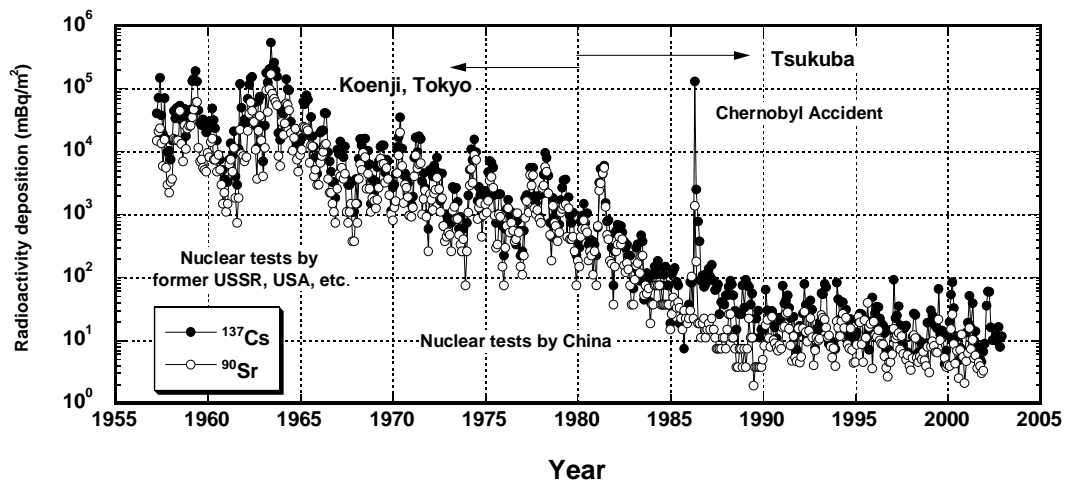


Artificial Radionuclides in the Environment 2003

環境における人工放射能の研究 2003



Temporal variation in the monthly ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs
depositions observed at MRI since 1957



Geochemical Research Department, Meteorological Research Institute,
JAPAN

January 2004

気象研究所 地球化学研究部

序

気象研究所地球化学研究部では、1954年以來、環境放射能の観測法の開発、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科学技術庁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放射能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。2001年の省庁再編に伴い、現在は文部科学省が所管している。地球化学研究部では、環境中の人工放射性元素の分布とその挙動を40年以上にわたって観測・研究しており、このような長期にわたる観測・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。

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5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。地球化学研究室は、当時から環境の放射能を分析・研究できる日本有数の研究室であり、三宅泰雄の指導の下、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、さらには大気を経由しての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5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気象官署及び気象研究所(気象研究所では1957年4月から)で採取した降水・落下塵(一ヶ月の全量)及び観測船で採取した海水中の ^{90}Sr や ^{137}Cs 、プルトニウム同位体等の放射性核種分析を実施してきた。

大気中の人工放射性物質の主要な放出源であった大気圏核実験については1962年の「部分的核実験禁止条約」の締結、その後の中国とフランスによる大気圏核実験も1980年10月の中国による大気圏核実験を最後として行われていない。しかし、1986年4月にチェルノブイリ原子力発電所で事故が起こり、世界規模の放射能汚染を引き起こした。その後も極めて小規模ではあるが、1997年3月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9月のJCOウラン燃料工場の臨界事故により放射性物質が環境中へ放出された。一方、日本周辺海域では、ロシア(旧ソ連)による放射性廃棄物の海洋投棄が公表されている。このように環境の放射能汚染は過去の問題ではない。従って、引き続き環境放射能調査研究は必要である。

2001年4月(平成13年4月)からは文部科学省放射能調査研究費による特定研究課題として「大気圏の粒子状放射性核種の長期的動態に関する研究」、「大気中の放射性気体の実態把握に関する研究」及び「海洋環境における放射性核種の長期的挙動に関する研究」の3課題で環境放射能研究に取り組んでいる。また、近年諸外国や国内の研究機関との協同研究も進展している。また、当研究部を含め世界で得られた降下物と海水中の放射性核種については、現在データベースを作成中であり、近い将来Web site等から公開される予定である。

今回わたしたちが実施してきた環境放射能研究に関する最新の成果を過去の研究の歴史と合わせて取りまとめ今後の研究の発展の基礎として活用を計るため、論文集(2003年12月版)を作成した。掲載した12の論文は、過去の一連の研究成果から最新の成果までの主なものを一冊でカバーできるように選択されている。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広く活用されることを期待している。

2003年12月

気象研究所 地球化学研究部

目次

1 . 人工放射性降下物 (死の灰のゆくえ)	・ ・ ・	1
2 . 大気浮遊塵	・ ・ ・	25
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	・ ・ ・	38
4 . 環境中のトリチウムの挙動に関する研究	・ ・ ・	49
5 . 日本海における ¹³⁷ Cs (セシウム-137) 及び ^{239,240} Pu (プルトニウム-239、240) の時間的変動	・ ・ ・	51
6 . 海水中の人工放射性能 - 太平洋について	・ ・ ・	63
7 . 日本の主要河川水中の人工放射性核種	・ ・ ・	108
8 . 大気降下物及び海水中のプルトニウム	・ ・ ・	109
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	・ ・ ・	120
論文リスト (英文誌) 1954-2003	・ ・ ・	133
論文リスト (和文誌の一部) 1954-1976	・ ・ ・	146
表 : 研究の歴史 1954-2003	・ ・ ・	149
環境における人工放射性能の研究1954-2001 に掲載した論文のリスト	・ ・ ・	151
環境における人工放射性能の研究1954-1999 に掲載した論文のリスト	・ ・ ・	153

Contents

1, Radioactive fallout in Japan since 1957 -----	1
2, Aerosols -----	25
3, Radioactive gases observed at Tsukuba, Japan -----	38
4, Tritium in the environment -----	49
5, Temporal variation of ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$ in the Japan Sea -----	51
6, Artificial radionuclides in the Pacific Ocean -----	63
7, Artificial radionuclides in major rivers in Japan -----	108
8, Plutonium in fallout and seawater -----	109
9, Atmospheric transport originating from Chernobyl accident in 1986 and the Tokai waste treatment plant in 1997 -----	120
Publications list 1954-2003 -----	133
Publications list (in Japanses) 1954-1976 -----	145
History of the studies at Meteorological Res. Inst. -----	149
Publications appeared in “Artificial radionuclides in the Environment 1954-2001” ---	151
Publications appeared in “Artificial radionuclides in the Environment 1954-1999” ---	153

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、ビキニ事件からまもなくの1954年4月に放射性降下物（いわゆるフォールアウト）の観測を開始した（当初は全観測）。月間降水・降下塵中の核種分析は1957年に始まり、以降現在に至るまで40数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。対象は重要な核種である ^{90}Sr 、 ^{137}Cs およびPu同位体である。当初は全国5地点の気象官署で試料採取を行ってきたが、次第に観測地点を加えて1979年に現在の北緯24度から45度にまたがる全国12地点での観測となった。放射性降下物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}Sr 約 $170\text{Bq}/\text{m}^2$ 、 ^{137}Cs 約 $550\text{Bq}/\text{m}^2$ ）その後徐々に低下した。しかし、60年代中期より開始された中国核実験による影響で降下量は度々増大し、1980年を最後に核実験が中止されたので徐々に低下した。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り、放射能の降下量は再び増大したが、1990年代になり ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の月間降下量はともに数～数 $10\text{mBq}/\text{m}^2$ で推移しており、「放射性降下物」とは呼べない状況に至った。この40数年間に互る時系列データは、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。

初期の一連の研究により、重要な気象学的知見が得られた。例えば、降下量の時間変動から対流圏、成層圏における放射性物質の滞留時間がそれぞれ、30～50日、1.0～1.2年と求められた。これは翻って粒子状物質（エアロゾル）の滞留時間を求めたことにほかならない。また、放射能の降下量は太平洋側では春に増大し、日本海側では冬に増大すること、北半球で考えると中緯度地帯に降下量の極大があり、成層圏対流圏の大気交換過程に主たる原因があることなどが明らかにされた。これらは成層圏エアロゾルの地表面への沈着について科学的示唆を与えるものである。このほか、核実験では半減期約53日の ^{89}Sr も放出されることから、 $^{89}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}$ 放射能比を用いて各回の中国核実験による降下量の寄与分が見積もられた。その結果、各実験の寄与の季節変化が明らかとなったが、その核実験が実施された季節の違いと実験の規模により放射能の打ちこまれる高度が変わることが原因となって、季節変化のパターンが違うことがわかった。

この放射能の降下量の季節変化と経年の変動をより定量的に説明するために、従来からの大気輸送ボックスモデルを改良して北半球4ボックスモデルによる解析が行われた。上部成層圏、下部成層圏、対流圏に加えて、対流圏界面付近の混合層を置き、一次の速度式に従って放射能が輸送されると仮定し、上部から滞留半減期をそれぞれ0.5、0.7および0.3年とした場合、観測結果をよく再現できた。また、このモデルにより核実験による放射能の成層圏への打ち上げ量を評価できた。

