

連載講座

超低レベル放射能測定の実況と展望（第4回）

# 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

青山道夫

Reprinted from  
RADIOISOTOPES, Vol.55, No.7  
July 2006



Japan Radioisotope Association

<http://www.jrias.or.jp/>

## 連載講座



## 超低レベル放射能測定の実況と展望 (第4回)

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<sup>†</sup>

青山道夫

気象研究所地球化学研究部  
305-0052 茨城県つくば市長峰1-1

Key Words : ultralow level radioactivity measurement, cesium-137, fallout, seawater,  
deep water, circulation of oceanic water

## 1. 緒言

気象研究所地球化学研究部では、1954年以來50年以上にわたり、人工放射能による大気と海洋における環境汚染の実態を把握するための観測を行ってきた。更に、大気と海洋における物質輸送のトレーサとして人工放射能の研究を実施してきた<sup>1)-3)</sup>。この長期にわたる観測と研究の結果、大気と海洋における環境放射能について、世界的に類を見ない貴重な時系列データを提供すると共に、様々な気象学・海洋学的発見をもたらしている。また、この間の研究成果を200編以上の論文として内外の学術雑誌で公表している<sup>4)</sup>。

日本における環境放射能研究は、1954年3月1日に米国がビキニ環礁で行った水爆実験により、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)による被ばくを受けた事件が契機となって始め

られた。当時の中央気象台地球化学研究室(現気象研究所地球化学研究部)は、環境の放射能を分析・研究できる日本で有数の研究室であり、三宅泰雄の指導のもと、大気と海洋における人工放射能汚染の調査・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北太平洋全域に及ぶ海洋の放射能汚染、更に成層圏を経由しての日本への影響など、核実験が行われた地域の近傍にとどまらず人工放射能汚染が地球全体へ拡大している実態を明らかにすることができた<sup>5)-8)</sup>。1958年から、放射能調査研究費による「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地点で、人工放射性核種(<sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs)の分析を実施し、日本全土における人工放射能の研究を行ってきた<sup>9), 10)</sup>。これらの気象庁11地点における観測は、2006年3月に終了した。

大規模大気圏核実験が数多く行われた1960年から、1980年10月26日の中国第26回核実験の頃までは、地表大気中及び降水中の<sup>137</sup>Csや<sup>90</sup>Srなどの長寿命人工放射性核種のレベルは高かった。そのため、特別な遮蔽をしてバックグラウンドレベルを下げる努力をしなくても、

<sup>†</sup> Present Status and Prospects of Ultralow Level Radioactivity Measurements (4).

Ultralow Level Radioactivity Measurements of Fallout and Deep Sea Samples.

Michio AOYAMA : Geochemical Res. Dep., Meteorological Research Institute, 1-1, Nagamine, Tsukubashi, Ibaraki Pref. 305-0052, Japan.

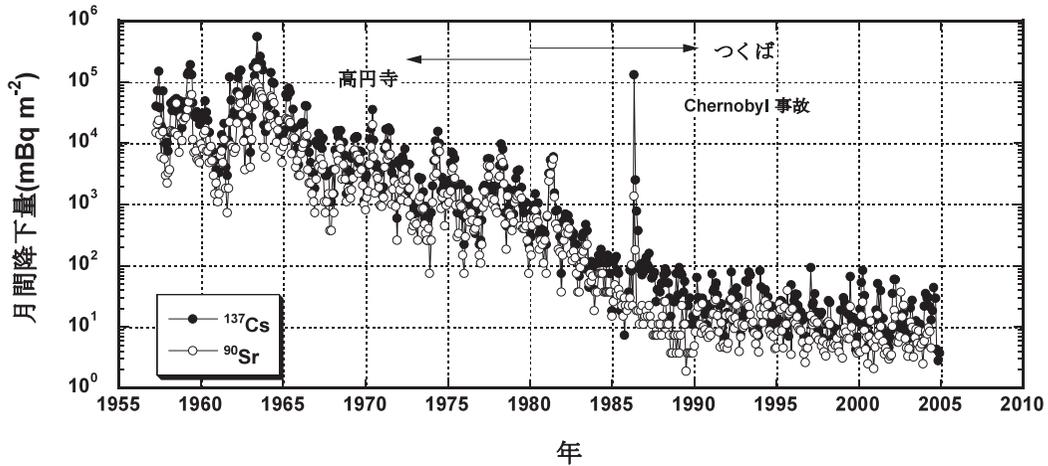


図1 気象研究所における  $^{137}\text{Cs}$  及び  $^{90}\text{Sr}$  月間降下量の長期変動

また  $0.5\text{ m}^2$  の水盤（降水  $1\text{ mm}$  あたり  $0.5\text{ L}$ 、日本の平均的な月間降水量を  $100\text{ mm}$  とすると  $50\text{ L}$  の降水試料が採取できる）による降水の採取、あるいはハイボリュームサンプラによる  $10\,000\text{ m}^3$  の大気浮遊塵の採取で、放射能は計数誤差数%以内で十分可能だった。海洋においても、表層では  $^{137}\text{Cs}$  なら  $10\sim 100\text{ Bq m}^{-3}$  程度のレベルにあり、 $20\text{ L}$  の海水試料で測定可能であった。

