

# 大気化学的知見を用いた大気環境保全技術の開発への貢献

—2018年度堀内賞受賞記念講演—

鶴 田 治 雄\*

## 1. はじめに

このたび、日本気象学会の2018年度堀内賞という大変名誉な賞を賜りまして、身に余る光栄でありますとともに、推薦および選考して下さった方々に心から感謝致します。堀内賞の対象分野は、「主に気象学の境界領域・隣接分野あるいは未開拓分野における…」とのことで、これまで指導して下さった、また、一緒に研究をしてきた、さらに、協力して下さいました気象と大気汚染分野および、農業と微生物や森林などの陸域生態系分野、および放射化学分野など多くの方々に、深く感謝いたします。受賞の対象となった研究は主に、福島第一原子力発電所事故後初期の放射性物質の動態解明と、農耕地からの温室効果ガスのフラックス測定と発生抑制技術の開発、およびアジアにおける大気汚染の実態解明ですので、これらを中心に紹介させていただきます。

## 2. 東京電力福島第一原子力発電所事故後初期の放射性物質の動態解明

### 2.1 SPM 計使用済みテープろ紙の測定に至る経緯

#### 2.1.1 放射性セシウムの測定

2011年3月11日午後に関東大震災が発生したとき、私は千葉県柏市にある東京大学大気海洋研究所の中島映至教授の研究室に在籍しており、アジアの大気

汚染について観測的研究に従事していました(鶴田・矢吹 2008)。この大震災に伴って東京電力(東電)福島第一原子力発電所(以下、本文では原発、図ではFD1NPPと省略します)が停止して事故が起こり、放射性物質が環境中に放出されました。そこで、中島教授らが中心となって、日本地球惑星科学連合と日本放射化学会および日本地球化学会などが、学問分野を越えて共同して、東日本を中心に大気中の放射性物質の測定が開始され、私はその一部を受け持つことになりました(鶴田・中島 2012; Kita and Kajino 2019; Tsuruta and Nakajima 2019)。さらに2011年6-7月には、文部科学省の主導で実施された、福島県東部を中心とした5-10kmメッシュでの表層土壌中の放射性物質調査にも参加しました。この調査には、全国から大気、土壌、放射化学、放射線影響など多くの異なった分野から大勢の方々に参加して、大きな成果が得られました(Saito *et al.* 2015)。一方、原発事故以前から、空間中の $\gamma$ 線量を示す空間線量率は文部科学省により全国のモニタリングポストで測定されており、事故直後はさらに多くの地点で連続的に測定されて、放射性物質の濃度変化がすぐわかるようになりました(第1図)。これらのデータはその後1つにまとめられて公表されています(原子力規制委員会 2012)。また第1図に示すように、大気中の放射性核種の連続測定は、福島県東部や関東地方の研究機関や国などでそれぞれ独立して実施されました(Tsuruta *et al.* 2012)。これらの公表データの引用先も1つにまとめられています(Tsuruta *et al.* 2019)。これらの貴重なデータをもとに、事故後に呼吸による内部被ばく線量の評価、原発からの放射性物質の放出率の推定、および大気輸送・沈着モデルによる放射性物質のシミュレーション

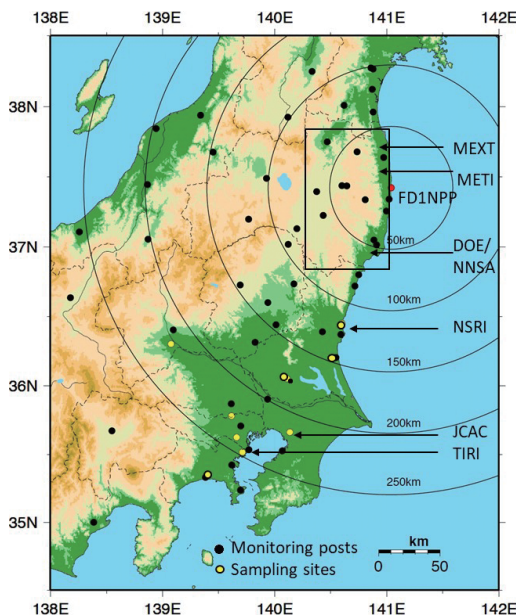
\* リモート・センシング技術センター。  
tsuruta\_haruo@restec.or.jp  
haruo.tsuruta16@gmail.com

—2021年1月5日受領—  
—2021年6月20日受理—

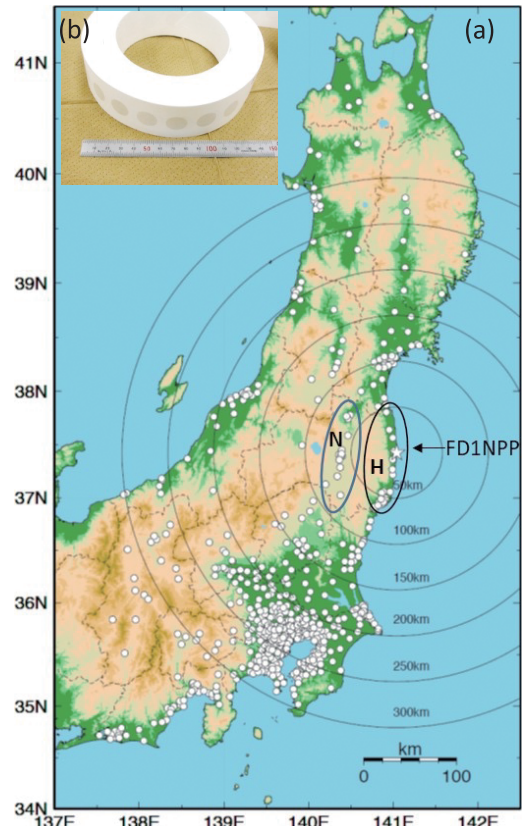
結果などが多くの研究者によって報告され、その実態と影響などが次第に明らかになってきました。しかし事故から3年が経った2014年になっても、これらの不確実性が大きいことが「原子放射線の影響に関する国連科学委員会」(UNSCEAR)でも指摘されていました(UNSCEAR 2014)。

私の最初の勤務先は1972年の旧横浜市公害対策局大気規制課(2年後に旧横浜市公害研究所に異動)であり、1968年と1972年に制定された大気汚染防止法および環境基準に基づいて、全国の大気汚染常時監視網の一環として大気中の浮遊粒子状物質(Suspended Particulate Matter: SPM, 直径 $10\mu\text{m}$ 以下のエアロゾル)の連続測定が開始された頃でした。この測定は人の健康予防を目的として各自治体を実施していますので、人口の多い都市域を中心に数多く設置されています(第2図a)。その配置は、森林地帯や山岳地帯などを

含めて比較的等間隔に設置されている気象庁の地域気象観測システム(アメダス)とは大きく異なっています。SPMの質量濃度( $\mu\text{g m}^{-3}$ )は、測定機器の内部に設置されたテープ状のろ紙上にSPMが1時間ごとに連続採取され、 $\beta$ 線吸収法によって自動で測定されます(第2図b)。そこで、原発事故直後の大気中の放射性核種濃度の時空間分布を、このSPM計に搭載されていた採取済みテープろ紙を分析することによって再現できないか、と事故後初期から考えていました。一方、環境省が早い段階で全国の自治体の関係機関に、事故後の大気採取済みのSPMテープろ紙の保存を要請していました。そこで、文部科学省による緊急土壌調査が一段落した2011年秋に、文部科学省と環境省に対して、上記の考えを提案しました。その際、Ge半導体検出器による放射性核種の測定を首都大学東京



第1図 原発事故後初期の国と自治体による空間線量率の主なモニタリングポストと各機関で独立に実施した大気中放射性核種の採取地点。FD1NPPは東京電力福島原子力第一発電所。四角で囲んだ地域は福島県東部で、文部科学省(MEXT)、経済産業省(METI)、米国家安全保障局(DOE/NNSA)などが採取した地域。なお、その他に、東電が敷地内で、また福島県や茨城県が原子力発電所施設周辺で密なモニタリングを実施している(Tsuruta *et al.* (2019) を改変)。



第2図 (a) 東日本の大気環境常時測定地点(2010年度)。Nは福島県中通り、Hは福島県浜通り(Tsuruta *et al.* 2014を改変)。(b) SPM計に搭載されていたテープろ紙の一例。灰色の円の部分が1時間大気採取済みのスポット(大浦ほか 2020)。

(現東京都立大学)の海老原 充教授と大浦泰嗣准教授  
 にお願ひし、大気拡散沈着モデルにより事故後のシ  
 ミュレーションをされていた国立環境研究所の大原利  
 真福島研究統括に協力を仰ぎ、東京大学の中島映至教  
 授と私の5人の研究チームが発足しました。また、  
 2015年からは東京大学の森口祐一教授も参加されま  
 した。