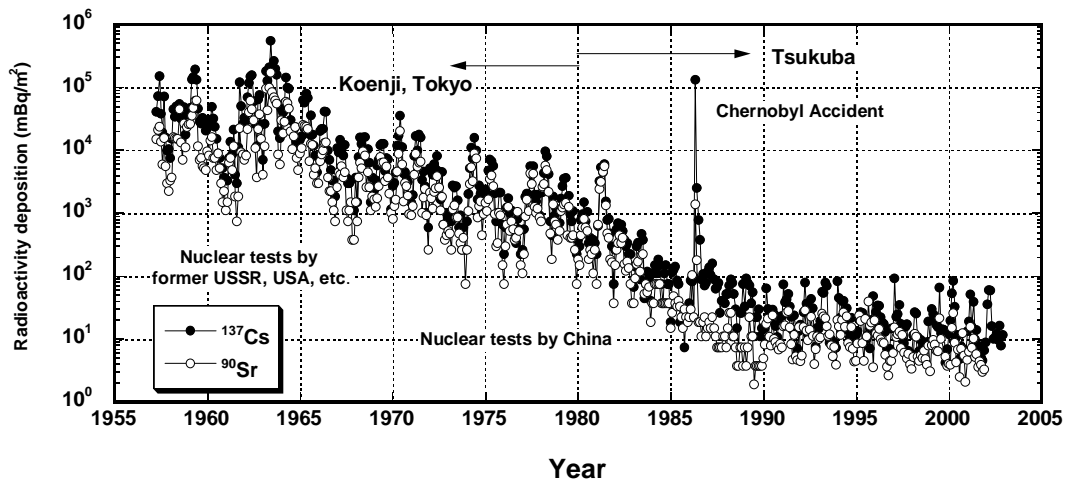
1990年代になると、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、Puの降下量は大きく低下し、試料採取に 4m^2 の大型水盤を用いている気象研究所以外では検出限界以下となって、降下量を容易に数値化できなくなった。このため、気象研での観測記録は我が国のみならず世界で唯一最長の記録となっている。チェルノブイリ事故由来放射能の一部は下部成層圏にも輸送されたが、1994年以後の年間降下量は成層圏滞留時間から予想される量を大きく上回り、むしろほぼ一定量で推移する状況（変動幅2倍程度）となった。従って、成層圏以外のリザーバーから放射能が供給されており、それは表土と考えられる。一旦地表面に沈着した放射能は、風によって土壌粒子とともに大気中に浮遊する。この過程が再浮遊であり、大気への放射能の供給源として重要となってきた。再浮遊は、従来、近傍の畑地などからの表土粒子が主体となっていたと信じられてきた。しかしながら、降下物の $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 放射能比は、気象研近傍で採取した表土中の同比と値が一致せず、再浮遊には複数の起源のあることが明らかとなった。他の起源として想定できる地球化学的な現象としては、表土粒子が大規模に輸送される風送塵（黄砂）がある。そこで、この仮説を検証するための取り組みを開始した。最初の試みとして、大陸の砂漠域で90年代に採取された表土につき測定を行い、つくばの土壌と比較したところ、 ^{137}Cs 濃度はほぼ同水準であるが、 ^{90}Sr 濃度はつくば土壌の数倍で、核実験で降下した放射能が降水によって溶出されることなく、残留している様子が示された。

また、 $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 放射能比は降下物試料での同比に近く、比を利用した2成分混合の計算からも風送塵(黄砂)が放射能輸送に寄与していることが強く示唆された。風送塵に関する研究は、近年の気候変動研究にも対応し、科学的新知見を与え得るものである。人工放射能をトレーサーとして風送塵の研究に応用できる可能性が見えつつある。このように、環境研究においては時系列データが如何に貴重なものであるか再度強調したい。

[掲載論文]

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}Sr and ^{137}Cs as tracers for the aeolian transport?, Water, Air. And Soil Pollution, 130, 349-354, 2001.



2. 大気浮遊塵

大気からのエアロゾルの除去過程の現象について大気浮遊塵中の人工放射能の観測結果から直接得られた知見としてはチェルノブイリ由来のものについての研究があげられる。アンダーセンサンプラーを用いて平均粒径分布（空気動学的放射能中央径：AMAD）を求めた。その結果、チェルノブイリ由来の放射性核種を含むエアロゾルの平均粒径は $^{131}\text{I} < ^{137}\text{Cs}, ^{103}\text{Ru} < ^{90}\text{Sr} < ^{239,240}\text{Pu}$ という順序で大きくなることが分かった。この内、 ^{131}I 、 ^{137}Cs 及び ^{103}Ru の平均粒径はサブミクロンであった。また、 ^{131}I 、 ^{137}Cs 及び ^{103}Ru の3核種の場合、 $0.43\ \mu\text{m}$ 以下に全体の放射能の50%が存在し、粒径の増加とともに急速に放射能が減少する分布を示した。また、 $1.1\ \mu\text{m}$ 以下の分画には ^{131}I の場合83%、 ^{137}Cs の場合90%及び ^{103}Ru の場合94%の放射能が含まれていることがわかった。5月末までの観測によると、粒径分布は時間とともに変化し、平均粒径は ^{137}Cs の場合 $0.4\ \mu\text{m}$ から $0.7\sim 0.8\ \mu\text{m}$ と増加し、 ^{103}Ru においても同様な傾向がみられた。

日本の大気・降水中で観測されたチェルノブイリ由来の放射性核種の核種組成を放出源の報告値と比較すると、放出過程の組成の変化を考慮に入れても大きく異なっている核種があることが分かってきた。 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ や $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は観測期間中殆ど一定であった。ただし、放出源の放射能比を比較すると、つくばの大気中の $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比はやや高いことが分かった。つくばのエアロゾル中の $^{103}\text{Ru}/^{137}\text{Cs}$ 比は5月の上旬は当初の放出時の放射能比と同じであったが、下旬に増加の傾向を示した。この変化は、放出過程（後半でより多くの ^{103}Ru が放出されている）による変動を反映しているものと考えられる。一方、 ^{90}Sr やプルトニウムについては、少なからぬ量（ ^{90}Sr の放出量の場合 ^{137}Cs の22%、プルトニウムの場合、 ^{137}Cs の0.17%）の放出があったにもかかわらず、日本の大気・降水で観測された放射能はかなり低い値であった。 ^{90}Sr の場合 ^{137}Cs に比べて約1/100しか日本には輸送されてこなかったことを意味する。言い換えれば、輸送の間で放射性核種間で分別が起こったことを示唆している。つくばの大気・降水中のチェルノブイリ由来の放射能の結果によると、全体の降下量に対するドライデポジションの寄与は $9(^{103}\text{Ru})\sim 12(^{137}\text{Cs})\%$ であり、大気中の放射能の大部分は降水によって除去されていることが分かった。

ドライデポジションによるチェルノブイリ由来の放射性核種の大気からの除去の様子を知るための指標として、各核種に付いてドライデポジションベロシティーを計算したところ、 $^{131}\text{I} < ^{137}\text{Cs}, ^{103}\text{Ru} < ^{90}\text{Sr} < ^{239,240}\text{Pu}$ という順序で大きくなることが分かった。即ち、放射能を帯びたエアロゾルの長距離輸送の間で、ドライデポジションを主に支配している過程である重力等により、チェルノブイリ由来の放射性核種の中ではプルトニウムが最も除去され易かったことを意味している。計算されたドライデポジションベロシティーは 0.023cms^{-1} から 2.0cms^{-1} の範囲にあり、時間変動と核種依存性が明瞭であった。