海洋中の  $^{137}\text{Cs}$  や  $\text{Pu}$  同位体を測定した 1970 年代の Geochemical Ocean Section Study (GEOSECS)<sup>11)</sup> のような太平洋、大西洋及びインド洋を含む全海洋規模プロジェクトでは、 $200\sim 500\text{ L}$  の大量採水が行われてきた。しかし、海洋深層試料の測定において計数誤差を 30% 未満とし統計的に有意な値を得ている例は稀であった。

本稿においては、大気圏核実験に起源を持つ  $^{137}\text{Cs}$  の大気及び海洋における長期間の濃度変動とその挙動についての研究成果を超低レベル放射能測定との関係に重点をおいて述べる。

## 2. 大気圏における研究

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

から間もなくの 1954 年 4 月に放射性降下物（フォールアウト）の観測を開始した（当初は全  $\beta$  放射能観測のみであった）。月間降水・降下塵中の核種分析は、1957 年から現在に至る約 50 年の間、途切れることなく継続されている。特に気象研究所での月間降下量の測定値は、1960 年代に比べて 5 桁減少しているにもかかわらず、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。測定対象は  $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  及び  $\text{Pu}$  同位体である。フォールアウトは、主として大規模大気圏核実験により全地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 月に最大の月間降下量を示し（ $^{90}\text{Sr}$  約  $170\text{ Bq m}^{-2}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  約  $550\text{ Bq m}^{-2}$ ）、その後徐々に低下した。しかし、1960 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 年に大気圏核実験が中止されたのでようやく低下した（図 1）。

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  $30\sim 50$  日、 $1.0\sim 1.2$  年と求められた。これは粒子状物質（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、人

工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<sup>12)-16)</sup>。これらは成層圏エアロゾルの地表面への輸送について科学的知見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<sup>89</sup>Srも放出されることから、<sup>89</sup>Sr/<sup>90</sup>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<sup>9)</sup>。その結果、各実験の寄与の季節変化が明らかとなった。すなわち、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異なることがわかった<sup>10)</sup>。

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た北半球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、1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及び0.3年とすると、観測結果がよく再現できた<sup>17)</sup>。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、<sup>90</sup>Sr、<sup>137</sup>Cs及びPuの降下量は著しく低下し、試料採取に4m<sup>2</sup>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<sup>18)</sup>、降下量を容易に数値化できなくなった。このため、気象研究所での月間降下量の放射能観測記録は、我が国のみならず世界で最長の記録となっている。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、人工放射能の降下量は再び増大したが、その後減少した。1990年代になり<sup>90</sup>Sr、<sup>137</sup>Csの月間降下量は、ともに数～数十mBq m<sup>-2</sup>month<sup>-1</sup>で推移している。チェルノブイリ事故由来の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となった。したがって、成層圏以外のリザーバーから放射能が供給されていることは明らかであり、その起源は表土と推定されている<sup>19)</sup>。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。五十嵐らは、再浮遊がどこで起きるかについて研究を進め、有力な候補として東アジア大陸で発生する黄砂の可能性が高いことを明らかにした<sup>20)</sup>。黄砂の発生は大陸域の環境変化と関連しており、降下物中の人工放射性核種は大陸域の環境変化の指標となりうるということがわかってきた<sup>21)</sup>。

気象研究所の月間降下量の約50年間の超低レベル放射能測定は、大きなS(シグナル)を得るための「多量の試料採取」と「化学処理による体(容)積と重量の低減」によってもたらされたものである。

1984年に地球化学研究部で環境放射能の研究を開始した筆者は、1m<sup>2</sup>の水盤を使って採取した月間降下物の放射化学分析を担当した。当時は、大気圏核実験としては最後となった第26回中国核実験(1980年10月26日)から数年が経過し、月間降下量は100mBq m<sup>-2</sup>レベルになっていた。大気圏核実験によって成層圏に打ち上げられた人工放射性物質の、成層圏における滞留時間が1年余りであることを考えれば、数年の後には月間降下量が10mBq m<sup>-2</sup>レベルになることは必至であった。気象研究所が使用していた1957年製の約4tの鉄遮蔽を持つ低バックグラウンドのガスフローβ線カウンタでも、「検出下限値以下」という結果としない計測をするには、正味で数mBqは必要である。研究を継続するためにどうするか議論を重ねた結果、下記の方針を決定した。

- 1) 1986年4月から4m<sup>2</sup>の水盤を使用し採取量を4倍にする。
- 2) 4m<sup>2</sup>試料を使っても、月間降下量として測定ができないところまで減少したら、2か