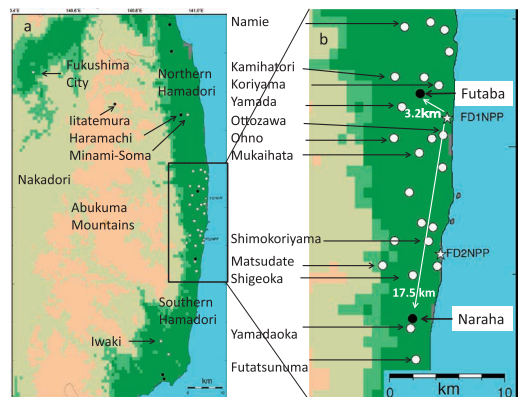
その後、文部科学省の提案により、放射性核種の定  
 量化のテスト分析を開始しました。まず、環境省を通  
 じて自治体から送っていただいたSPM測定局の数地  
 点の事故直後のテープろ紙を用いて、首都大学東京で  
 放射性セシウム ( $^{134}\text{Cs}$  と  $^{137}\text{Cs}$ ) を測定しました。その  
 結果、約1時間の測定時間で $^{137}\text{Cs}$ 濃度が $1\text{ Bq m}^{-3}$ 前  
 後の低濃度まで精度良く測定できることが確認できま  
 した。次に、この測定値が正確かどうかを検証するた  
 めに、東京都立産業技術研究センター (TIRI) が旧駒  
 沢支所で1時間毎に大気を採取・測定した放射性物質  
 濃度を、その東側約1 km に設置されている東京都大  
 気汚染常時監視網K局のSPMテープろ紙の測定値と  
 比較しました。その結果、大気採取方法および測定機  
 器は異なっていたにもかかわらず、3月15日11時 (10-  
 11時の1時間平均濃度) に最高を示した $^{137}\text{Cs}$ 濃度は、  
 ほぼ同じ値であることがわかり、SPMテープろ紙の  
 測定値は信頼できることが明らかになりました (Nagakawa  
*et al.* 2015 ; Tsuruta *et al.* 2014 ; Oura  
*et al.* 2015)。しかし、放射性ヨウ素 ( $^{131}\text{I}$ ) は、半減期が  
 約8日間と短いので、その時点ですでに検出されま  
 せんでした。以上のテスト分析が成功したので、2012  
 年の夏に環境省の要請を受け、東北、関東および中部  
 地方の自治体から事故後の使用済みテープろ紙を首都  
 大学東京に送っていただきました。その後、環境省や  
 原子力規制庁の委託事業や文部科学省の科学研究費補  
 助金および環境省の環境研究総合推進費などの競争的  
 資金により、SPM局のテープろ紙中の $^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ の  
 測定が開始され、2020年度まで継続されました。

2.1.2 SPM採取日時の確定と $^{137}\text{Cs}$ 濃度の精度検証  
 常時監視でのテープろ紙によるSPM濃度の測定で  
 は、1時間後に大気採取が終了した時点で、自動的に  
 採取日時とSPM濃度が決定されます。しかし、使用  
 済みテープろ紙の $^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ の測定では、常時監視時  
 には起こり得ない次の2つの課題を解決する必要があ  
 りました。1つ目の課題は、1巻のテープろ紙では、  
 SPM濃度が1か月から数か月間連続測定され、正常  
 な場合は1日に24個の採取済みスポットが存在します

(第2図b)。しかし、送付されたテープろ紙の中には、  
 1日のスポット数が24個以上や以下の場合がありまし  
 した。この原因は、テープろ紙の定期的な交換、測定機  
 器の保守点検、そして計画的/計画外の停電などによ  
 ることがわかりました。そこで、公表されているSPM  
 濃度の1時間値などを参考にして、ほとんどの採取済  
 みスポットの日時を正確に決定しました (大浦ほか  
 2020)。もう1つの課題は、テープろ紙は1か月以上連  
 続使用されるためにきつくしっかりと巻かれていたた  
 め、特に $^{137}\text{Cs}$ 濃度のピーク時のスポットのろ紙上に採  
 取されたエアロゾルの一部が、1周後に巻かれたろ紙  
 の裏面に付着していたことです。全てのデータを検討  
 した結果、ピーク時の高濃度の $^{137}\text{Cs}$ の裏面への付着割  
 合はろ紙の材質によって異なり、フッ素樹脂製ろ紙と  
 ガラス繊維製ろ紙ではそれぞれ最大20%と5%だっ  
 たことがわかりました (Tsuruta *et al.* 2014 ; Oura  
*et al.* 2015)。そのため、スポットの日時の確定とSPMの裏  
 面への付着の影響については、多くの時間を割いて精  
 査しました。

2.2  $^{137}\text{Cs}$ 濃度の時空間分布と放射性ブルーム

前述した課題を解決した後に、事故直後の2011年3  
 月12日以後の1時間毎の $^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ の時空間分布を  
 復元することができました。これにより、大気エアロ  
 ザル中の $^{137}\text{Cs}$ が、どの地点 (地域) で、どのくらい  
 の高濃度で、何時間続いて、どこへ輸送されたのかなど、  
 放射性ブルーム (以下、ブルームと略します) の動態  
 をほぼ明らかにすることができました。そしてこれら



第3図 福島県が (a) 福島県東部と (b) 浜通り (第2図のH) に設置したSPM地点 (●) とモニタリングポスト (○) の位置。FD1NPPとFD2NPPは、各東京電力福島第一および第二原子力発電所 (Tsuruta *et al.* 2018)。



の詳細な解析結果を, Tsuruta *et al.* (2014), 鶴田ほか (2017), Tsuruta *et al.* (2018) で報告しましたので, この章では顕著なブルームの事例解析結果を紹介しします.

### 2.2.1 原発近傍の<sup>137</sup>Cs濃度変化と複数のブルーム

原発近傍での放射性物質の動態は, 原発から約3.2km北西方向の双葉局と17.5km南方の楡葉局(第3図b)のテープろ紙の測定とデータ解析により, 初めて明らかになりました(Tsuruta *et al.* 2018). 第4図a, cはこれら2地点の<sup>137</sup>Cs濃度の経時変化で, 第4図bは, FD1NPPから約10km南方の東電福島第二原子力発電所(FD2NPP)における高さ120mの排気筒での風向を示しています. 南寄りの風が吹いた期間

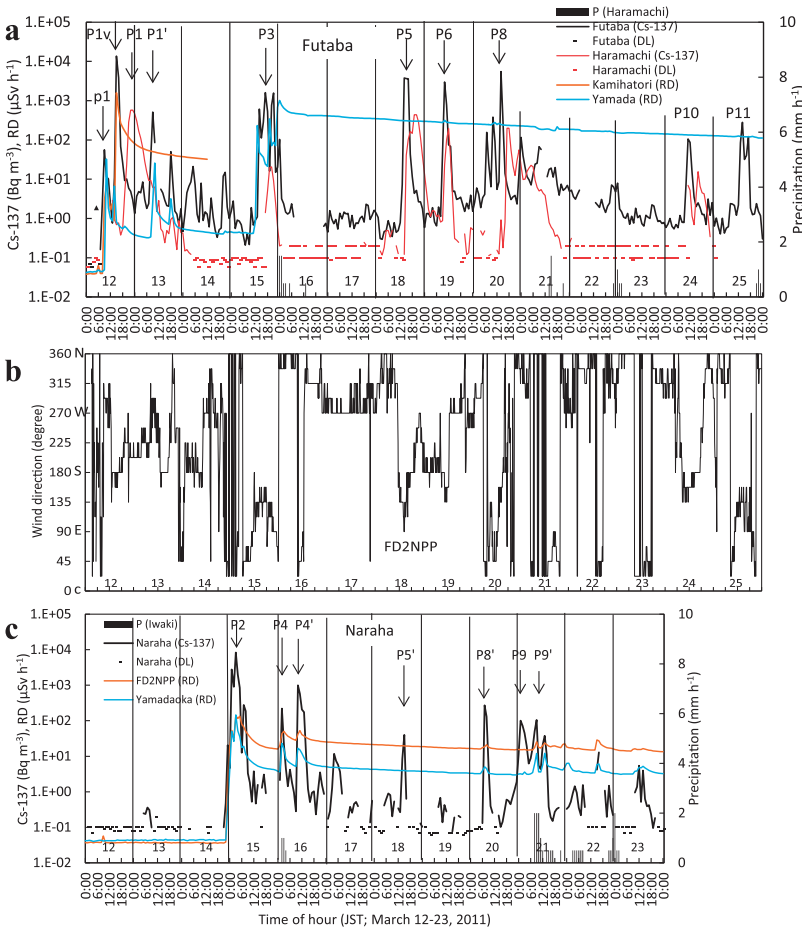
は北側に位置する双葉局でブルームが観測され, 北寄りの風になると南側の楡葉局でブルームが観測されています.