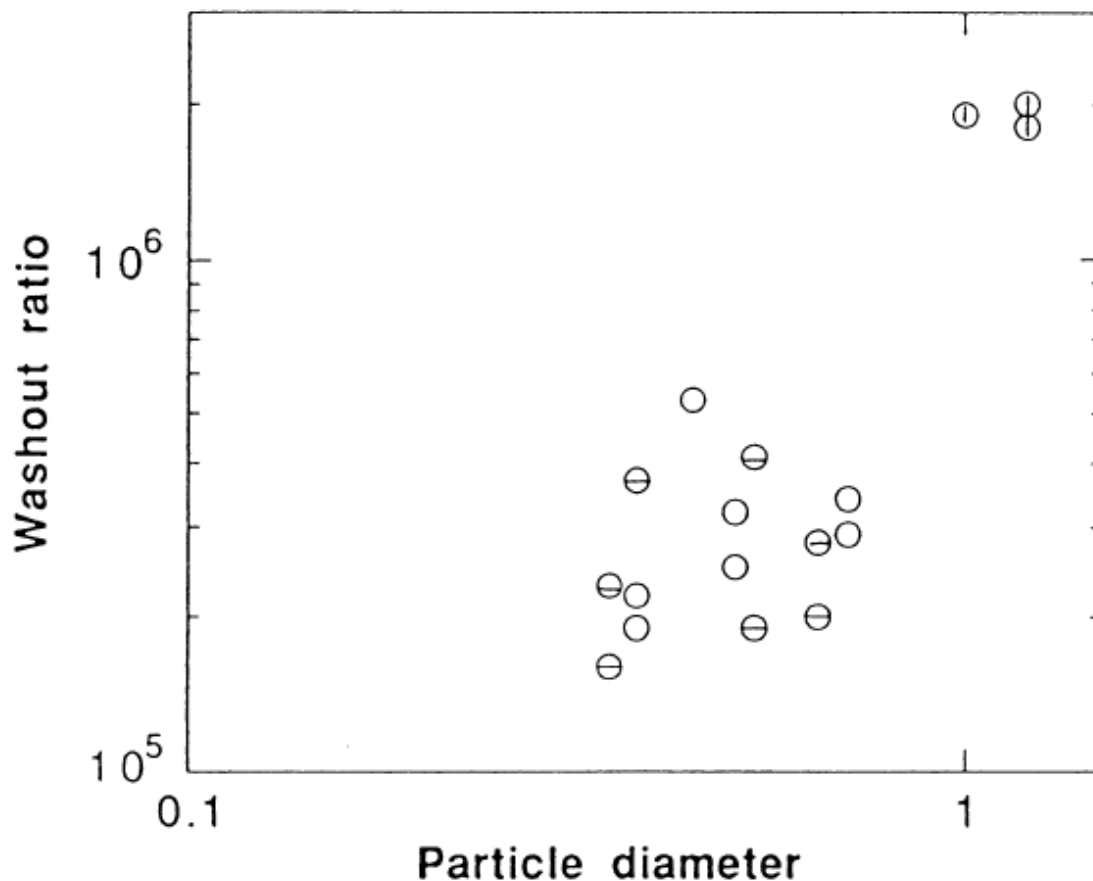
降下する機構は核種の化学的性状に依存せず物理的な粒径のみに依存するという仮定のみで計算したにもかかわらず、 $1\ \mu\text{m}$ 以上の粒子では重力沈降の速度と同じオーダーと勾配を持つという結果が得られた。 $1\ \mu\text{m}$ 以下の粒径に対するドライデポジションベロシティーは、重力沈降によるものからは大きく異なっており、粒径 $1\ \mu\text{m}$ 付近でドライデポジションベロシティーは極小となったのち、粒径が小さくなるにしたがって、ドライデポジションベロシティーが大きくなる傾向を示す。これには、Brown運動の効果の寄与が示唆される。

降水による大気中のエアロゾルの除去には様々な要素が関係しており極めて複雑である。気象要素としては降水の性質や降水強度は重要な因子となる。降水による大気中のエアロゾルの除去を表わす指標としてwashout ratioが使われてきた。つくばの個別降水で観測されたチェルノブイリ由来の放射能についてwashout ratioを計算したところ、 $^{137}\text{Cs}, ^{103}\text{Ru} < ^{90}\text{Sr}$ の順序で大きくなることが分かった。即ち、これらの核種の中では平均粒径の大きい ^{90}Sr が最も降水により除去され易いことを意味している。 ^{131}I 、 ^{137}Cs 及び ^{103}Ru の平均粒径はサブミクロンであった。ドライデポジションや降水によるエアロゾルの除去のされ易さの順序と平均粒径の順序は良く対応していることが分かる。この結果は従来研究されてきた降水やドライデポジションによるエアロゾルの除去がエアロゾルの粒径と密接に関連しているという機構と良く一致している。即ち、ガス状で放出された放射性

核種は、凝縮や付着等の過程によってサブミクロンのエアロゾルとなり、粒径が大きなエアロゾルに比較して大きな除去作用を受けなかったために、数10日の時間スケールで北半球の中緯度から北側に輸送され、北半球の広域を汚染した。一方、不揮発性の放射性核種は放出時に生成した1 μ m以上のエアロゾルに含まれていたために、輸送過程で優先的に大気中から除去されたと考えられる。

〔掲載論文〕

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



Relationship between corrected washout ratios and AMAD of the Chernobyl radionuclides.

¹³⁷Cs : (○), ¹⁰³Ru : (⊖), ⁹⁰Sr (⊕)

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

気象研究所では、大気中濃度の監視とそのトレーサー利用とを目的として、全球にモニタリングネットを展開しているドイツ大気放射能研究所（BfS-IAR）から協力を受けて、国際的にも評価の高いBfS-IAR方式を導入し、協同して大気中の⁸⁵Kr及び¹³³Xeの大気中濃度（一週間平均値）の観測を継続している。1995年5月から始まったこの観測では、つくばで採取した試料が毎週ドイツに送付され、BfS-IARにおいてKr/Xeの分析が行われてきた。観測当初の、1995年から1997年までの3年間、春と秋にはつくばでの⁸⁵Kr濃度が通常よりも1桁上昇するのが認められた。この濃度上昇は東海核燃料再処理工場の操業により⁸⁵Krが大気中に放出されたことによるのだが、もうひとつの要因 - 主風向の季節変化 - があり、このような季節変化に類似した変動を示すことがわかった。このことをできるだけ定量的に考えるため、再処理工場からの⁸⁵Kr日放出量と気象データを用いて簡単なモデルにより解析したところ、計算値と観測値はよく一致することが明らかとなった。

1997年3月以降の期間は、再処理工場は休止していたため、観測された⁸⁵Kr濃度は他の北半球中緯度（北緯30～40°）地点での観測値（およそ1.3Bq/m³）と同様にバックグラウンド値となっていた。その後、再処理工場は2000年6月から操業を断続的に開始し、2001年3月から本運用を再開した。これに伴う大気中⁸⁵Krの濃度増加が、再び観測された。

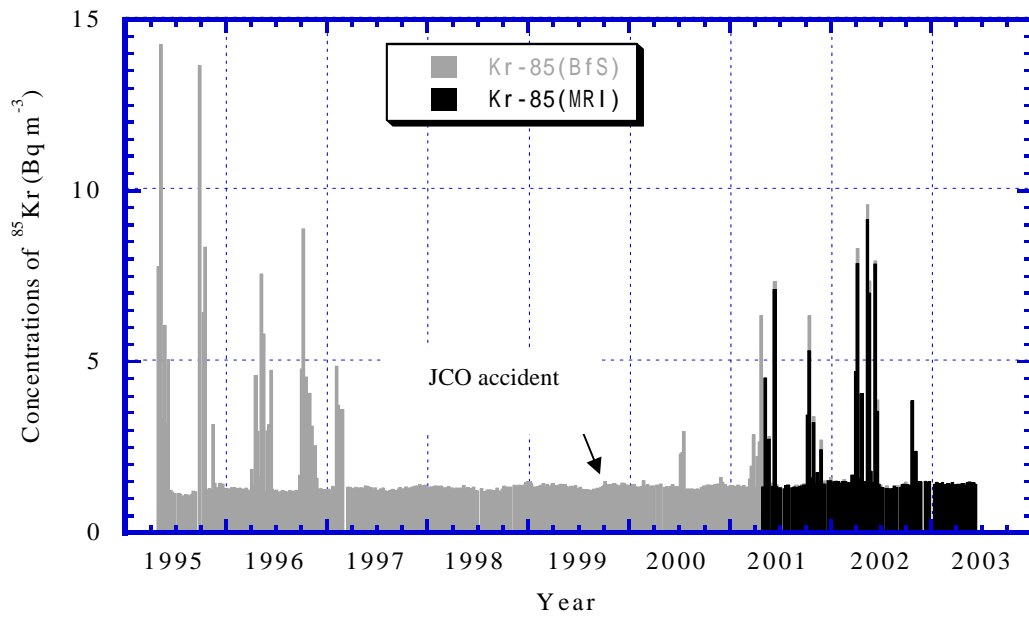
再処理工場休止期間以外のバックグラウンド濃度は、東海村からの影響と推定される観測値を除いたものである。このようにして求めたバックグラウンド濃度は時間の経過とともに徐々に増大しており、夏に低く、冬に高いという季節変動を示した。関数フィッティングにより求めた1995年から2002年までの年間濃度上昇率はおよそ2.3%で、ヨーロッパの観測地点で得られたデータとほぼ同じであった。このことは、核燃料再処理からの放出により全球的な⁸⁵Kr濃度上昇が依然として続いていることを示している。