月分あるいは3か月分まとめて測定する。

3) それでも測定できなくなったら、1年分をまとめて測定する。

この方針に従って、4 m<sup>2</sup>の水盤を用意し、1986年4月から本格的な採取を開始した。その後1986年の4月26日に旧ソ連チェルノブイリ原子力発電所事故が発生し、1986年5月の<sup>137</sup>Csの月間降水量が1960年代と同じレベルまで増加した<sup>22)</sup>。

4 m<sup>2</sup>の水盤を使って採取した試料量の増加の影響は、<sup>137</sup>Cs (γ線測定) の場合には試料を乾固した残渣がたまたま50 mLの計測容器に入らなくなる程度であった。しかし、放射化学分離を行ったあと、β線計測を行っていた<sup>90</sup>Sr測定の場合は、放射化学過程における<sup>90</sup>Srの収率が低下するという事態に直面した。これは、極低レベルの測定を行うために、試料量を増加させた場合に起こりうる困難の一つの例であろう。4 m<sup>2</sup>の水盤で採取した月間の降下物から<sup>90</sup>Srを効率よく回収する放射化学分離法の検討は、のちに五十嵐によって行われ、30~50%程度であった回収率が85%を維持できるようになった<sup>23)</sup>。

月間降水量が成層圏滞留時間によって減少せず、前に述べたように「再浮遊」のために横ばい状態を維持することを、当時筆者は予想だにできなかった。全地球規模の長期にわたる核実験起源のフォールアウトを測定していたイギリスや米国では、1990年前後に測定プログラムを中止している<sup>24), 25)</sup>。また、原子放射線の影響に関する国連科学委員会の報告書 (United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation: UNSCEAR)<sup>26) - 28)</sup>では、成層圏滞留時間のみによる降水量の減少を記述しており、いずれにおいても「再浮遊」は想定外のことのようであった。現在でも、月間降水量として測定が可能なレベルを維持しており、複数月分の試料をまとめて測定する事態にはならなかった。

### 3. 海洋環境における研究

1945年以前には全く存在しなかった核実験起源の人工放射性核種が、数十年の間に海洋環境においてどのように振る舞うかを理解するためには、実際に放射能測定を行って挙動に関する知見を得る、あるいは性質が似ている他の元素の挙動から推定する以外に方法はない。また、1945年以前の海洋には人工放射性核種が全く存在していなかったために、これらの核種は海洋の物理的循環、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の一つともなっている。

気象研究所では、日本周辺海域及び太平洋の広域にわたって海水試料の採取を実施し、人工放射能の海洋環境における実態を明らかにしてきた。1960年代後半から1970年代にかけての調査で、海洋表面水中の放射能が北太平洋中緯度に高濃度で分布していることを明らかにし、基本的にはフォールアウトの緯度分布に支配されていることを明らかにした。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わかってきた<sup>29), 30)</sup>。更に、海水中の人工放射性核種の分析法の高度化を実現し、少量の試料での測定を可能にした<sup>31), 32)</sup>。その結果、精密な<sup>137</sup>Cs濃度の鉛直断面を描くことができ、大規模な大気圏核実験から約40年を経過した現在、核実験由来の<sup>137</sup>Csの大部分が、北太平洋の亜熱帯中層に存在していることを明らかにした<sup>33)</sup>。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、地球化学研究部はそれに伴う日本海の放射能調査の実施に参加した。放射性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 (ウラジオストク沖) についての知見を得ることができた<sup>34)</sup>。

#### 3.1 最近の数年間に得られた研究成果

筆者らは、2002年から2005年にかけて組織

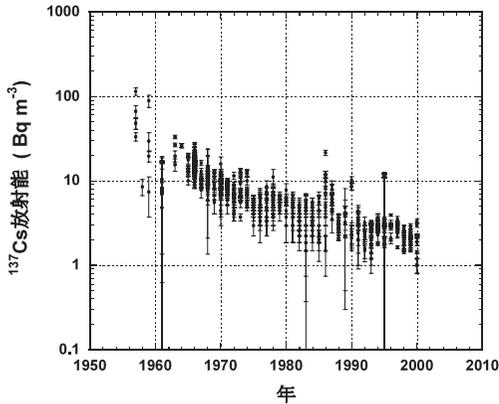


図2 北太平洋高緯度 (40°N-50°N) 海洋表面での $^{137}\text{Cs}$ 濃度の変化量の長期変動

立った海水試料採取を行い、太平洋における $^{137}\text{Cs}$ 、Pu等の長寿命人工放射性核種の濃度分布と蓄積量を評価できる試料採取をほぼ完了した。それらの分析結果をもとに、太平洋における $^{137}\text{Cs}$ 、Pu濃度などの時空間変動を明らかにしつつある。得られたデータの解析から、高緯度域では $^{137}\text{Cs}$ の蓄積量の急速な減少が見られること、及び北太平洋中緯度での中央モード水形成に係わる亜表層での南向き物質輸送が、 $^{137}\text{Cs}$ の西部北太平洋での分布に大きな役割を果たしていることを明らかにした。海洋表面における滞留時間の観点で見たときには、北太平

