- 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⁹⁰Sr,¹³⁷Cs,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,⁹⁰Sr と¹³⁷Cs 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, 日本気象学会機関誌"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—,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, 環境のなかのブルトニウム, 自然, 3 月号, 1976.

1975

1. 三宅泰雄、島田利夫、川村清、重原好次,地上大気の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⁹⁰Sr 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、日本気象学会機関紙"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

 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?)

2009 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, Analysis of the 50-year records of the atmospheric deposition of long-lived radionuclides in Japan. Applied Radiation and Isotopes, 66, 1675-1678, 2008.

Igarashi, Y., Y. Inomata, M. Aoyama, K. Hirose, H. Takahashi, Y. Shinoda, N. Sugimoto, A. Shimizu, M. Chiba, Possible change in Asian dust source suggested by atmospheric anthropogenic radionuclides during the 2000s. Atmospheric Environment, 43, 2971–2980, 2009.

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

3. 海水中の人工放射能-太平洋

Aoyama, M., K. Hirose, K. Nemoto, Y. Takatsuki, D. Tsumune, Water masses labeled with global fallout ¹³⁷Cs formed by subduction in the North Pacific. Geophysical Research Letters, 35, L01604, doi:10.1029/2007GL031964, 2008.

Hirose, K., M. Aoyama, Y. Igarashi, K. Komura, Improvement of ¹³⁷Cs analysis in small volume seawater samples using the Ogoya underground facility, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 276, 3, 795-798, 2008.

Hirose, K., M. Aoyama, P.P. Povinec, ^{239,240}Pu/¹³⁷Cs ratios in the water column of the North Pacific: a proxy of biogeochemical processes. Journal of Environmental Radioactivity, 100, 258-262, 2009.

Aoyama, M., Y. Hamajima, M. Fukasawa, T. Kawano and S. Watanabe, Ultra low level deep water ¹³⁷Cs activity in the South Pacific Ocean. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry doi:10.1007/s10967-009-0253-x, 2009.

4. 全海洋表層での¹³⁷CS

Inomata, Y., M. Aoyama, K. Hirose, Analysis of 50-y record of surface ¹³⁷Cs concentrations in the global ocean using the HAM-global database. Journal of Environmental Monitoring, 11(1), 116-125, DOI: 10.1039/b811421h, 2009.

5. 大気降下物及び海洋中のプルトニウム

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

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

Hirose, K., M. Aoyama, C.S. Kim, Plutonium in Seawater of the Pacific Ocean, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 274 No. 3, 635-638, 2007. 2007 年度以前の掲載論文リストは「環境における人工放射能の研究 2009」を見てください。

複製・転載許可

M. Aoyama, M. Fukasawa, K. Hirose, Y. Hamajima, T. Kawano, P.P. Povinec, J. A. Sanchez-Cabeza. Cross Equator transport of ¹³⁷Cs from North Pacific Ocean to South Pacific Ocean (BEAGLE2003 cruises), In: Special issue of Southern Hemisphere Ocean Tracer Study of Progress in Oceanography, 7-16, Doi:10.1016/j.pocean.2010.12.003, 2011.Reprint with permission from Elsevier, Oct. 20, 2011 (この部分は著作権法規定により本 PDF 版には収録せず)

D. Tsumune, M. Aoyama, Katsumi Hirose, Frank Bryan, Keith Lindsay, Gokhan Danabasoglu. Transport of ¹³⁷Cs to the Southern Hemisphere in an Ocean General Circulation Model, In: Special issue of Southern Hemisphere Ocean Tracer Study of Progress in Oceanography, 38-48, Doi:10.1016/j.pocean.2010.12.006, 2011. Reprint with permission from Elsevier, Oct. 20, 2011 (この部分は著作権法規定により本 PDF 版には収録せず)

Tsumune, D., T. Tsubono, M. Aoyama, K. Hirose, Distribution of oceanic ¹³⁷Cs from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant simulated numerically by a regional ocean model. Journal of Environmental Radioactivity, Doi: 10.1016/j.jenvrad.2011.10.007, 2011. Reprint with permission from Elsevier, Nov. 14, 2011 (この部分は著作権法規定により本 PDF 版には収録せず)