第1表によれば, 双葉局と楡葉局の2地点を含む浜通りと中通りおよび関東地方のSPM局の分析データから, 観測されたブルーム(目安として福島県と関東地方で<sup>137</sup>Csのピーク時の濃度がそれぞれ30, 15Bq m<sup>-3</sup>以上を示したものは, 最初に解析した9つ(P1~P9)(Tsuruta *et al.* 2014)だけでなく全部で19回存在したことがわかりました. そのうち, 福島県東部の浜通り(第2図aのHと第3図)で観測されたブルームは原発より北側で11回, 南側で8回あり, 福島県中部の中通り(第2図aのN)で2回, 関東地方で5回

ありました. このように地域によって到達したブルームの数が異なっただけでなく, 気象条件や地形などの影響を受けたことによります. 特に浜通り北部では14日間に9日間もブルームが観測されましたが, これは南寄りの風が頻繁に吹いたためと考えられます. 次に主なブルームの動態について, 到達した日時の順ではなく, 福島県の浜通りと中通り, および関東地方での状況をまとめて紹介していきますが, ここで, 観測データ解析結果と大気輸送沈着モデルによるシミュレーション結果から推定した, 主要なブルーム(P1~P9)の模式的な輸送経路を第5図に示します(Nakajima *et al.* 2017). これ以後, SPM地点のたとえば5時の濃度は, 4時から5時の1時間平均濃度を示します.

### 2.2.2 2011年3月12日のブルーム(p1, P1v, P1)

事故発生の翌日の3月12日に放出された放射性物質の実態は, 他のデータを含めて解析した結果, 次のように明ら



第4図 FD1NPP近傍の<sup>137</sup>Cs濃度と空間線量率(RD)と風向の経時変化(2011年3月12-25日). (a) 双葉局および原町局と(c) 楡葉局の<sup>137</sup>Cs濃度の経時変化. (b) FD2NPPでの風向の経時変化. RDの地点の位置は第3図を参照. DLは検出下限値でその実測値は不検出(Tsuruta *et al.* 2018).

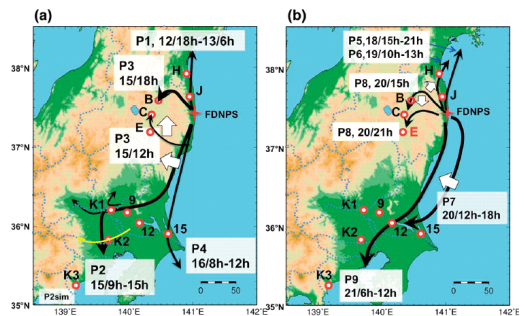
かになりました。まず原発の敷地内で12日早朝4時過ぎに空間線量率が増加し始め(TEPCO 2011), 12日4時半には原発から4 km 北に位置する福島県のモニタリングポスト(MP)の郡山(第3図b)で上昇し始めました(福島県 2012)。福島県原子力対策本部では, 12日から13日にかけて原発から20km圏内で測定を緊急に実施し,  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{131}\text{I}$  濃度が12日8時過ぎには増加したことが判明しました(経済産業省 2011)。その後, 原発近傍3.2kmにある双葉局での $^{137}\text{Cs}$ 濃度は, 9時にプルーム p1による最初のピーク( $56\text{Bq m}^{-3}$ )を観測し, 15時に測定期間中で $^{137}\text{Cs}$ が最高濃度 $13,600\text{Bq m}^{-3}$ を観測しました(第4図a)。双葉局から北西方向2.5kmに位置するMPの上羽鳥(第3図b)でも, 15時に空間線量率が $1.6\text{mSv h}^{-1}$ と最大値を示しました(福島県 2012)。これらの15時のピークは, 1号機のベント操作による(TEPCO 2015)プルーム P1vが到達したためとわかりました。上羽鳥のプルームが双葉局のプルームと同一だったと仮定して, 実測した $^{134}\text{Cs}$ 濃度と $^{137}\text{Cs}$ 濃度および緊急測定結果(経済産業省 2011)から推定した $^{131}\text{I}$ 濃度( $^{137}\text{Cs}$ 濃度の30倍)の合計は, 国際原子力機関(IAEA 2000)の換算係数を用いると, 空間線量率全体の約2.5%と計算され,  $^{132}\text{Te}$ や $^{132}\text{I}$ などの短寿命核種やガス状の $^{133}\text{Xe}$ が大半であったと推定されました。空間線量率のデータはプルームの到来を迅速に検出できるのですが, その空気中の放射性核種の濃度まではわかりません。したがって今後は, 放射性核種濃度を迅速に測定する機器の開発が望まれます。

第1表 放射性プルームの到達日とその到達地域およびその放出源 (Tsuruta *et al.* 2018)。

プルーム No.	2011年3月12-25日															プルームの到達地域			放出源
	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	浜通り	中通り	関東	号機	
															北部	南部		No.	
p1	○														○			1	
P1v	●														●			1	
P1	●	→													●			1	
P1'		●													●			1	
p2				○												○	○	1 and/or 3	
P2				●											●	●	●	2 and/or 3	
P3				●	→										●	●		2 and/or 3	
P4					●										●		●	2 and/or 3	
P4'					●										●			2 and/or 3	
P5						●									●			2 and/or 3	
P5'						●									○			2 and/or 3	
P6							●								●			2 and/or 3	
P7								○									○	2 and/or 3	
P8									●	→					●	●		2 and/or 3	
P8'										●					●			2 and/or 3	
P9										●					○	●	●	2 and/or 3	
P9'										●					●			2 and/or 3	
P10													●		●			1	
P11													●	●				2 and/or 3	

プルーム No.: p2は Tsuruta *et al.*(2018), P7は Tsuruta *et al.*(2014) に記述されている。

- :  $^{137}\text{Cs}$  最高濃度 $\geq 100\text{Bq m}^{-3}$ 。
- :  $^{137}\text{Cs}$  最高濃度 $< 100\text{Bq m}^{-3}$ 。
- :  $^{137}\text{Cs}$  高濃度が翌朝まで継続した。
- : 降水がその地域で観測された。



第5図 大気輸送沈着モデルによるシミュレーション結果と SPM データ解析結果とから推定した主なプルーム (P1-P9) の輸送経路。(a) P1, P2, P3, P4。(b) P5, P6, P7, P8, P9。記号と数値は SPM 地点。(a)の関東平野の黄色い曲線の矢印はその後の SPM データ解析から明らかになった P2 の日中の輸送経路(Nakajima *et al.*(2017)を改変)。

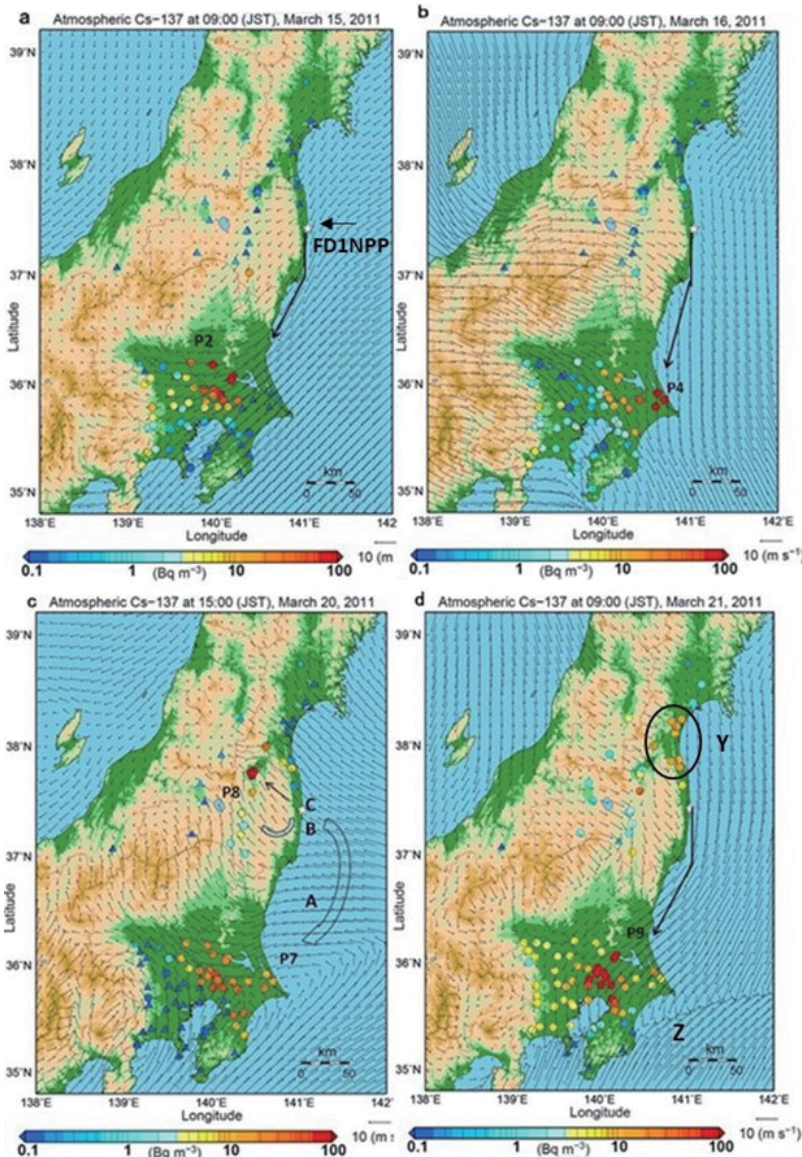
す。一方、12日15時36分に起こった水素爆発時のブルームは、双葉局では観測されませんでしたので、大気中の濃度が不明で今後の検討課題です。原発から約25km北側に位置する原町SPM局（第3図a）では、3月12日夜間に到達したブルームP1により $^{137}\text{Cs}$ 濃度が最高 $577\text{Bq m}^{-3}$ と増加しました（第4図a）。このブルームは水素爆発以後に原発から放出されたと推測さ