洋高緯度では滞留時間が14年(図2)であったが、北太平洋高緯度から赤道に向けて見かけの滞留時間が長くなり、赤道では見かけの滞留時間が20～30年となっていた<sup>30)</sup>。この赤道域へかけての滞留時間の増加は、亜表層での南向き物質輸送により比較的高濃度の $^{137}\text{Cs}$ が赤道方向へ輸送されたと考えると説明が可能である。これに対する直接の証拠は、2002年の詳細な観測により見出された。1960年代初頭には、北緯30～50度の表面混合層内で極大を示していた $^{137}\text{Cs}$ が、2002年の観測時には北緯20度付近、深度にして200～500mで極大(図3)を示していた。このことにより、 $^{137}\text{Cs}$ が亜熱帯域に輸送される具体的な過程がわかった。更に、亜熱帯域から赤道域への $^{137}\text{Cs}$ の輸送が、深度にして100～150mで起っていることも明らかにした。

### 3.2 海水試料の極低バックグラウンド測定と試料採取

2章で述べたように、フォールアウトの長期の時系列データを得るための努力は、採取量を増加させ、放射化学分離の収率を高め、計測時間を長くし計数誤差を小さくすること、によって行われてきた。

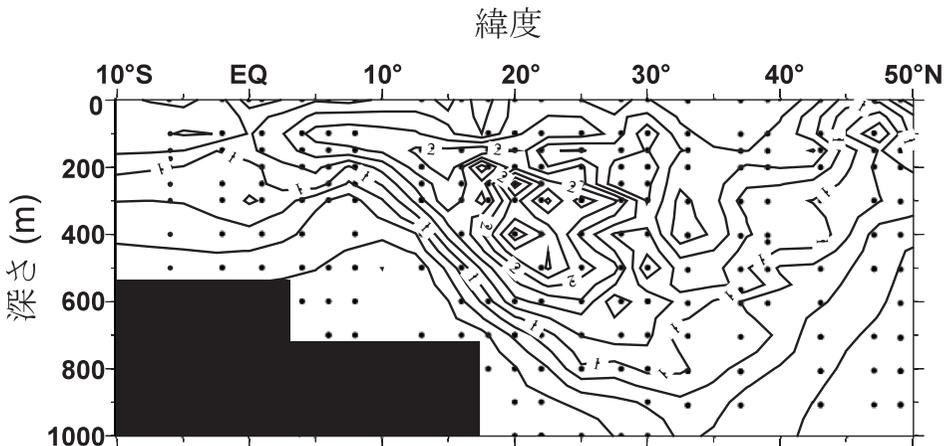


図3 2002年における西部北太平洋東経165度線に沿う断面での $^{137}\text{Cs}$ の分布(単位： $\text{Bq m}^{-3}$ 、等値線間隔 $0.25 \text{ Bq m}^{-3}$ 、●印は各々のデータが存在する緯度と深さを示す)

それに対し、海水での研究を開始した1950年代には、すでに表層で20～100 L、深層では20～500 Lの海水試料が採取されていた。6000 m以上の深さがある大洋の観測点で鉛直分布を知るために、一層あたり100 L採取したとして、変化が大きいと考えられる深さ1000 mまでを200 mごとに5層、それより深いところを500 mごとに10層採水すると、表面の一層を入れて計16層、総量1600 L（海水の密度1.027を考慮すると重量約1.65 t）となる。北太平洋を緯度24度に沿って横断すると、その距離は約13000 kmあり、500 kmごとに採水すると約27点となり、これは総量45 tの海水試料を採取することに相当する。また、100 Lで16層を採取するには、現存する世界で最大の採水能力を持つ研究船をもってしても、少なくとも12時間はかかり、100 L採水器を持ち込むと24～48時間は必要である。

筆者が、つくばの実験室で使用している井戸型Ge検出器は70 cc 1台、280 cc 2台、600 cc 1台という構成であり、 $^{137}\text{Cs}$ の検出下限値は1～数mBq程度である。1960年代の北太平洋中緯度における海洋表層の $^{137}\text{Cs}$ 濃度は数十～100  $\text{Bq m}^{-3}$ であり、1 L (=  $10^{-3} \text{ m}^3$ )の海水を採取して収率100%と仮定すると数十～100 mBqの $^{137}\text{Cs}$ が測定対象となる。フォールアウトが1960年代から現在までの間に5桁の減少を示しているのと異なり、海洋表層ではもっとゆっくりとした減少を示す。見かけの半減時間が14年程度の場合、50年間の濃度の減少は約1桁である。2000年頃の表層の $^{137}\text{Cs}$ 濃度は1～2  $\text{Bq m}^{-3}$ である。したがって10 Lの海水を採取すれば10～20 mBqの $^{137}\text{Cs}$ が測定対象として得られる。10～20 mBqあれば井戸型Ge検出器でなくとも通常のGe検出器で測定できる。