なお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、有意な濃度上昇を認めなかった。

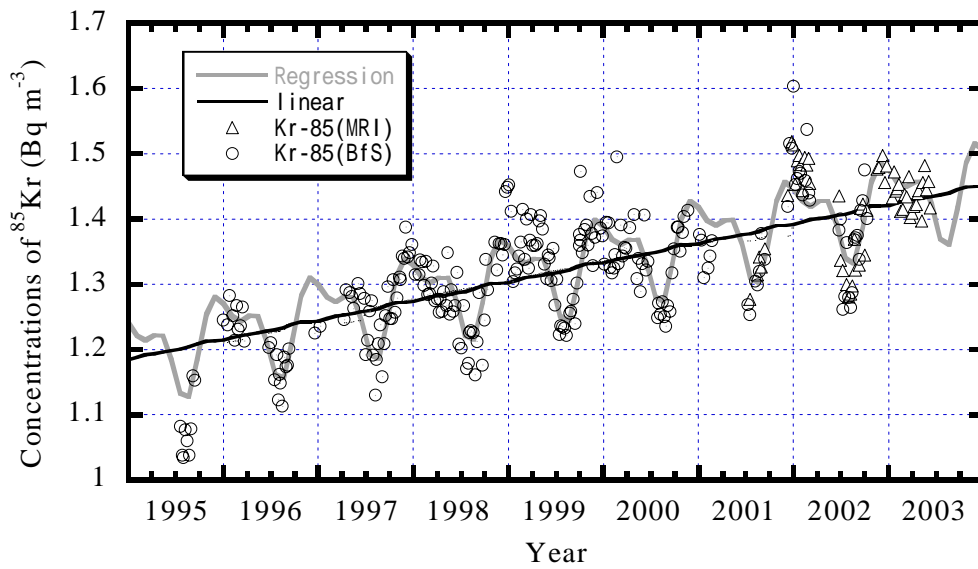
放射性希ガスの観測は分析方法等の困難点もあり、日本での取組は少なく、1990年代当初には大気中バックグラウンドレベルの⁸⁵Kr濃度を連続して測定しうる観測装置は存在しなかった。このため1995年より気象研究所では上記の観測と平行して、BfS-IAR方式に基づく⁸⁵Kr観測装置の開発に取り組んできた。その結果、1999年6月に装置が完成し、その後行われた実試料によるBfS-IARとの比較試験により、ほぼ6%以内で双方の分析値が一致することを確認した。

〔掲載論文〕

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



^{85}Kr concentration observed at MRI, Tsukuba during 1995 to 2003



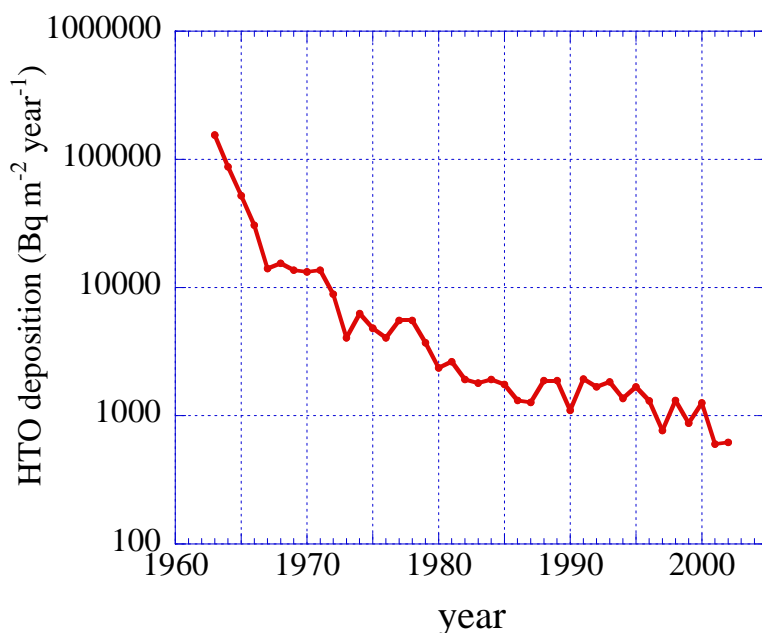
Background ^{85}Kr concentration observed at MRI, Tsukuba during 1995 to 2003

4 . 環境中のトリチウムの挙動に関する研究

トリチウム(T)は、半減期がおよそ 10 年の水素の放射性同位体であり、環境中の主な化学形は水 (HTO) であるが、水素ガス(HT)としても存在している。トリチウムの発生源は、天然の核反応の他、核実験や原子力施設などである。地球化学研究部においては、トリチウムの環境中における動態を明らかにする目的で、東京及びつくば (1980 年 4 月以降) における降水・水蒸気中の HTO 濃度測定及び、北太平洋西部海域における海水中の HTO 濃度測定をこれまでに行っている。

下図は 1963 年から 2002 年 12 月までの降水中のトリチウム年間降下量の経年変化を示している。また、表には 1991 年から 2002 年までの降水中のトリチウム濃度および降下量を示す。1961~62 年に行われた大気圏核実験の結果として 1963 年の降下量は約 150,000 Bq m⁻² year⁻¹ 大となり、見かけの滞留時間 1.9 年で 1967 年まで減少停留した。これは他の放射性核種の成層圏滞留時間、例えば ⁹⁰Sr の 1.4 年と比較すると若干長い時間であり、地球表層の水循環を反映した結果である。1968 年以降は降水中のトリチウム年間降下量は、中国の一連の核実験のために増減を繰り返しながら緩やかに減少した。こうした成層圏に由来するトリチウムの降下量は、前年に核実験が行われなかった限り年の前半に多く、後半では前半の 1/3 になっている。1980 年を最後に大気圏への大規模なトリチウムの放出はなくなり、そのレベルは天然の核反応に由来するものに近くなり現在に至っている。その降下量は 1990 年代では 800 ~ 1900 Bq m⁻² year⁻¹ である。また、最近では原子力施設からの放出の減少と太陽活動による影響 (黒点数の極大期にあたり、天然の核反応に由来するものが減少) を反映しているとみられる降下量の減少が観測されている。2001 年と 2002 年では、約 600 Bq m⁻² year⁻¹ 程度まで減少し、観測開始以来最も少なくなっている。

トリチウムは ¹³⁷Cs や ⁹⁰Sr とは異なり、核分裂による生成よりも核融合による生成の方が何桁も多い。このため 1986 年 4 月 26 日に発生した旧ソ連のチェルノブイリ原子力発電所の事故に由来する影響は認められなかった。



東京 (1980 年 3 月まで) 及びつくば (1980 年 4 月 ~ 2002) における降水中のトリチウム年間降下量の経年変化

H-3 MRI 降水試料

濃度 (Bq/L)		斜字: 検出下限値を示す										
月	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002
1	1.0	1.2	1.0	1.6	1.4	0.8	0.5	0.9	0.8	1.6	0.4	0.5
2	0.7	1.5	1.2	1.2	1.5	1.0	1.2	0.7	1.4	0.8	0.5	0.6
3	0.9	1.3	1.3	1.5	1.2	1.0	0.9	0.5	0.7	0.7	0.4	0.5
4	0.8	1.1	1.4	1.2	0.9	2.1	0.5	1.5	0.9	1.4	0.8	0.9
5	1.1	1.8	1.4	1.4	1.3	1.4	1.0	0.8	0.9	0.9	0.8	1.1
6	0.9	1.3	1.7	1.6	1.2	0.8	0.9	0.8	0.6	0.9	0.4	0.7
7	1.4	1.8	1.3	0.9	1.7	0.9	0.5	1.0	0.5	0.9	0.4	0.5
8	1.1	1.3	1.3	0.8	1.5	0.8	0.5	0.5	0.5	1.2	0.4	0.4
9	1.0	1.1	1.5	1.3	2.0	1.5	0.8	0.7	1.2	0.6	0.4	0.5
10	1.1	1.3	1.0	0.8	1.8	0.9	0.5	0.9	0.8	1.0	0.4	0.5
11	1.0	1.2	1.2	1.6	1.7	0.9	0.5	1.2	0.5	0.6	0.4	0.5
12	1.3	1.3	1.6	1.0	0.0	0.9	1.0	0.8	0.6	0.9	0.4	0.5

降下量 (Bq/m ²)		斜字: 検出下限値を示す										
月	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002
1	49	47	90	73	38	14	14	71	8	92	44	48
2	40	29	78	89	24	31	36	42	62	10	9	18
3	109	213	77	177	176	95	87	43	84	50	51	26
4	74	205	51	47	98	139	41	317	183	148	23	37
5	72	196	144	139	238	147	147	110	92	195	139	136
6	103	190	289	113	219	35	148	128	94	171	56	82
7	178	115	286	52	268	178	50	147	106	194	8	61
8	223	71	313	61	101	28	19	106	70	98	34	28
9	441	87	137	467	341	473	116	203	62	109	72	77
10	506	302	129	45	111	55	11	119	71	141	116	61
11	100	143	142	80	66	82	54	4	42	51	40	13
12	46	88	98	23	0	32	44	32	7	3	11	34
合計	1941	1686	1834	1366	1680	1309	767	1322	880	1261	601	620