れました。

### 2.2.3 関東地方に到達した主なブルーム（P2, P4, P7, P9）

3月15日0時前後に放出されたブルームP2は、北寄りの風により3月15日3時には、浜通りの楢葉局付近を通過して $^{137}\text{Cs}$ 濃度は $8,300\text{Bq m}^{-3}$ とこの地点での期間中の最高濃度を観測しました（第4図c）。その後

第6図aに示すように、北東風により関東東部沿岸域に輸送され、その後の東寄りの風で関東中部から15時には関東地方西部の山麓付近まで輸送されました（関東地方での最高濃度は $153\text{Bq m}^{-3}$ ）。このブルームの一部は、南寄りの風により空間線量率が增大した北関東地方に運ばれましたが、SPM地点のデータは存在しないため、 $^{137}\text{Cs}$ 濃度の時空間変化の詳細は不明です。翌日の3月16日午前中にも関東地方東部沿岸域では、強い北寄りの風で輸送されたブルームP4（最高濃度は約 $180\text{Bq m}^{-3}$ ）が観測されました（第6図b）。このブルームは、原発から16日0-3時に放出された後は、北風により沿岸域の東海上を南下しました（Miyasaka *et al.* 2015）。また3月20日午後には第6図cに示すように、関東地方中部で広範囲に $^{137}\text{Cs}$ 濃度が増加し（最高は約 $40\text{Bq m}^{-3}$ ）、ブルームP7が到達しました。このブルームは第6図cのAに示すように、3月20日未明に原発を出発してから西寄りの風で一旦海上に運ばれた後、時計回りの北東から東寄りの風の変化により、12時ごろには関東地方東部沿岸域に輸送されました（Miyasaka *et al.* 2015）。その後、関東地



第6図 東日本のSPM地点での $^{137}\text{Cs}$ 濃度と1000hPaでの風向風速の空間分布。(a) 2011年3月15日9時。(b) 3月16日9時。(c) 3月20日15時。(d) 3月21日9時。P2, P4, P7, P8, P9はブルームの番号、Zは地上風の収束帯。A, B, CとYは本文参照（鶴田ほか（2017）を改変）。



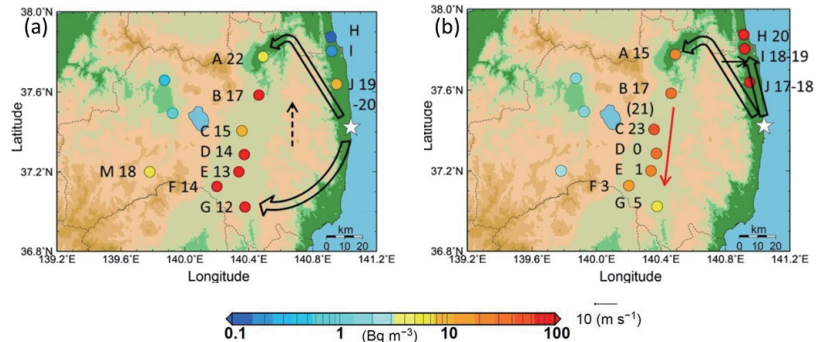
方の中部から西部山麓にまで輸送されて、夜間にその付近に滞留しました。さらに、関東地方では3月21日の午前中に北東風でプルームP9が到達し、茨城県南部で最高濃度(309Bq m<sup>-3</sup>)が測定されました(第6図d)。風上側の福島県浜通りの橋葉局でのプルームP9の最高濃度は21日1時に100Bq m<sup>-3</sup>でした(第4図c)。これは、第6図dのP9の輸送経路(黒実線)が示すように原発から北寄りの風で

浜通りの東海上を通過したため、橋葉局はこのプルームの西端だったためです。その後、プルームP9は北東風により茨城県東部沿岸域から東京湾方面に輸送されました。関東地方での<sup>137</sup>Csの最高濃度が3月15日のプルームP2より2倍になった主な原因は、つくば上空での気温の逆転層が高度600m付近に存在していて、SPMが逆転層内に閉じ込められたためです(Tsuruta *et al.* 2014; Nakajima *et al.* 2017)。このようにSPM試料の測定により<sup>137</sup>Csの時空間分布が明らかになり、関東地方に到達したプルームのp2, P4およびP7の存在が、初めて明らかになりました。

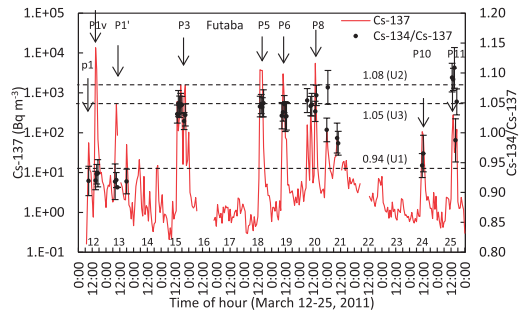
2.2.4 福島県中通りに到達したプルーム (P3, P8)

一方、福島県の中通り(第2図aのN)では、浜通りや関東地方と異なり、プルームが2回(3月15日のP3と3月20-21日のP8)到達しました。3月15日は午前中に東風から南東風に変化したので、第7図aに示すように、朝に放出されたプルームは12時には中通り南部のG地点に輸送されました。その後、プルームの移動により、最高濃度を示した時間も南部から北部に進むにつれて遅くなったので、高濃度域が北上したことがわかりました。最高濃度は、E地点では13時に330Bq m<sup>-3</sup>でしたが、その後北部の地点ほど次第に低くなり、A地点では22時頃に13-33Bq m<sup>-3</sup>と、E地点の約1/10となりました。この低下の原因は、原発からの放射性物質の放出強度の減少(Katata *et al.* 2015)だけでなく、プルーム中の<sup>137</sup>Csの一部がその後観測された雲粒や降水に取り込まれたためと考えています。

次に3月20日は、福島県東部では午前中から南東よりの風が吹き(第6図cのC)、それに伴い、双葉局で



第7図 福島県中通りと浜通り北部のSPM地点におけるプルーム通過時の<sup>137</sup>Cs最高濃度の観測時刻の空間変化。(a) 2011年3月15日のプルームP3。(b) 3月20-21日のプルームP8。A-MはSPM地点。数字は最高濃度を観測した時刻。太い矢印はプルームの推定輸送経路(Tsuruta *et al.* 2014)。



第8図 双葉局でのSPM試料中の<sup>137</sup>Cs濃度と<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs(<sup>137</sup>Cs>30Bq m<sup>-3</sup>)の経時変化(2011年3月12-25日)。数値(0.94, 1.08, 1.05)はNishihara *et al.*(2012)のイベントの各1, 2, 3号機の<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Csの値(Tsuruta *et al.* 2018)。

も昼前後にプルームP8による高濃度が観測されました(第4図a)。そして中通りでは、北部で15時に最高濃度(約50Bq m<sup>-3</sup>)を示しました(第7図b)。その後、このプルームの一部は夜間の北風への変化とともに、ゆっくりと中通りの北部から南部へ輸送されながら最高濃度も減少していきました(F地点では3月21日3時に最高濃度約30Bq m<sup>-3</sup>)(第7図b)。一方、プルームP8の一部は、沿岸域の強い南寄りの風により、20日夜に浜通り北部と宮城県南部に輸送されました(最高濃度は約340Bq m<sup>-3</sup>)。しかし、宮城県仙台平野でのSPM局では、20日は南東の海風が吹き続けたので、<sup>137</sup>Csは検出されませんでした。その後、3月21日の9時には第6図dに示すように、原発より北方のY地域で10Bq m<sup>-3</sup>前後の<sup>137</sup>Cs濃度が観測されました。これは、前夜に上空で北方に輸送された汚染気

塊の一部が、その後の強い北寄りの風で鉛直混合により地上に運ばれたためと解釈しました。これらから局地風系と複雑地形が、プルームの輸送経路に大きく影響を与えたことが明らかになりました。