しかし海洋深層においては、1970年代のGEOSECSにより得られている深層の $^{137}\text{Cs}$ の値は、その計数誤差が数十～100%と大きく<sup>35)</sup>、計数誤差の3倍を超えるものを有意とすればデ

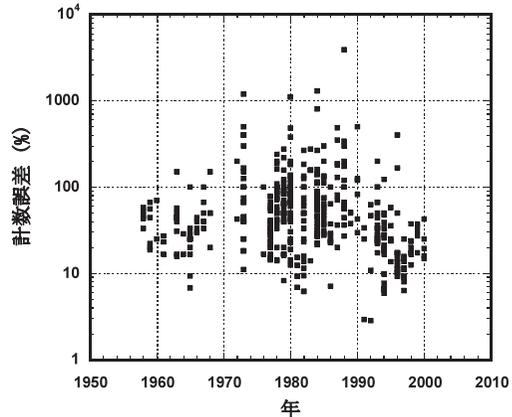


図4 2000 mより海洋深層での過去の観測値に付与されている計数誤差

ータのほとんどが使えなくなる（図4）。1990年代に入り、大量採水（100～300 L）を行って計測したにもかかわらず、 $0.1 \text{ Bq m}^{-3}$ 以下と記されている<sup>36)</sup>ものや、20 Lの試料を採取して通常のGe検出器で測定しているのに計数誤差が30%を超える<sup>37)</sup>例も多く見られる。

環境放射能のモニタリングが目的であるならば、深層での $^{137}\text{Cs}$ の値が測定下限値以下あるいは有意でないという結果も許容されるが、 $^{137}\text{Cs}$ をトレーサ利用して海洋の研究を行う場合には、数値化され不確かさが付与されていないデータは役に立たない。

海洋深層の試料の量を増加させ1試料1000 L（約1 t相当）にすれば、 $0.01 \text{ Bq m}^{-3}$ としても10 mBqの測定試料が得られるので、通常の実験室でも測定可能となる。しかし、1試料100 Lとした例で示したように、太平洋横断27点で総量が45 tにもなるので、試料量を10倍に増加することは、海水試料を450 t持ち帰ることになる。貨物船ならもちろん輸送可能な量ではあるが、研究船で持ち帰れる海水試料の量は、現実的には1500 tクラスの研究船で20 t程度、8000 tクラスの研究船でも100 t程度が最大である。したがって、海洋深層試料の場合には、採取量を増やしてSを大きくし低バックグラウンド測定するのは、輸送する海水試料の