降水量 (mm)												
月	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002
1	50	39	91	46	28	17	28	79	10	58	102	107
2	61	20	64	72	16	32	31	63	43	13	17	28
3	119	170	59	116	142	95	101	81	113	67	120	58
4	92	181	36	39	111	66	79	206	195	110	31	41
5	65	111	103	102	189	103	155	148	101	218	165	121
6	111	144	166	72	180	42	161	156	149	191	133	111
7	127	66	224	55	156	192	96	144	196	225	18	136
8	205	54	242	78	70	36	36	200	130	80	80	64
9	432	77	92	348	172	307	148	276	50	199	167	167
10	449	240	125	54	61	63	22	128	90	139	272	135
11	97	115	119	49	39	94	102	3	78	80	92	29
12	36	69	62	22	0	37	47	43	13	4	26	76
合計	1844	1286	1383	1053	1164	1083	1003	1523	1165	1382	1221	1070

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

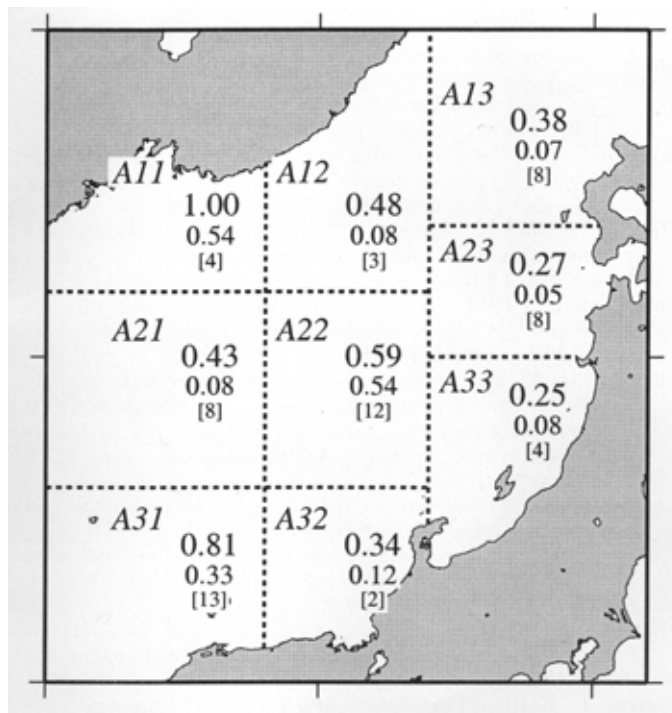
1993-1994 年における人為的起源を持つ放射性核種、¹³⁷Cs及び^{239,240}Puの日本海表面水中の濃度は、それぞれ 2.7-3.8 Bq m⁻³ 及び 1.3-8.0 mBq m⁻³ の範囲にあり、北太平洋における濃度と同じオーダーであった。時系列データを見ると、放射性廃棄物の大規模な投棄とチェルノブイリ・フォールアウトの直後にあたる 1986 年及び 1987 年に¹³⁷Csの増大がみられた。表面海水中における¹³⁷Csのみかけの半減期を求めたところ、上述の濃度上昇分にあたる excess ¹³⁷Csに対しては約 3 年、より長期的なトレンドに対しては約 16 年であった。前者は日本海に流入した対馬暖流水が日本海の表層で混合するために希釈されてゆく現象に対応する時間スケール、後者は外海との表層水の交換による輸送に対応する時間スケールと考えることができる。さらに海域に分けて¹³⁷Cs濃度を整理したところ、深層水の¹³⁷Cs濃度が他の海域に比べて高いウラジオストック沖で日本海固有水が形成していることがわかった。また、日本海表面水中の^{239,240}Pu濃度については、過去 20 年にわたるデータからは構造的な変動はとらえられず、むしろ深層に入ったPuの表層への再生の速さを反映しているようであった。Puの鉛直分布は北太平洋と同様、中層に極大を示す。ただし、その極大は北太平洋より顕著ではない。さらに、深海のPu濃度には海底地形の影響が見られる。

チェルノブイリ・フォールアウトには¹³⁴Csが一定の割合で含まれていたことが陸上の観測から知られているので、1986 年及び 1987 年のデータにより¹³⁴Cs濃度を用いてチェルノブイリ事故起源の¹³⁷Csを評価した。その解析結果によると、近年の日本海の水柱における放射能の大半は、過去の大気圏核実験等に由来する全球的フォールアウトによってもたらされたもので、一部がチェルノブイリ・フォールアウトによるものと考えられることが分かった。なお、ロシアによる放射性廃棄物の大規模な投棄に対応する明瞭なシグナルは観察されなかった。

〔掲載論文〕

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 ¹³⁷Cs data, Geophys. Res. Lett., 27, 22, 3731-3734, 2000.



Statistics of decay corrected ¹³⁷Cs data (as of Jan. 1, 1995) in the 1500-3000m layer (upper : average, middle : standard deviation, lower : number of data).

6 . 海水中の人工放射能 - 太平洋について

1954年3月1日にビキニ環礁で行われた水爆実験により、第5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。気象研究所地球化学研究部(当時は地球化学研究室)は、当時から環境の放射能を分析・研究できる日本有数の研究室であり、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、海洋を経由しての日本近海や太平洋中緯度域への輸送速度、さらには大気を経由しての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。一方、海洋の人工放射性核種は1945年以前には全く存在しなかったものであり、海洋の物理的循環、生物地球化学的素過程を解明するための最もすぐれたトレーサーとなっている。海水中の人工放射性核種の分布や経時変動を解明していくことは、海洋学を発展させるとともに、海洋における放射性核種の挙動に関するモデルを確立させ、将来予測が可能になることでもある。

気象研究所がこの40年以上にわたり蓄積してきた海洋放射能データおよび日本国内での降下量の観測データとあわせて、過去に報告されている海洋、大気、土壌のデータ(国内外の論文や機関報告書等)を全球を対象として、できる限り原形に近い形でデータを入力し、様々な単位系で記述されているデータを現在のBqの単位系に変換して、データベースに納める作業を行っている。これらのデータから海面からほぼ海底までの海水中蓄積量を推定できる162のプロファイルを抽出し、 ^{137}Cs の海水中蓄積量を求めた。また、全球での陸上観測点での降下量についても減衰を考慮した ^{137}Cs 積算降下量を求めた。さらに、土壌中の蓄積量もあわせて扱えるようにした。これにより、海水中蓄積量、陸上積算降下量および土壌中蓄積量をあわせて検討した。

減衰を考慮した ^{137}Cs 積算降下量が、ほぼ最大となった時期である1966年から1972年を1970年で代表させ、それぞれの時期の海水中蓄積量および土壌中蓄積量を1970年に補正をしたのち、1970年での ^{137}Cs 積算降下量とあわせて1枚の図に重ねて描いた(図1)。陸上での降下量の積算値が得られていなかった地域を、土壌中蓄積量を使うことによりカバーできるようになった。このことで、全球降下量をより正しく評価できるようになった。これまでに、積算降下量/海水中蓄積量の関係は、全球でギャップのない分布をし、相互に矛盾していないことを報告しているが、さらに土壌中蓄積量のデータを加えても全球で相互に矛盾は生じず、継ぎ目のない分布をしていることが見てとれる。これらのデータをもとに、緯度経度各10度毎のグリッドについて、グリッド内すべてのデータの平均値を算出し、さらに観測値が全く得られなかったグリッドについては積算降下量/土壌中蓄積/海水中蓄積量とGPCP年間降水量との相関により推定を行った。