### 2.3 大気エアロゾル中の $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の比

次に、これらのプルームがどの原子炉から放出されたかを明らかにできれば、炉内事象の解明に貢献できます。そこで、Nishihara *et al.* (2012) が計算した原発停止時に格納容器内に存在していた放射性核種の総量比と、原発近傍3.2km北西にある双葉局の $^{137}\text{Cs}$ 濃度が $30\text{Bq m}^{-3}$ 以上のデータによる $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ を比較しました。その結果、3月12-13日に双葉で測定されたプルーム (p1, P1v, P1') の比はすべて約0.92 (第8図) で、Nishihara *et al.* (2012) で示された1号機のインベントリ値の比 (0.94) にほぼ等しく、これらのプルームが1号機からの放出だったことを、初めて大気試料から確認できました (Oura *et al.* 2015; Tsuruta *et al.* 2018)。しかし、3月15日以降は、双葉局でも楡葉局でも2号機ないし3号機のインベントリ値の比 (それぞれ1.08と1.05) に近い値だったため、どちらかに決定することはできず、両方あるいはどちらか単独による放出と解釈しています。

### 2.4 $^{137}\text{Cs}$ の土壤沈着量とSPM地点の積算濃度と降水との関係

放射性物質の土壤への沈着量の測定は、文部科学省による福島県東部を中心とした調査 (Saito *et al.* 2015) と東日本から中部日本までを対象とした航空機モニタリング (文部科学省 2011) で詳細な空間分布が明らかになっています (第9図a)。最も沈着量が多かった原発から北西方向へ約30kmに及ぶ福島県東部の帯状の分布は、3月15日のプルームP3 (第5図a) が夕方から夜間にかけて観測された降水によって一部が沈着したことも寄与している可能性があります。また、航空機モニタリングでは、東北地方の宮城県北部と岩手県南部の県境沿いにも $^{137}\text{Cs}$ 沈着量の相対的に多かった地域 (第9図aのZ) が存在しましたが、前述したとおり3月20日のプルームP8 (第5図b) が北方にも運ばれ、その一部が3月20日夜間にこの地域で観測された降水により沈着したためです。しかし、この日は宮城県の仙台平野では下層で東寄りの海風が吹き続け、宮城県の平野部に位置するSPM局では $^{137}\text{Cs}$ は検出されなかったことから、プルームP8はこの海風の上空やSPM局のない西側の山間部を輸送されたと解釈しました。

一方、第9図bに示すように、関東地方東部の $^{137}\text{Cs}$ の沈着量の多かった地域と、SPM局の3月21日の $^{137}\text{Cs}$ 積算濃度の高い地点とは良く一致しました。この地域のSPM局のプルームP9 (第6図d) による高濃度が測定された時間帯は3月21日の7-11時ごろで、降水が観測された時間帯 (第9図c) とほぼ対応していましたので、降水によって大気中の高濃度の $^{137}\text{Cs}$ の一部が地表に湿性沈着したことがわかりました。なお関東地方では、3月15日の午前中にもプルームP2が通過しましたが (第6図a)、平野部では降水は観測されず土壤への沈着は乾性沈着だけでしたので、その沈着量は3月21日のそれよりずっと少なかったはずですが、また第9図aによれば、 $^{137}\text{Cs}$ のない関東地方北部の栃木県、群馬県にも $^{137}\text{Cs}$ の沈着量の多かった地域が存在しています。この原因は、放射性物質は雨粒だけでなく雲粒や霧粒にも取り込まれた結果と報告されている (Hososhima and Kaneyasu 2015)、大気輸送沈着モデルによるシミュレーション結果との比較もなされています (Kajino *et al.* 2019)。このように、土壤沈着量分布がいつ引き起こされたかを正確に推定するためには、 $^{137}\text{Cs}$ 濃度と降水の有無を同時に解析する必要があります。

### 2.5 他の研究分野との連携

テープろ紙上の $^{137}\text{Cs}$ 濃度は、他の分野の研究者にも幅広く利用されています。Terada *et al.* (2020) は、この1時間毎の $^{137}\text{Cs}$ 濃度のデータを含む多くの既存のデータと大気輸送沈着モデルを用いて、原子炉からの $^{137}\text{Cs}$ と $^{131}\text{I}$ のある時間帯ごとに放出率の推定を再評価しました。また、大気輸送沈着モデルの検証にも利用されました (Yumimoto *et al.* 2016; Sekiyama *et al.* 2017; Sekiyama and Iwasaki 2018; Mathieu *et al.* 2018; Kajino *et al.* 2019)。さらに、国内外の大気輸送沈着モデル相互比較にも、このデータが利用されています (Kitayama *et al.* 2018; Sato *et al.* 2018; Sato *et al.* 2020)。

一方、つくばの気象研究所で2011年3月14-15日に採取された大気エアロゾルの試料中からは、不溶性のセシウム含有粒子 (CsMP; いわゆるセシウムボール) が、初めて発見されました (Adachi *et al.* 2013)。その後、多くの研究者がこの課題に取り組み、テープろ紙の採取済みスポット試料の分析によって、福島県浜通りでもCsMPの存在が明らかになりました (小野崎ほか 2019)。また関東地方とその近県の7地点での試料を分析することにより、CsMPがどこまで輸送され



たのが明らかになりました (Abe *et al.* 2021).

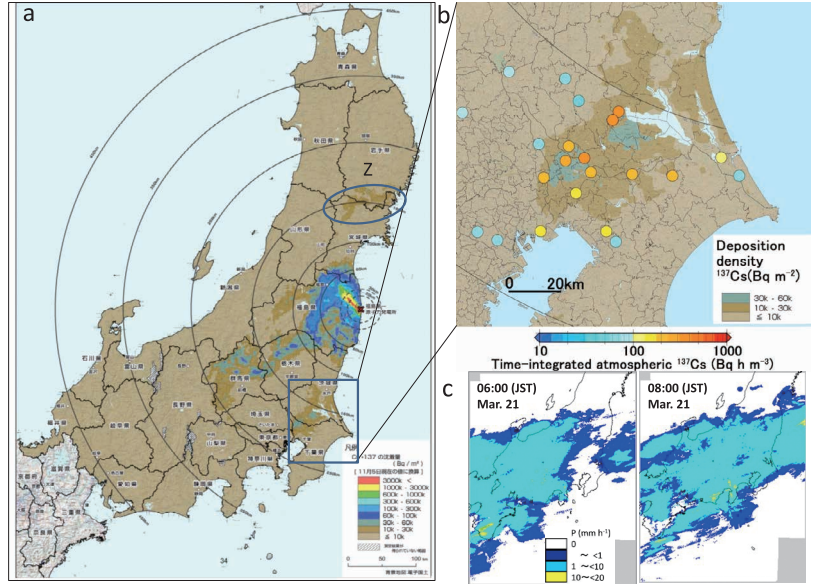
呼吸による内部被ばく量の推定についても多くの研究結果がありますが, Takagi *et al.* (2020) は, このテープろ紙上の<sup>137</sup>Cs濃度と, 既存の<sup>131</sup>I濃度およびSPM局の<sup>137</sup>Csデータから推定した<sup>131</sup>I濃度を用いて, 呼吸による内部被ばく量をあらたに推定しました.

### 2.6 放射性ヨウ素の動態とプルームとの関係

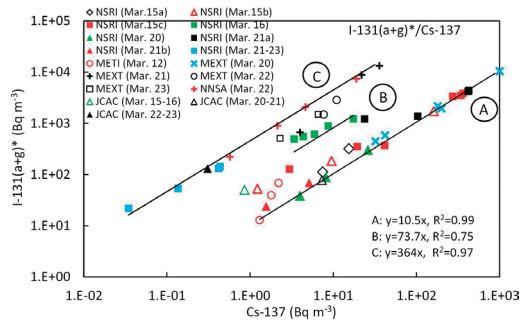
放射性ヨウ素 (<sup>131</sup>I) は甲状腺がんを引き起こす放射性物質で, 半減期が約8日間であり, 約30年の<sup>137</sup>Csと比較すると非常に短い核種です. 事故直後には10以上の機関が独自に大気を採取・測定し, 福島県内で3月12日以後, 関東地方で3月15日以後に測定された貴重なデータは公開されています (これらのデータ源は Tsuruta *et al.* (2019) で紹介しています).

この章ではガス状ヨウ素<sup>131</sup>I (g) と粒子状ヨウ素<sup>131</sup>I (a) の合計データ<sup>131</sup>I (a+g), および同時に測定された<sup>137</sup>Csとの比 $R = {}^{131}\text{I} (a+g) / {}^{137}\text{Cs}$  (以後はRと記載します) の解析結果を中心に示します. なお<sup>131</sup>Iのデータは実測値そのままではなく, 事故の発生日時にまで減衰補正した値 (\*を付けます) を用いて, 異なる日に採取・測定されたデータを定量的に比較しました. また, 事故発生時に炉内に存在していた放射性物質のインベントリの比R (1, 2, 3号機のRは各6.7, 9.2, 9.7) (Nishihara *et al.* 2012) とも比較を行いました. 測定データは, 測定機器, 測定場所, 測定時間が異なりましたが, プルーム毎にまとめて解析した結果, 次のような新たな知見を得ました (Tsuruta *et al.* 2019).