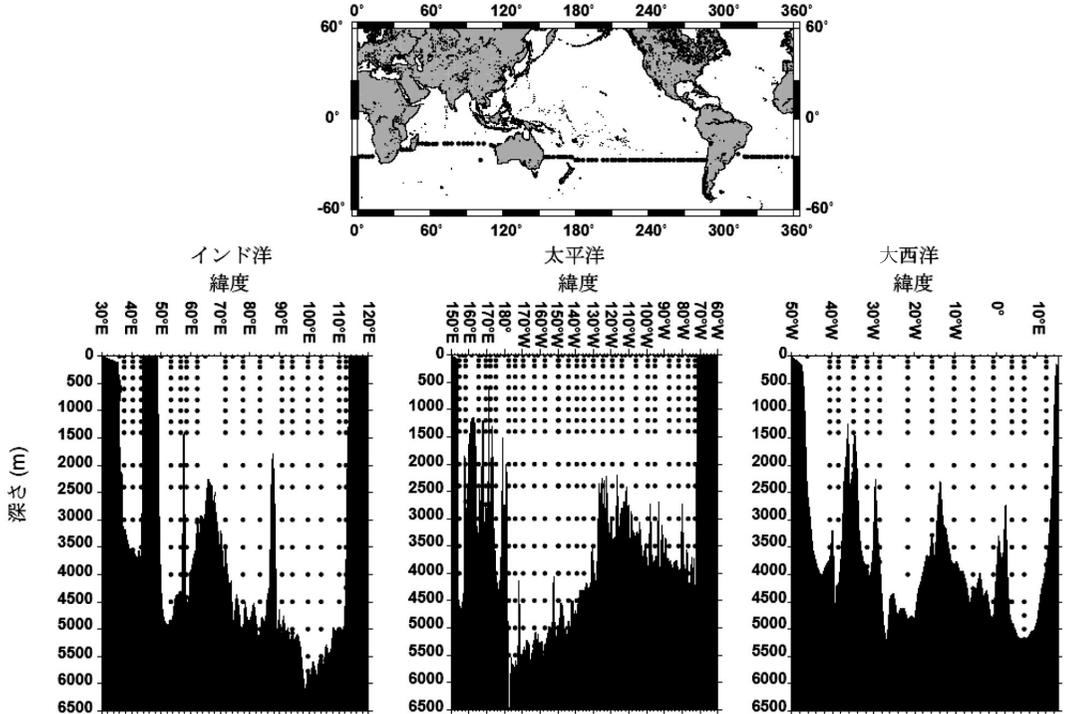


図5 「みらい」南半球世界一周航海（2003～2004）航路及び海水試料採取場所と深さ

量や、持ち帰ったのち海水から  $^{137}\text{Cs}$  や  $^{90}\text{Sr}$  を分離する手間が著しく増加することを考えると事実上不可能である。

### 3.3 尾小屋地下測定室での海洋深層試料の測定

そこで筆者は、海水試料から抽出した  $^{137}\text{Cs}$  を金沢大学の尾小屋地下測定室の極低バックグラウンド検出器で測定することにした。2001年から5年計画で行っている「海洋環境における放射性核種の長期挙動に関する研究」(文部科学省放射能調査研究費)において、極低バックグラウンド Ge 検出器を尾小屋地下測定室に整備し、海洋深層の極微量の  $^{137}\text{Cs}$  の測定を行い、その値を正確に決定することを開始した。

筆者は、海洋研究開発機構(Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology: JAMSTEC) が2003～2004年に行った地球研究船「みらい」による南半球世界一周 BEAGLE 航

海において、 $^{137}\text{Cs}$  などの人工放射能の測定試料を採取する機会を得た<sup>38)</sup>。基本的には、海洋物理・化学の試料採取をした残り水をもらうことで採取計画を作成し、更に12Lの採水器による追加採水の機会が場合により与えられた。採取できた残り水の平均的な量は5～7Lであり、追加採水できた層では試料量は約20Lとなる。BEAGLE 航海では、56測点800試料(総量22t)を持ち帰った。図5に実際の試料採取地点と深さを示す。航路に沿う全ての海盆と水塊をカバーした採水となっている。

これらの試料の中で、1000mより浅い試料については気象研究所の実験室で測定し、深層については尾小屋地下測定室で測定している。小村和久教授の協力のもと、リンモリブデン酸アンモニウム (AMP) 4gを使って調製した試料では、尾小屋地下測定室で0.5mBq程度まで測定できた。

ある程度予測されていたことではあるが、少

ない海水試料での深層試料の測定は困難であった。当初は計数誤差を小さくするために、二つの試料（例えば2000 mと2400 m）を合わせて計測する試みも行い、計数誤差の小さい信頼性のある測定値が得られることも確認した。

しかし海洋構造との関係を議論するには、鉛直分解能が良い方がデータとして優れている。本シリーズの小村和久の解説<sup>39)</sup>にもあるように、<sup>40</sup>Kの妨害を小さくできれば検出下限値を小さくできる。このため、AMPをアルカリで再溶解したのち塩化白金酸セシウムとして回収し、更に小さな体積でかつカリウムの含有量が小さい測定試料を調製し<sup>40)</sup>、それを測定して検出下限値を下げた。

<sup>40</sup>Kによるバックグラウンドの上昇が数分の1から10分の1に低減されたので、尾小屋での検出下限値を0.1 mBq以下まで低くすることができた。

本稿の執筆時点で、数個の塩化白金酸セシウムの形となっている海洋深層試料の測定を完了しており、2層を合わせることなしに海洋深層の試料が測定できる見通しである。

### 3・4 海水から<sup>137</sup>Csの抽出

近年、AMPによる<sup>137</sup>Csの海水からの抽出において収率が不安定となる、あるいは極端に低くなる問題が生じていた。筆者らは、AMPによる<sup>137</sup>Csの海水からの抽出方法を改善する実験を行い、「最適なpH」及び「安定Csの添加量とAMPの量の間に当量関係があること」を見出した<sup>32)</sup>。これにより、海水試料数L程度ではほぼ100%の収率、20～100 Lでも90%前後の収率を安定して得ている。

## 4. まとめ

大気と海洋における大気圏核実験に由来する人工放射能の長期観測により得られた知見について概観した。更に、採取試料の量、そこに含まれる人工放射能の濃度及び放射化学分離の収率の積により決まる正味の放射エネルギーと計測条件