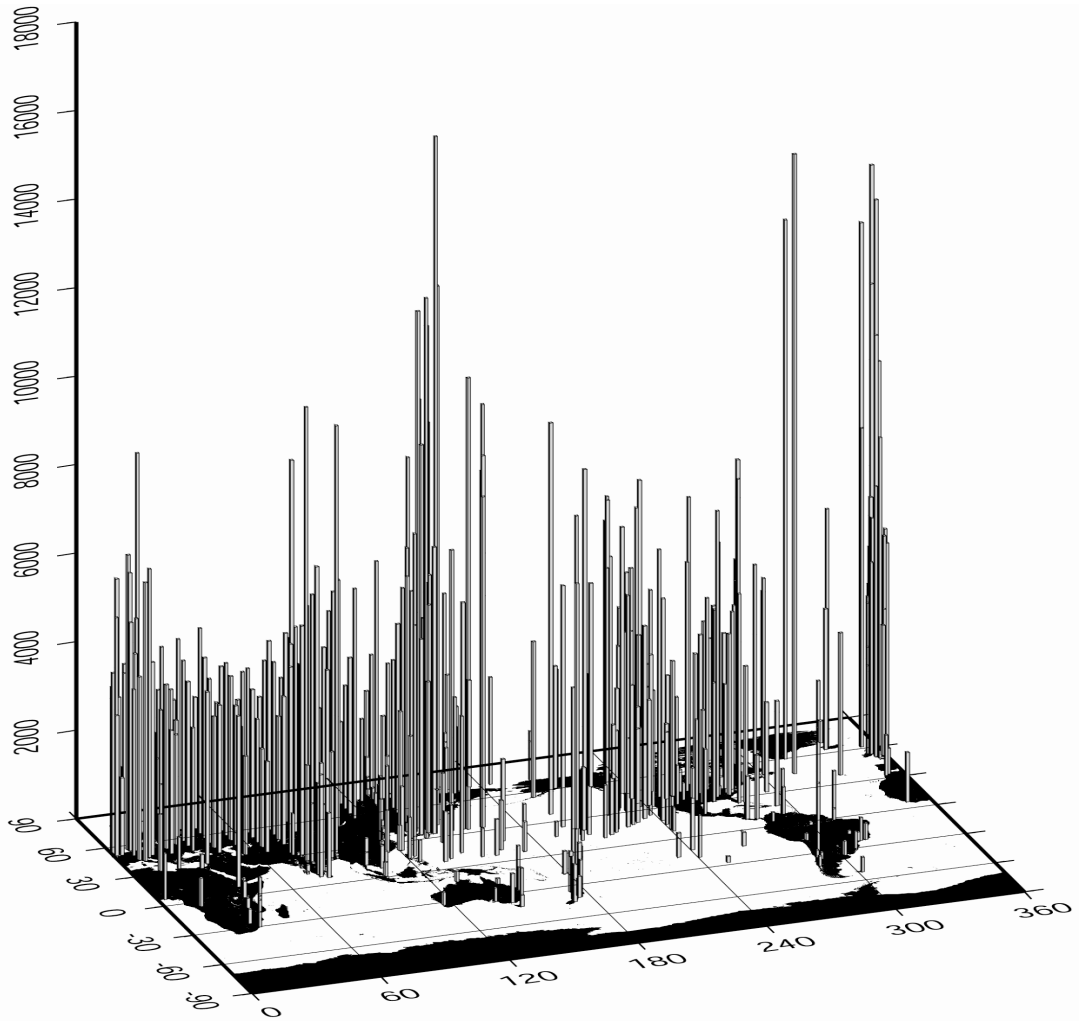
南緯40度以南では空白地帯が多く、積算降下量/土壌中蓄積/海水中蓄積量とGPCP年間降水量との相関により空白グリッドを埋められなかったが、南緯40度から北緯80度までについてはすべてのグリッドで値が得られた。北半球全部を積算すると約770PBq(暫定値)となる。この内、北太平洋と北大西洋を合わせて約500PBqが海洋へ残り、約270PBqがユーラシア大陸と北米大陸に降下したと推定される。また、過去に報告されている全球で730PBq(UNSCEAR2000から求めた値)とする値を北半球だけですでに超えてしまう。このことから、過去の全球表面への降下量は再評価する必要があることがわかった。

〔掲載論文〕

Hirose, K., M. Aoyama, Present background levels of surface ^{137}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}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}Cs water column inventory in the North Pacific since the 1960s, *Journal of Environmental Radioactivity*, 69, 107-117, 2003.



Decay corrected cumulative deposition/inventory in water column and inventory in soil column in the world at 1970. (Bq m^{-2})

7．日本の主要河川水中の人工放射性核種

地球化学研究部では 1960 年代から河川水中の天然放射性核種(ウラン、トリウム、ラジウム)の濃度の測定を行ってきた。その成果は 1964 年に報告されている。

人工放射性核種としては、1973 年に日本の主要河川水中のプルトニウム濃度の測定結果を報告している。この報告は日本の河川水中のプルトニウム濃度としては先駆的なデータである。この研究の中で、降水や降下塵により地表に落下したプルトニウムは、土壌粒子(あるいは、そこに含まれる有機物)に吸着して、容易には流水により溶脱しないことを明らかにすることができた。その結果を支持するデータを 1981 年にも報告している。

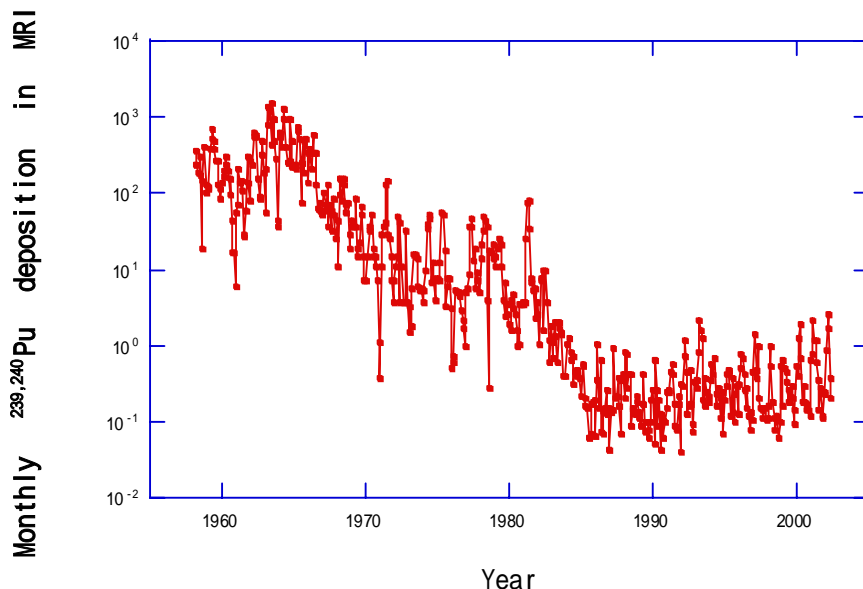
チェルノブイリ原子力発電所事故に伴う放射性フォールアウトの結果、河川水中の¹³⁷Cs 濃度の増加とともに¹³⁴Csが検出され、フォールアウトの影響が河川水にも現れたことがわかった。

8 . 大気降下物及び海水中のプルトニウム

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}Cs や ^{90}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、線測定のための技術的研究は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ている。

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}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、上層大気圏で燃焼し、 ^{238}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}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}Cs 、 ^{90}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}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 $^{238}\text{Pu} / ^{239,240}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Pu} / ^{239,240}\text{Pu}$ 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}Cs や ^{90}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。降下物中のプルトニウムについては、1945年から1997年までの総合的まとめを本の一部として2001年に出版した。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わかってきた。



気象研究所では、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、南太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、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}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}Cs は、表層で濃度が高く、深さとともに減少し、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。この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ている。また、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 4 年)も明らかにすることができた。さらに、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。

〔掲載論文〕

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.

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

代表的な原子炉事故として、1957 年の英国のウィンズケール原子力発電所(Stewart et. al., 1958)、1979 年の米国のスリーマイルアイランド原子力発電所及び 1986 年の旧ソ連のチェルノブイリ原子力発電所を挙げることができる。大気圏核実験とは異なる放射能の大気中への放出過程の中で、規模が最も大きく、しかも詳細な研究が行われたはチェルノブイリ発電所事故である。

1986 年 4 月 26 日、旧ソ連（現ウクライナ）のチェルノブイリ原子力発電所で深刻な事故が起こり、多量の放射性物質が大気中に放出された。放射性物質の放出は 5 月 5 日まで続いた。この間に約 1850PBq (50MCi) の希ガスと同量の放射能が放出されたと推定されている。

気象研究所においても、チェルノブイリ原子力発電所由来の放射能の詳細な時間変化及び存在状態を知るための試料採取を行った。また、日本全域での空間的な分布を知るために気象庁の放射能観測網に依頼して、試料採取を行った。放射能測定は、当初迅速に結果をだす目的でガンマ線測定を主に行い、その後⁹⁰Sr及びPuを測定した。5 月 3 日には、事故現場から約 8,000km離れた日本でも初めてチェルノブイリ原子力発電所由来の放射能が観測された。大気中の放射能は急速に増加し¹³⁷Csでみると、つくばでは 5 月 5 日には極大になった。その後、やや放射能が減少した後、5 月 9 日には 5 月 5 日とほぼ同じレベルまで大気の放射能は増加した。その後、徐々に減少し、5 月 25 日に第 2 のピークが見られた後、6 月に入ると大気中の放射能レベルは急速に減少した。