第10図に示すように, 福島県や関東地方などの測定地域や日時に関係なく, プルームによって3グループに大別されることがわかりました. R\*が約10だったAグループは, 3月15日, 20日, 21日午前中のプルームP2, P7, P8, およびP9で, 前述したインベントリの比と比較して発生源は原子炉2号機と3号機の両



第9図 <sup>137</sup>Csの土壤沈着量と大気中積算濃度分布. (a) 文部科学省による第4次航空機調査結果 (文部科学省 2011), Zは本文参照. (b) 関東地方東部の土壤沈着量とSPM地点での<sup>137</sup>Csの2011年3月21日の積算濃度の空間分布. (c) 気象庁の解析雨量による3月21日6時と8時の降水量分布 (Tsuruta *et al.* (2014) を改変).

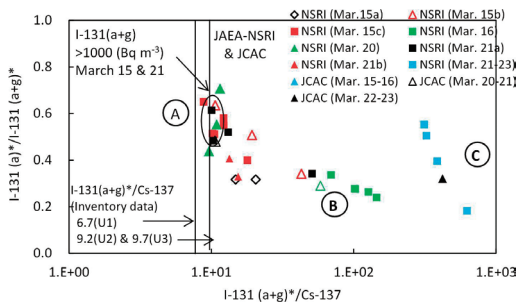


第10図 原発事故後初期に福島県東部と関東地方で測定された大気中の<sup>137</sup>Cs濃度と<sup>131</sup>I(a+g)\*濃度との関係 (2011年3月12日-23日). ( )は大気採取日. 大気採取地点は, NSRI: JAEA-原子力科学研究所 (Ohkura *et al.* 2012), METI: 経済産業省 (2011), MEXT: 文部科学省 (2011), NNSA: 米国国家安全保障局 (DOE/NNSA 2012), JCAC: 日本分析センター (Amano *et al.* 2012). 各地点の位置は第1図を参照 (Tsuruta *et al.* 2019).

方かどちらか一方と推定されました. 次にR\*が約75と<sup>131</sup>I (a+g)\*の<sup>137</sup>Csに対する割合がグループAより相対的に大きかったグループBは, 3月16日の午前中

の関東地方東部沿岸域に到達したプルーム P4 でした。さらに R\*が約360と非常に大きかったグループ C は、3月21日午後から少なくとも3月25日まで福島県東部で測定された、<sup>131</sup>I (a+g)\*が相対的に非常に大きいプルーム (pI と記す) でした。関東地方の3月22-23日(第10図のNSRIとJCAC)でも、<sup>131</sup>I(a+g)\*と<sup>137</sup>Csの濃度は福島県東部よりずっと低い値でしたが、R\*はプルーム pI と同等の比が測定されました。R\*が非常に大きかった原因としては、原発建屋内に大量に注水されて蓄積された水のなかに存在していた<sup>131</sup>Iの一部が大気中に放出されたため (Hidaka and Ishikawa 2014) と推測されますが、今後のさらなる検討が必要です。また、双葉局で3月12日15時に測定された<sup>137</sup>Csの最高濃度 (13,600Bq m<sup>-3</sup>) のプルーム P1v は、ベントにより放出されたので、インベントリ比よりも大きくなったはずですが、3月12日の午前中に原発近傍で測定された大気中の放射性物質のデータでは、<sup>131</sup>I(a+g)\*と<sup>137</sup>Csともずっと低いですが、R\*=30という最大値 (経済産業省 2011; Tsuruta *et al.* 2019) を仮に適用すると、<sup>131</sup>I (a+g)\*=408,000Bq m<sup>-3</sup>という値になります。ただし、これらは現時点での推定値ですので、より正確な値を検討中です。

ガス状<sup>131</sup>I (g) は、粒子状<sup>131</sup>I (a) よりも人体への影響が大きいので、両者の比がどのくらいだったかは、内部被ばくによる影響の解明にとっても重要です。事故直後に関東地方で両者が同時に測定されたデータ (Ohkura *et al.* 2012) によれば (第11図), <sup>131</sup>I (a+g)\*に占める粒子状<sup>131</sup>I (a)\*の比は、グループ A, B, C



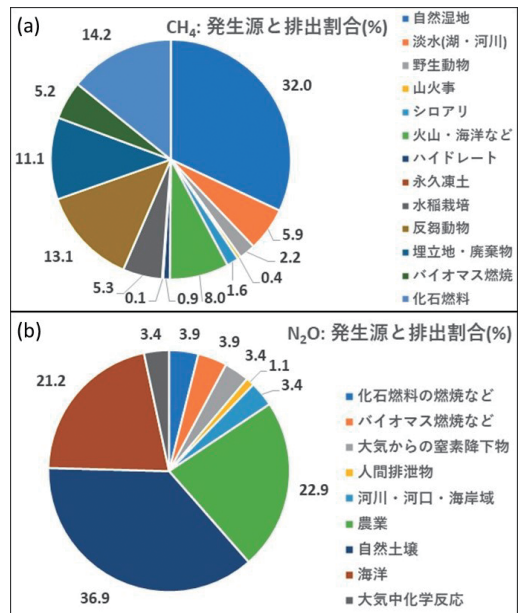
第11図 原発事故後初期に関東地方で測定された大気中の<sup>131</sup>I (a+g)\* /<sup>137</sup>Cs と<sup>131</sup>I (a)\* /<sup>131</sup>I (a+g)\*との関係。A, B, C, NSRIとJCACは第10図と同じ。矢印は<sup>131</sup>I (a+g)濃度の実測値が1,000Bq m<sup>-3</sup>より高いデータ。<sup>131</sup>I (a+g)\* /<sup>137</sup>CsのインベントリデータはNishihara *et al.* (2012) による (Tsuruta *et al.* 2019)。

で、それぞれ平均値0.56 (範囲は0.48-0.64), 0.28 (0.24-0.34), 0.41 (0.18-0.55) でした。グループ A では、<sup>131</sup>I (a+g) の実測値が1,000Bq m<sup>-3</sup>以上の3月15日と21日のデータを対象としており、<sup>131</sup>I (a)\*と<sup>131</sup>I (g)\*とはほぼ等しいかやや<sup>131</sup>I (a)\*が大きいという結果が得られました。ただし、このデータは原発から150km以上も南方で測定されたことに注意する必要があります。これらのプルームが原発から放出された時点でも同じ比だったか、あるいはもっとガス状<sup>131</sup>I (g)\*の比率が大きかったかどうかは、まだ解明されていません。私どもは、SPM テープろ紙中に含まれている粒子状の、半減期が1,570万年と非常に長い<sup>129</sup>I (a) の測定を開始しており (Ebihara *et al.* 2019), それらのデータと上記のデータから、SPM地点での<sup>131</sup>I (g) および<sup>131</sup>I (a+g) を推定する研究を開始しています。

### 3. 農耕地における温室効果ガス発生

#### 3.1 背景

地球規模の気候変動では、温暖化はすでに現実となりつつあり、その原因の温室効果ガスは、二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) が主ですが、その他にメタン (CH<sub>4</sub>) や一酸化二窒素 (N<sub>2</sub>O, 亜酸化窒素とも呼ばれます), ハロカーボン類などがあります。この中で私の過去の研究に関



第12図 地球全体からの (a) メタン (CH<sub>4</sub>) と (b) 一酸化二窒素 (N<sub>2</sub>O) の発生源と排出割合 (%) (IPCC 2013)。

係が深い  $\text{CH}_4$  と  $\text{N}_2\text{O}$  に着目すると、「気候変動に関する政府間パネル」(IPCC) の第5次評価報告書 (IPCC 2013) では世界で報告された研究成果を収集整理してまとめており、第12図に示すように、多様な発生源から排出されていることがわかります。それらは、自然活動と人間活動に由来するものに分類されます。微生物活動に由来するものは、 $\text{CH}_4$  では自然湿地、反芻動物、廃棄物・埋立地、水田などで全体の約70%を占めており、また  $\text{N}_2\text{O}$  では、自然土壌、農業、海洋などで全体の90%を占めています。このうち、農業からの発生源は、 $\text{CH}_4$  では家畜と水稲栽培、 $\text{N}_2\text{O}$  では施肥由来の農耕地などから大量に放出されています。