を制御することにより、測定結果を検出下限値以下とすることなく、継続して有意な値を出し続けるために、筆者らが行ってきた数々の工夫を、時間の経過に沿って述べた。

筆者らの試料の正味の放射エネルギーは、通常の実験室では計測できない「極低レベル」であるため、尾小屋地下測定室での計測に踏み切った。海洋深層の試料の測定例は、海洋学の分野での極低レベル測定の世界で最初の例である。<sup>137</sup>Csのような人工放射能をトレーサとして使用する全海洋規模の研究において、過去には一試料あたり100～500 Lという大量採水が必要であり、試料採取を行うにあたり、深度方向に細かく採取することや採取地点間の距離を短くして空間分解能を上げ、詳細な分布を知るための試料採取などはまったく考えられない状態であった。しかし、極低バックグラウンド測定により状況は一変した。研究船を長時間停止させ、膨大な労力と時間をかけて大量採水を行うというスタイルから、3・3で述べたように12 Lのニスキンボトルの本来の海洋物理や海洋化学研究用の試料を採取したあとの「残り水数L」があれば良いというスタイルとなった。「残り水数L」で計測可能となったことによる<sup>137</sup>Csのトレーサ価値は非常に大きくなり、現実的となった。「極低バックグラウンド測定」が、地球環境研究に一つのブレイクスルーをもたらしたといえる。将来「超低バックグラウンド」測定が可能となり、海洋深層の<sup>137</sup>Csが1 Lあるいは100 mLで測定できるようになるなら、<sup>137</sup>Csのトレーサとしての価値はますます大きくなる。

筆者個人としては、研究船が日本の港に帰ってくるたびに5 tコンテナや10 t車を、場合によっては何台も手配して海水試料の引き取りにいく作業から解放されることになる。これも「超低バックグラウンド」測定の現実のご利益である。

本稿作成にあたり気象研究所地球化学研究部廣瀬勝己部長及び金沢大学小村和久教授から貴

重なる意見を頂いた。また気象研究所地球化学研究部 五十嵐康人主任研究官からは大気圏における測定の現状や課題などについての情報と意見を頂いた。ここに記して感謝します。

## 文 献

- 1) 葛城幸雄, 死の灰のゆくえ—放射能を追って 30 年, 新草出版, 東京(1986)
- 2) Hirose, K., Igarashi, Y., Aoyama, M. and Miyao, T., Long-term trends of plutonium fallout observed in Japan, Plutonium in the Environment-Edited Proceedings of the Second Invited International Symposium(ed. Kudo, A.), pp.251-266, Elsevier Science, Netherlands(2001)
- 3) 青山道夫, 廣瀬勝己, 五十嵐康人, 宮尾 孝, 降水・落下塵中の人工放射性核種の分析法およびその地球化学的研究, 気象研究所技術報告, 第 36 号(1996)
- 4) 気象研究所地球化学研究部, 環境における人工放射能の研究 2005, ISSN 1348-9739(2005)
- 5) Miyake, Y. and Saruhashi, K., Distribution of man-made radio-activity in the North Pacific through summer 1955, *J. Mar. Res.*, **17**, 383-389 (1958)
- 6) Saruhashi, K., Katsuragi, Y., Kanazawa, T., Sugimura, Y. and Miyake, Y.,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the Pacific waters, *Rec. Oceanogr. Works Japan*, **13**, 1-15(1975)
- 7) Miyake, Y., Saruhashi, K., Katsuragi, Y. and Kanazawa, T., The peak in radioactive fallout in the temperate zone of the northern hemisphere, *J. Radiat. Res.*, **3**, 148-152(1962)
- 8) Miyake, Y., Saruhashi, K., Katsuragi, Y., Kanazawa, T. and Tsunogai, S., Deposition of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in Tokyo through the end of July 1963, *Pap. Met. Geophys.*, **14**, 58-65(1963)
- 9) Katsuragi, Y., A study of  $^{90}\text{Sr}$  fallout in Japan, *Pap. Met. Geophys.*, **33**, 277-291(1983)
- 10) Katsuragi, Y. and Aoyama, M., Seasonal variation of Sr-90 fallout in Japan through the end of 1983, *Pap. Met. Geophys.*, **37**, 15-36(1986)
- 11) Bowen, V.T., Noshkin, V.E., Livingston, H.D. and Volchok, H.L., Fallout radionuclides in the Pacific Ocean: Vertical and horizontal distributions, largely from GEOSECS stations, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **49**, 411-434(1980)
- 12) 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)
- 13) 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)
- 14) 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)
- 15) 三宅泰雄, 葛城幸雄, 最近の  $^{90}\text{Sr}$  降下物の起源, 天気, **21**, 639-644(1974)
- 16) 葛城幸雄, 日本における放射性降下物, 天気, **23** (7), 333-345(1976)
- 17) Hirose, K., Aoyama, M., Katsuragi, Y. and Sugimura, Y., 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)
- 18) Igarashi, Y., Aoyama, M., Hirose, K., Miyao, T., Nemoto, K., Tomita, M. and Fujikawa, T., Resuspension: Decadal monitoring time series of the anthropogenic radioactivity deposition in Japan, *J. Radiat. Res.*, **44**, 319-328(2003)
- 19) Igarashi, Y., Aoyama, M., Hirose, K., Povinec, P.P. and Yabuki, S., What anthropogenic radionuclides ( $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$ ) in atmospheric deposition, surface soils and Aeolian dusts suggest for dust transport over JAPAN, *Water, Air, Soil Pollut.: Focus*, **5**, 51-69(2005)
- 20) 五十嵐康人,  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を用いたダスト輸送過程と再飛散, エアロゾル研究, **12**, **17**(4), 252(2002)
- 21) Hirose, K., Igarashi, Y., Aoyama, M., Kim, C.K., Kim, C.S. and Chang, B.W., Recent trends of plutonium fallout observed in Japan: plutonium as a proxy for desertification, *J. Environ. Monit.*, **5**, 302-307(2003)
- 22) Aoyama, M., Hirose, K., Suzuki, Y. and Sugimura, Y., High level radioactive nuclides in Japan in May, *Nature*, **321**, 819-820(1986)
- 23) 五十嵐康人未発表データ
- 24) Playford, K., Toole, J. and Sandars, T., Radioactive Fallout in Air and Rain: Results to the End of 1994(HMSO)DOE/RAS/95.010(1995)
- 25) Larsen, R.J., Worldwide Deposition of  $^{90}\text{Sr}$  through 1982, EML-430(1984)