日本の 5 地点（札幌、仙台、東京、大阪、福岡）の地表 大気中の¹³⁷Cs濃度変化から判断すると、チェルノブイリ原子力発電所由来の放射能は 5 月 3 日の時点で日本の北部の北海道及び東北地方に最初に到達し、その後関東、関西及び九州地方にも到達している。5 月の¹³⁷Cs月間降水量は前月に比べ約 4 桁増加し、観測史上最も高い¹³⁷Cs月間降水量を観測した 1960 年代前半と同程度であった。チェルノブイリ原子力発電所由来の放射能の影響は、日本を含め北半球の中緯度より北側のほとんどの地域に及んだ。

1997 年 3 月 11 日に動力炉・核燃料開発事業団（動燃）東海事業所「アスファルト固化処理施設」で火災・爆発事故が発生した。その事故により大気中に放出された放射性物質が、水戸、大洗及びつくばで採取した大気浮遊塵の試料から検出された。確認されているのは放射性セシウムのうち¹³⁷Csが上記 3 地点で、大洗及びつくばでは¹³⁴Csも確認されている。気象研究所では、金沢大学低レベル放射能実験施設と協力して、つくばで採取した事故後数日間の大気浮遊塵試料中からも継続して¹³⁷Csを検出した。このことは、事故により大気中に放出された放射性物質が事故後数日間にわたってつくば周辺に滞留していたことを示している。3 月 17 日以降は、つくばで採取する大気浮遊塵からは放出された放射性物質は検出できなくなった。また、つくば及び東京（千代田区大手町）の降水試料（3 月分）の測定を行った結果、¹³⁷Csは検出されたものの、過去の大気中核実験由来の¹³⁷Csの値と比較すると変動の範囲内であり、事故由来の放射性セシウムは降水によってはほとんど地表に落下しなかったと思われる。

こうした観測事実から事故由来の放射性物質の挙動を検討するため、数値モデルによるシミュレーションを行った。放出量は 1GBqとして計算した。事故により大気中に放出された放射性物質は、事故地点より南から南西の方角に運ばれて、数時間の間に茨城南部、千葉北部、東京東部、埼玉東部に広がった。12 日 3 時頃から東に方向を変え、房総半島を超えていったん太平洋側に流れ出していく。その後 12 日 15 時頃から内陸の方向に入りだし、13 日早朝にかけて関東平野北部に広がっていく。3 月 14 日には、大気中の¹³⁷Cs濃度はすでに $0.5 \mu\text{Bqm}^{-3}$ のレベルに戻っている。数値シミュレーションによると、通過した空気塊の¹³⁷Cs濃度の最高は約 $1000 \mu\text{Bqm}^{-3}$ である。その後いったん事故以前の濃度まで下がっているが、12 日深夜から 13 日明け方にかけて再び上昇している。3 月 14 日には、大気中の¹³⁷Cs濃度はすでに $0.5 \mu\text{Bqm}^{-3}$ のレベルに戻っている。

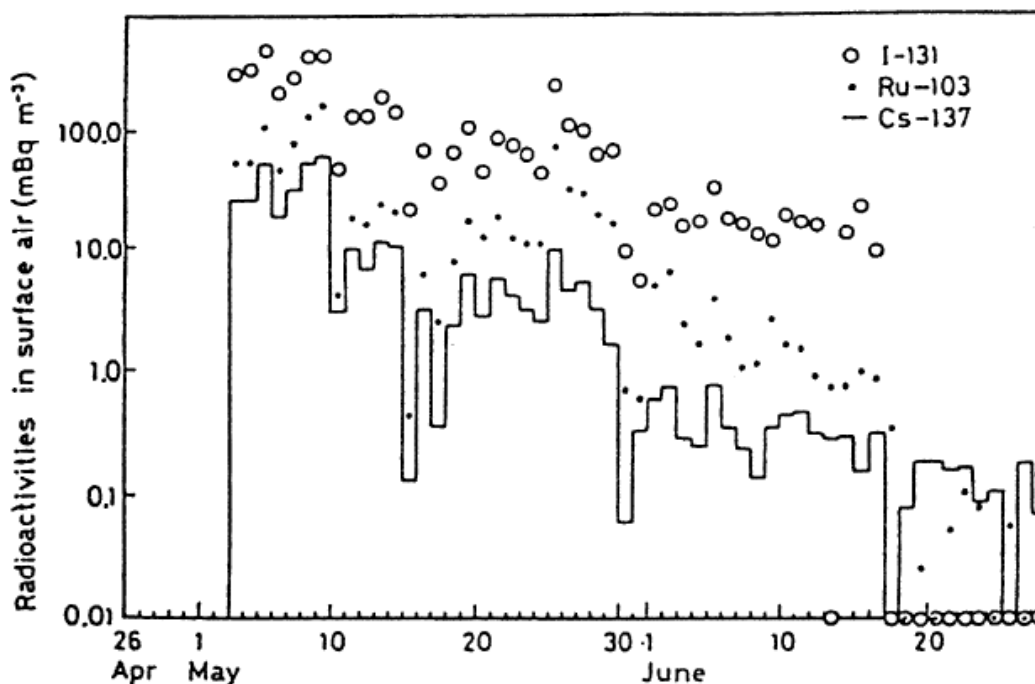
数値シミュレーション結果と観測値と比較すると、放射能雲が計算領域の外にでてしまったためにつくばでの 3 月 13 日 10 時から 3 月 17 日 10 時までの観測値と計算値には大きな違いがあるが、それを除くとよく一致している。¹³⁷Csの放出総量の仮定が現実とそう大

きくは異なっていないことを意味している。観測値の得られている地点が、関東平野の東に片寄っているので、数値シミュレーションにより得られた濃度のみを、つくばを中心に東海村を北東の角とする正方形の残りの3つの角にあたる地点について調べた。つくばから南東約60kmの千葉県八日市場市での濃度の変化は、つくばでの変化と基本的には同様であり、最初南から南西に運ばれた影響で12日明け方から濃度が上昇し、約 $100 \mu\text{Bqm}^{-3}$ となっている。その後つくばと同様に、事故以前の濃度まで下がっているが、12日午後から12日深夜にかけて再び上昇している。つくばから北西の栃木県栃木市では12日昼ごろと12日深夜に $10\text{-}20 \mu\text{Bqm}^{-3}$ 程度の濃度となっている。つくばから南西の東京都豊島区では、約 $1 \mu\text{Bqm}^{-3}$ 程度の濃度上昇が12日に3回見られる。

茅野ら(1977)はSPEEDI高度化モデルをつかい、「低濃度ではあるが分布の端につくばが含まれており、気象研で測定された ^{137}Cs が事故起因である可能性は高い。」としている。また、彼らの計算によると、つくばへの放射性物質の到着時刻は12日朝5時頃となり、そのときの濃度は「 ^{137}Cs の放出総量が 1GBq という本数値シミュレーションの仮定」を彼等の結果にあてはめると約 $600\text{-}1300 \mu\text{Bqm}^{-3}$ となる。つくばへの放射性物質の到着時刻には違いがあるが、定性的には2つの数値シミュレーションの結果は一致している。

〔掲載論文〕

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.



List of publications

publications

Papers submitted

1. 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 the Radioactivity Research*, accepted.
2. Aoyama, M., K. Hirose, Artificial Radionuclides database in the Pacific Ocean: Ham database, *The scientific world*, submitted.

2003

1. Hirose, K., M. Aoyama, Analysis of ^{137}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*, 50,2701-2711, 2003.
5. Tsumune, D., M. Aoyama, K. Hirose, Behavior of ^{137}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}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}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}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. Kim, C.K., C.S. Kim, B.U. Chang, S.W. Choi, C.S. Chung, G.H. Hong, K. Hirose, H.B.L. Pattersson, $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratios in the bottom sediments of the NW Pacific Ocean, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 258(2), 265-268, 2003.

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}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}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}Sr and ^{137}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}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}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}Cs data, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 22, 3731-3734, 2000
5. Aoyama, M, K. Hirose, T. Miyao, Y. Igarashi, Low level ^{137}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}Kr and ^{133}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 ⁹⁰Sr 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. H.B.L. Pettersson., 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

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 ¹³⁷Cs and ^{239,240}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 ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs 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.

1995

1. 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 ^{90}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}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 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 ^{137}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}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}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}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}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*, 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, ^{90}Sr and ^{137}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., 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*, 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.

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 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 ^{90}Sr and ^{137}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., XI. Methods for the measurement of radioactivity in sea water, *Annals 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 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.

論文リスト（和文誌） 1954 - 2002

2002

1. 五十嵐康人, ^{90}Sr と ^{137}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.
2. 広瀬勝己, 伊藤導通, 海洋における放射性核種測定とデータベースの構築, 水環境学会誌, 25.202-205, 2002.

2001

1. 五十嵐康人, 大気中の放射性希ガスの精密分析 - 気象研究所における ^{85}Kr 測定機器開発とモニタリング -, ふんせき, 1(1), 35-38, 2001.
2. 広瀬勝己, 海洋におけるプルトニウム, 月刊 海洋, 4, 25, 169-174, 2001.