IPCC は1988年に設立され、1989年に私は、旧環境庁が IPCC に提出するための日本の温室効果ガスの排出量算定検討会に参画しました。私はそれ以前から、大気汚染常時監視網で測定される大気中  $\text{CH}_4$  濃度の季節変化を解析しており、第13図の最下段に示すように夏季(特に6-7月)に  $\text{CH}_4$  濃度が高くなる地点(福井)があることを示しました(鶴田 1989)。日本は周囲を海に囲まれており、海洋には  $\text{CH}_4$  の発生源がほとんどなく(第12図)、東京などの都市域では夏季に  $\text{CH}_4$  濃度は低くなりました(第13図)。そこで夏季の  $\text{CH}_4$  増加の原因を調べたところ、その地点周辺は水田で水稲が栽培されていたので、水稲栽培で  $\text{CH}_4$  が発生することが常時監視データから明らかになりました。日本では世界に先駆けて、水田でクロードチャンパー法により  $\text{CH}_4$  の発生に関する調査研究が実施されていました(陽・八木 1988; Yagi and Minami 1990) ので、その研究結果を大気汚染常時監視データが裏付けることとなりました。また常時監視データの解析から、大都市域では冬に  $\text{CH}_4$  濃度が高くなり、夏季には低くなることもわかりました。さらに、旧東京大学海洋研究所の初代淡青丸により相模湾上で海陸風による大気汚染物質の挙動を解明する海上観測も実施しました(竹田ほか 1978)。その結果、夜から午前中の北からの陸風時に窒素酸化物 ( $\text{NO}_x$ ) とともに  $\text{CH}_4$  が急激に増加し、その後の南寄りの海風時にはそれらが減少して光化学オゾン ( $\text{O}_3$ ) が急上昇するという日変化が観測されました(鶴田 1983, 1987)。これらから、海風時に  $\text{CH}_4$  濃度が低くなるだけでなく、都市域には人間活動に伴う様々な  $\text{CH}_4$  の発生源があることを裏付けることとなりました(鶴田 1991)。

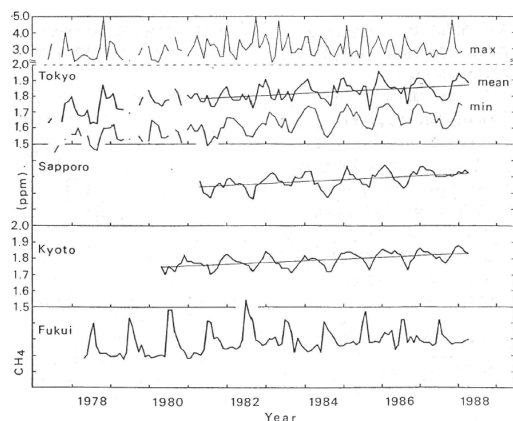
アジアは、世界中の水田の90%を有しており、また大量の窒素肥料を農耕地で使用していますが、1990年

代当時は、アジアからの  $\text{CH}_4$  と  $\text{N}_2\text{O}$  の発生データはほとんどありませんでした。そこで、その発生の実態調査、発生機構、発生量の算定、抑制技術の開発などに関して、日本とアジアで調査研究を実施しました。

## 3.2 国内での調査研究

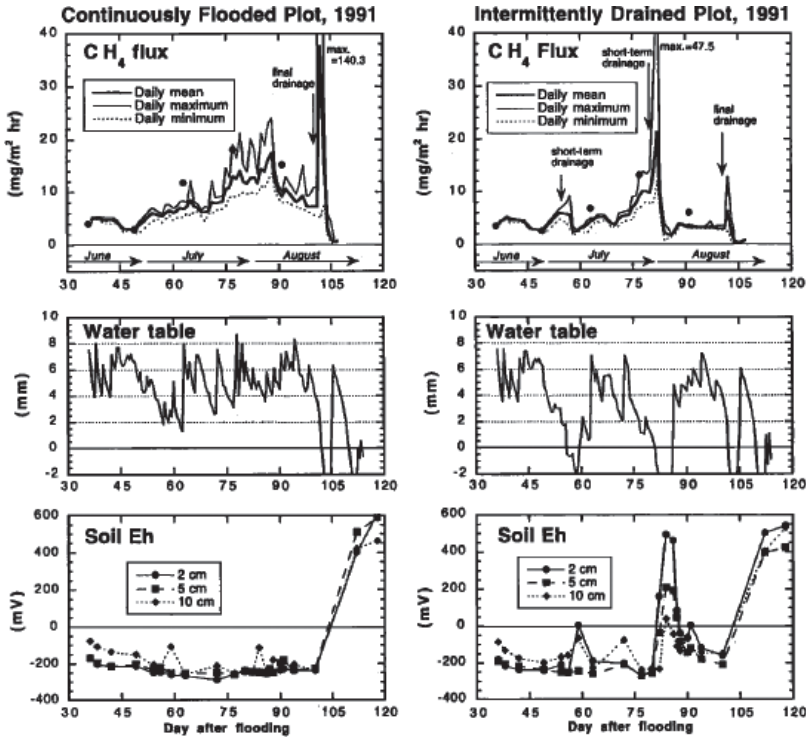
### 3.2.1 水田からのメタン ( $\text{CH}_4$ ) 発生

水田からの  $\text{CH}_4$  発生に関しては、稲わらやたい肥などの有機物施用により土壌中の絶対嫌気性古細菌のメタン生成菌がこれらの有機物を分解する過程で、 $\text{CH}_4$  ガスが生成され、主に水稲体を通して大気中に放出されます(Nouchi *et al.* 1990; Schutz *et al.* 1991; 野内ほか 1999)。  $\text{CH}_4$  発生の要因は様々ですが、多くの調査研究により水管理と有機物管理が重要であることが明らかになりました(八木 1997)。日本の水稲の慣行栽培では、夏季に中干しをしてその後は間断灌水をする水管理が行われています。Yagi *et al.* (1996) は、自動的に開閉するチャンパーの中の大気を FID ガスクロマトグラフに送って2時間毎に  $\text{CH}_4$  フラックスを測定するシステムを開発しました。第14図によれば、茨城県内の水田圃場で中干しをした間断灌水区からの栽培期間中の  $\text{CH}_4$  発生量は、中干しをしない常時湛水区よりも58%も少なかったことを示しています。中干しは、田面水を一時的に落とすことにより水稲の根に酸素を与えて活性化させるだけでなく、土壌の還元化が一時停止して土壌中での  $\text{CH}_4$  の生成が抑制されることもわかりました。ただし、中干し開始時や最終落水時に、 $\text{CH}_4$  フラックスが急激に上昇したことも明らかに

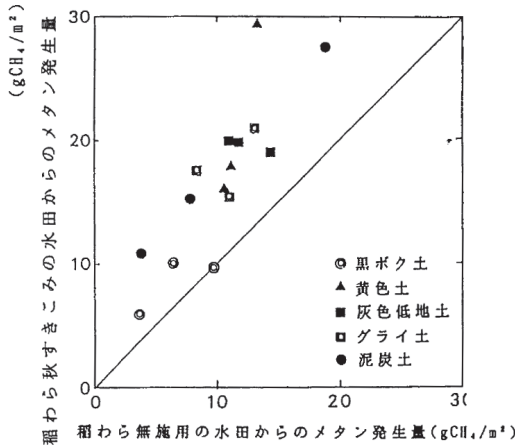


第13図 4地点(東京, 札幌, 京都, 福井)の大気環境常時測定局における大気中メタン( $\text{CH}_4$ )月平均濃度の長期変動(1977-1988年)。東京では月最高値と月最低値も示す(鶴田 1999)。





第14図 (左) 常時湛水区と(右) 間断湛水区における(上) メタンフラックス, (中) 水位, (下) 2, 5, 10cmの深さの土壌酸化還元電位(Eh)の季節変化(1991年6-9月). CH<sub>4</sub>フラックスの連続データは自動モニタリング装置による測定で, 黒丸は手動による測定データ(Yagi *et al.* 1996).



第15図 日本の水田土壌タイプ別の同一圃場における稲わらの無施用区と標準施用区におけるメタン発生量(gCH<sub>4</sub>/m<sup>2</sup>)の関係(鶴田 1997).

なりました. これは, 土壌中に蓄積していたCH<sub>4</sub>が一度に大気中に放出した現象ですが, 数日毎の測定ではわからず, 自動化してフラックスを高頻度に測定することにより初めて明らかになりました. さらに Itoh *et al.* (2011) は, 中干し期間を慣行より1週間ほど長くすることでCH<sub>4</sub>発生量が慣行栽培より3割も減少したことを明らかにしました. また, 有機物管理では, たい肥よりも稲わらを施用した水田からのCH<sub>4</sub>発生量が多いこともわかりました(Yagi and Minami 1990). 一方, 農林水産省では, 日本の各地域での水田からのCH<sub>4</sub>と畑地などからのN<sub>2</sub>Oの発生量を把握するために, 全国49の農業試験場や農業センターで手動のクロードチャンバー法(陽・八木 1988)で, 1992-1994年の3年間にわたり, 栽培期間中のCH<sub>4</sub>とN<sub>2</sub>Oのフラックスを測定する大規模な調査を実施しました. 私はその調査を支援するグループの一員として参画しました. その結果, 第15図に示すように, CH<sub>4</sub>発生量は, 水田の土壌タイプにより異なること, また同一圃場内で, 稲わらをすきこんだ水田では稲わらをすきこまない水田に比べて約1.7倍多かったことが明らかになりました. さらに, 稲わらを取穫直後の秋にすきこむと, 翌年春にすきこんだ場合よりCH<sub>4</sub>発生量が少なかったこともわかりました(鶴田 1997; 鶴田 1999). ところで日本では, 1960年代から農林水産省による基盤整備事業で, 排水のために水田土壌の暗渠が整備され始めました. この暗渠整備によるCH<sub>4</sub>発生の抑制効果を検討するため, 水稻栽培中の暗渠ありと無しの水田からCH<sub>4</sub>発生の季節変化を調査したところ, 暗渠の存在によって水田からのCH<sub>4</sub>発生量が減少することがわかりました(Shiratori *et al.* 2007). これらから, 暗渠が整備された水田で中干しをする日本の水稻栽培法は, CH<sub>4</sub>発生量を抑制する環境保全技術でもあることが明らかになりました.