- 26) United Nations, "ANNEX C", Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000 Report to the General Assembly, with scientific Annexes, I, United Nations sales publication E.00.IX.4. United Nations, New York (158-291)
- 27) United Nations, Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1998 Report to the General Assembly, with Annexes, United Nations sales publication E.88.IX.7. United Nations, New York (1998)
- 28) United Nations, Ionizing Radiation : Sources and Biological Effects. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1982 Report to the General Assembly, with Annexes, United Nations sales publication E.82.IX.8. United Nations, New York (1982)
- 29) Aoyama, M. and Hirose, K., Temporal variation of  $^{137}\text{Cs}$  water column inventory in the North Pacific since the 1960s, *J. Environ. Radioact.*, **69** (1-2), 107-117 (2003)
- 30) Hirose, K. and Aoyama, M., Analysis of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  concentrations in surface waters of the Pacific Ocean, *Deep-Sea Research II*, **50**, 2675-2700 (2003)
- 31) Aoyama, M., Hirose, K., Miyao, T. and Igarashi, Y., Low level  $^{137}\text{Cs}$  measurements in deep seawater samples, *Appl. Radiat. Isot.*, **53**, 159-162 (2000)
- 32) Hirose, K., Aoyama, M., Igarashi, Y. and Komura, K., Extremely low background measurements of  $^{137}\text{Cs}$  in seawater samples using an underground facility (Ogoya), *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **263**, 349-353 (2005)
- 33) Aoyama, M., Hirose, K., Komura, K. and Nemoto, K., Temporal variation of  $^{137}\text{Cs}$  Distribution and Inventory along 165 deg. E in the North Pacific since 1960s to the Present, International Conference on Isotopes in Environmental Studies-Aquatic Forum 2004, BOOK OF EXTENDED SYNOPSES, IAEA-CN-118, 256-257 (2004)
- 34) Miyao, T., Hirose, K., Aoyama, M. and Igarashi, Y., Trace of the recent deep water formation in the Japan Sea deduced from historical  $^{137}\text{Cs}$  data, *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 22, 3731-3734 (2000)
- 35) Livingston, H.D., Bowen, V.T., Casso, S.A., Volchok, H.L., Noshkin, V.E., Wong, K.M. and Beasley, T.M., WHOI-85-19 (1985)
- 36) Povinec, P.P., Livingston, H.D., Shima, S., Aoyama, M., Gastaud, J., Goroncy, I., Hirose, K., Huynh-Ngoc, L., Ikeuchi, Y., Ito, T., Rosa, J.L., Kwong, L. L.W., Lee, S.H., Moriya, H., Mulrow, S., Oregioni, Y., Pettersson, H. and Togawa, O., 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)
- 37) Annual Reports of Radioactivity Survey for 1980 [in Japanese] Hydrographic Department, Maritime Safety Agency, Ministry of Transport (1981)
- 38) Aoyama, M., Fukusawa, M., Hirose, K., Mantoura, R.F.C., Povinec, P.P., Kim, C.S. and Komura, K., Southern Hemisphere Ocean Tracer Study (SHOTS), International Conference on Isotopes in Environmental Studies - Aquatic Forum 2004, BOOK OF EXTENDED SYNOPSES, IAEA-CN-118, 200-221 (2004)
- 39) 小村和久, 超低レベル放射能測定の実況と展望 (第2回) 地下測定室紹介と超低レベル放射能測定による最近の成果, *RADIOISOTOPES*, **55**(5), 293-306 (2006)
- 40) Aoyama, M. and Hirose, K., Radiometric determination of anthropogenic radionuclides in seawater samples, submitted (2006)