1999

1. 青山 道夫, 大原としまさ, 小村和久, 動燃東海事故による放射性セシウムに関東平野への広がり, 科学, 69, 16-21, 1999.
2. 五十嵐康人, 青山道夫, 宮尾孝, 広瀬勝己, 降水・降下塵中の ^{90}Sr および ^{137}Cs の観測データとその環境挙動研究への利用, JAERI-Conf 99-001 クロスオーバー研究シンポジウム「放射性物質の環境移行研究の新たな展開」報告集, 3, 24-34, 1999.
3. 宮尾孝, 青山道夫, 広瀬勝己, 五十嵐康人, 放射性核種から見た日本海の循環, 海と空, 74(4), 172-77, 1999.

1997

- 五十嵐康人, 青山道夫, 宮尾孝, 廣瀬勝己, 動燃事故に関連して、つくば市で観測された大気中の放射性セシウムについて, Radioisotopes, 9, 46, 645-650, 1997.
- 宮尾孝, 海水放射能で何が分かるか - 日本海の観測結果から -, 気象, 9, 41(9), 4-9, 1997.

1977 ~ 1996 未編集

1976

1. 葛城幸雄, 日本における放射性降下物, 天気, 23, 333-345, 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 ^{90}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.

1969

1. 葛城幸雄, 人工放射性物質"特集 大気化学", 化学の領域, 23, 380-389, 1969.

1967

1. 猿橋勝子, 放射性廃棄物の深海投棄と海水の循環, 原子力工業, 13, 27-31, 1967.

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.
2. 猿橋勝子, 原子力と海洋, 化学教育, 467-472, 1964.

1963

1. 三宅泰雄, 海洋の放射能汚染, 自然, 18, 8月号, 22-27, 1963.
2. 三宅泰雄, 檜山義夫, 原子力船の廃棄物による海洋生物の放射能汚染, 科学, 33, 492-495, 1963.

1962

1. 三宅泰雄, "死の灰"は日本列島にふきだまる(50 メガトン水爆の分析から), 科学朝日, 1月号, 115-119, 1962.
2. 三宅泰雄, フォールアウトの気象学的側面, 天気, 9, 1-6, 1962.
3. 三宅泰雄, 猿橋勝子, 放射能による水の汚染, 水利化学, 23, 1-14, 1962.
4. 三宅泰雄, もし原子力船の事故が起こったら, 科学朝日, 8月号, 102-103, 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, 杉浦吉雄, 亀田和久, 日本近海の海水の放射能について, 日本ユネスコ国内委員会委託 1954 年度海洋資源開発調査報告 (黒潮班), 1955.
3. 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.

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.

研究の歴史

放射能調査研究費以前および、放射能調査研究費での研究

西暦	年度	予算項目	予算項目	課題名	課題名	課題名	課題名	課題名	課題名	課題名
1954	昭和29年									
1955	S30	北太平洋観測(日・米・加)								
1956	S31	北太平洋赤道海域観測(日・米・仏)								
1957	S32	国際地球観測年事業費								
1958	S33	国際地球観測年事業費	放射能調査研究費	放射化学分析(落下塵・降水・海水中の放射性物質の研究)		深海水の循環に関する研究(以下深海水)				
1959	S34		放射能調査研究費	放射化学分析		深海水				
1960	S35	国際原子力機関委託研究	放射能調査研究費	放射化学分析		深海水				
1961	S36	国際原子力機関委託研究	放射能調査研究費	放射化学分析		深海水				
1962	S37	国際インド洋観測(日・米・ソ・英・仏)	放射能調査研究費	放射化学分析		深海水				
1963	S38	国際インド洋観測(日・米・ソ・英・仏)	放射能調査研究費	放射化学分析		深海水				
1964	S39	オレゴン州立大学との共同研究	放射能調査研究費	放射化学分析		深海水				
1965	S40		放射能調査研究費	放射化学分析		深海水	海洋中の放射性廃棄物のモニタリングの測定法に関する研究(以下海洋廃棄物モニタリング)	海水中における放射廃棄物の化学的挙動の研究(以下廃棄物化学的挙動)		
1966	S41		放射能調査研究費	放射化学分析		深海水	海洋廃棄物モニタリング	廃棄物化学的挙動		
1967	S42		放射能調査研究費	放射化学分析		深海水	海洋廃棄物モニタリング	廃棄物化学的挙動		
1968	S43		放射能調査研究費	放射化学分析		深海水	海洋廃棄物モニタリング	廃棄物化学的挙動		
1969	S44		放射能調査研究費	放射化学分析		深海水		廃棄物化学的挙動		
1970	S45		放射能調査研究費	放射化学分析		深海水		廃棄物化学的挙動		
1971	S46		放射能調査研究費	放射化学分析		深海水		廃棄物化学的挙動		
1972	S47		放射能調査研究費	放射化学分析				放射性固体廃棄物の海洋処分に伴う鉛直拡散に関する研究(以下廃棄物鉛直拡散)		
1973	S48		放射能調査研究費	放射化学分析				廃棄物鉛直拡散		
1974	S49		放射能調査研究費	放射化学分析				廃棄物鉛直拡散	大気中におけるKr-85およびH-3挙動と蓄積に関する調査研究(以下Kr-85 / H-3)	
1975	S50		放射能調査研究費	放射化学分析				廃棄物鉛直拡散	Kr-85 / H-3	
1976	S51		放射能調査研究費	放射化学分析				廃棄物鉛直拡散	Kr-85 / H-3	

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}Sr and ^{137}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}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}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}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}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}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}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}Sr and ^{137}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}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}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}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}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 ¹³⁷Cs 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

- Water, Air, and Soil Pollution, Vol.130, 2001, pp 349-354, "Is it Possible to use ^{90}Sr and ^{137}Cs as tracers for the aeolian transport?", Igarashi, Y., M. Aoyama, K. Hirose, T. Miyao, S. Yabuki, © Kluwer Academic Publishers, with kind permission from Kluwer Academic Publishers.
- 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. 日本気象学会: 転載許可 2002年1月11日
- Journal of Atmospheric Chemistry, Vol.17, 1993, pp 61-71, "Wet deposition of radionuclides derived from the Chernobyl accident.", Hirose, K., S. Takatani and M. Aoyama, © Kluwer Academic Publishers, with kind permission from Kluwer Academic Publishers.
- 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}Kr measurement system for continuous monitoring at Meteorological Research Institute, Japan, Journal of Environmental Monitoring, 3, 688-696, 2001, - Reproduced by permission of The Royal Society of Chemistry.
- Miyao, T., K. Hirose, M. Aoyama, Y. Igarashi, Trace of the recent deep water formation in the Japan Sea deduced from historical ^{137}Cs data, Geophys. Res. Lett., 27, 22, 3731-3734, 2000, Copyright 2000 by the American Geophysical Union.
- Journal of Radionuclear Chemistry, Vol.248(3), 2001, pp 789-793, " ^{137}Cs activity in surface water in the western North Pacific.", Aoyama, M., K. Hirose, T. Miyao, Y. Igarashi, P.P. Povinec, © Kluwer Academic Publishers, with kind permission from Kluwer Academic Publishers.
- Journal of Radionuclear Chemistry, Vol.248(3), 2001, pp 785-787, "Temporal variation of ^{137}Cs inventory in the western North Pacific.", Aoyama, M., K. Hirose, T. Miyao, Y. Igarashi, P.P. Povinec, © Kluwer Academic Publishers, with kind permission from Kluwer Academic Publishers.
- Journal of Radionuclear Chemistry, Vol.248(3), 2001, pp 777-783, "Calculation of Artificial Radionuclides in the Ocean by an Ocean General Circulation Model.", Tsumune, D., M. Aoyama, K. Hirose, K. Maruyama, N. Nakashiki, © Kluwer Academic Publishers, with kind permission from Kluwer Academic Publishers.
- Journal of Radionuclear Chemistry, Vol.248(3), 2001, pp 771-776, "Plutonium in seawaters on the western North Pacific.", Hirose, K., M. Aoyama, T. Miyao, Y. Igarashi, © Kluwer Academic Publishers, with kind permission from Kluwer Academic Publishers.
- Reprinted by permission from Nature, Vol No. 321, pp 819-820, 1986, Aoyama, M., K. Hirose, Y. Suzuki and Y. Sugimura, "High level radioactive nuclides in Japan in May." Copyright: Nature Publishing Group.
- Reprinted from APPLIED RADIATION AND ISOROPES, Vol.50, No 1-2, 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.", pp 1063-1073, Copyright (1999), with permission from Elsevier Science.

2004 年（平成 16 年）1 月

編 集：気象研究所地球化学研究部

発 行：気象研究所地球化学研究部

住 所：茨城県つくば市長峰 1 - 1

T E L：029-853-8719

印刷所：(株)松枝印刷