表紙の図説明

2011 年 3 月以降の¹³⁷Cs 月間降下量は、暫定値

福島事故の実態把握について社会的な関心も高いため、2011 年 3 月の事故以降の ¹³⁷Cs 月間降下量の暫定値をプロットしています。暫定値は、試料の一部を水のまま取 り分けて測定した値を元に算出しています。セシウムは、液相と固相に分配してしま うので、正しい値は試料全体の蒸発濃縮ができないと求められない状況です。そのた め、プロットは過小評価と考えられます。また、¹³⁴Cs がほぼ等量降下していますので、 放射性セシウム全体ではこのプロットのほぼ倍量となります。誤差は計測の統計誤差 で、1シグマです。測定誤差は本来表示すべきですが、グラフが見づらくなるため、 従来はあえて表示してきませんでした。

暫定値でなく正値とするには、蒸発濃縮した試料での計測が必要となるため、もう 少し作業の時間が必要です。蒸発濃縮作業工程では、放射能強度が従来の試料にくら べ桁違いに大きいため、周囲の汚染や作業者の被ばくにも注意を払いながら進めてい ます。ご理解をお願いします。

また、福島事故以前の試料については、実験室環境および測定室環境、測定機器の バックグラウンドなどが大幅に上昇してしまったため、蒸発濃縮工程においても試料 の汚染の問題が発生します。そのため、当面、観測値を求めること自体が困難になっ ています。徐々に作業環境の除染や測定機器の入れ替えなどを実施して事故以前の作 業環境を追求し、データを求めるように努めていますので、こちらについてもご理解 をお願いします。

A caption of the cover art

The estimate of the Cs-137 deposition at the MRI, Tsukuba is presented for several months after the accident in March, 2011

Given the social as well as scientific concerns about local contamination caused by the Fukushima nuclear accident, the estimate of the Cs-137 deposition at the MRI, Tsukuba is plotted for several months after the accident in March, 2011 in the figure. The estimate was computed based on the value obtained by measuring the aliquot of the sample water (wet + dry depositions). Since cesium is distributed between the liquid and the solid phases, the accurate value is not obtained unless the concentration of the whole sample by evaporation was achieved. Probably, current values are sorts of underestimation. Moreover -- since Cs-134 deposited in almost comparable amount -- the total radioactive cesium becomes mostly double. An error depicted is a statistical one for the activity measurement (1σ). Although the error should have been displayed essentially, since it is hard to see a graph with many errors, the errors have not been displayed conventionally.

The whole sample measurement by evaporation concentration should be carried out in order to obtain the precise value instead of an estimate, requiring more time. Since the activity levels of the atmospheric deposition sample were extraordinarily elevated compared with those prior to the accident, the evaporation concentration process is now underway with paying attention to the contamination of the laboratory rooms and a worker's possible exposure. Kind understanding is much appreciated.

Moreover, since the activity background of laboratory and measurement room environments, and detectors, etc. were sharply increased due to the pollution by the accident, regarding the measurement of the pre-Fukushima samples, problems of the contamination must occur not only in an evaporation process but also in other analytical processes. Therefore, it is difficult to obtain precise observation data for the pre-Fukushima samples for the time being. Decontamination of working environment, change of detectors, etc. are, however, carried out gradually, thus the improvement of the working environment is pursued. The precise data are to be obtained in the near future; please give us the time needed for such procedures.

	2011 年(平成 23 年) 12 月 December 2011
編集者	:青山道夫
発行者	:気象研究所地球化学研究部 環境・応用気象研究部
Editor	: Michio Aoyama
Publisher	: Geochemical Research Department and Atmospheric Environment and Applied Meteorology 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	:よしみ工産株式会社
	北九州市戸畑区天神1丁目13番5号
:本PDF	版は一般配布を目的として論文部分を削除の上 2012 ^年

注:本 PDF 版は一般配布を目的として論文部分を削除の上 20 3月13日作成された。