さらに、これまでは耕起移植栽培での CH<sub>4</sub> 発生量の調査研究を示しましたが、水田を耕さない不耕起栽培法も行われています。石橋ほか (2001) は、岡山県内で両者による CH<sub>4</sub> 発生量の比較調査を実施し、不耕起直播水田からの CH<sub>4</sub> 発生量が耕起移植水田の約半分だったことを明らかにしました。一方、CH<sub>4</sub> と CO<sub>2</sub> のフラックスの測定では渦相関法による方法も利用されており、より広い水田地域での詳細な時間変動を把握することができます (Miyata *et al.* 2000)。

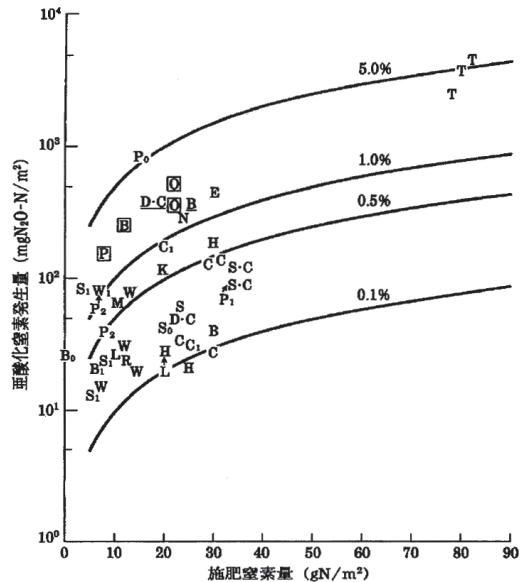
農耕地を対象とした調査研究以外では、福島県・新潟県・群馬県の3県にまたがる尾瀬ヶ原湿原からの CH<sub>4</sub> 発生に関して、第3次尾瀬総合学術調査が行われ、1994-1997年の間に合計20回ほどの現地調査を実施しました。その結果、水田と同じように地下水水位が CH<sub>4</sub> 発生に大きく影響することがわかり、湿原全体の CH<sub>4</sub> 発生量を推計することができました (鶴田ほか 1999)。

3.2.2 農地からの一酸化二窒素 (N<sub>2</sub>O) の発生

微生物による N<sub>2</sub>O の生成過程は、好氣的条件での硝化 (NH<sub>4</sub><sup>+</sup> → NO<sub>2</sub><sup>-</sup> → NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) と嫌氣的条件での脱窒 (NO<sub>3</sub><sup>-</sup> → NO<sub>2</sub><sup>-</sup> → NO → N<sub>2</sub>O → N<sub>2</sub>) です。

温室効果ガスでもある光化学オゾンの前駆物質でもある一酸化窒素 (NO) も N<sub>2</sub>O とともに硝化と脱窒の過程で生成され、土壤水分量に影響されます (Firestone and Davidson 1989 ; Davidson 1991)。Minami (1987) は、クロードチャンバー法と ECD ガスクロマトグラフによる N<sub>2</sub>O フラックスの測定法を開発して、関東地方の作物畑地で調査した結果、N<sub>2</sub>O の発生量は施肥窒素量の0.1-0.3%でした。N<sub>2</sub>O の発生要因は多岐にわたりますが、投入窒素量とともに窒素肥料の種類や土壤水分などが重要であることがわかりました (鶴田 1998a, 2000)。前述した全国調査結果によれば、日本の様々な種類の作物を栽培した畑地では、第16図に示すように、栽培期間中の N<sub>2</sub>O 発生量は施肥窒素量の0.1-5.0%だったことが明らかになりました (鶴田 1997)。投入した窒素肥料の一部は、N<sub>2</sub>O として大気中に放出されるだけでなく、硝酸態窒素 (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) として地下水汚染を引き起こしています。これらの環境汚染を抑制するために、肥料についても、硝化抑制剤や肥効調節型肥料 (投入した肥料が作物の生育に応じてゆっくりと土壤中に放出されるように調節された被覆肥料など) が開発されてきました。そこで Akiyama *et al.* (2000) は、全自動 N<sub>2</sub>O/NO フラックス測定システムを開発して4時間毎に N<sub>2</sub>O と NO のフラックスを黒ボク土の畑地で測定することにより、第17図 b に示

すように、硝化抑制剤入り肥料区からの N<sub>2</sub>O 発生量が通常肥料区などよりも少なくなることを明らかにしました。また施肥土壤中では、NH<sub>4</sub><sup>+</sup> が施肥後に増加して減少し、その後に NO<sub>3</sub><sup>-</sup> が増加して減少した (第17図 d, e) ので、最初に硝化により次に脱窒により N<sub>2</sub>O が生成されたこともわかりました。さらに、NO と N<sub>2</sub>O のフラックス比 (NO-N/N<sub>2</sub>O-N) は土壤水分量 (WFPS) と非常に良い負の相関が見られ (第17図 f)、土壤水分量が少ないほど NO が、また多くなるほど N<sub>2</sub>O がより多く発生したことがわかりました。また、両者のフラックス比は土性によって異なり、灰色低地土では土壤水分量が少なくても NO の発生量は N<sub>2</sub>O より少ないこともわかりました (McTaggart *et al.* 2002)。Smith *et al.* (2007) は、英国や日本などを含む世界各地における農地からの N<sub>2</sub>O と NO の発生とその抑制技術に関する調査を通じて、様々な抑制技術による N<sub>2</sub>O の発生量の削減量を試算しています。さらに、Akiyama *et al.* (2010) は、多くの文献データを統計解析した結果、硝化抑制剤入り肥料と被覆肥料を施用した農地からの N<sub>2</sub>O の発生量は、通常肥料を施用した農地からの発生量からそれぞれ平均で38%と35%も減少



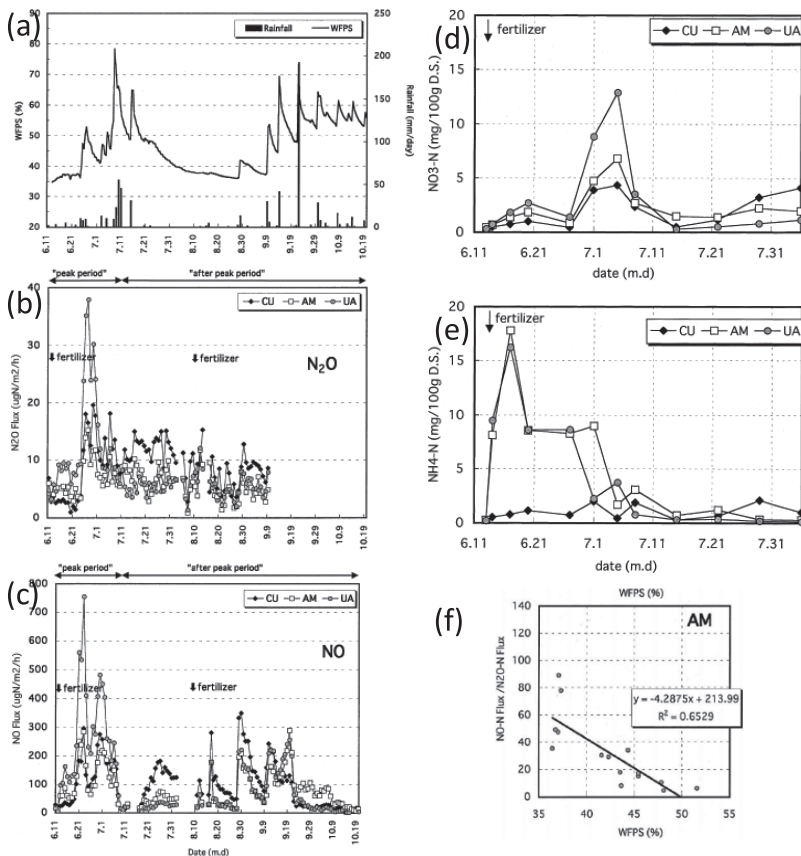
第16図 異なる作物を栽培した農地における施肥窒素量 (gN/m<sup>2</sup>) と栽培期間中の N<sub>2</sub>O 発生量 (mgN<sub>2</sub>O-N/m<sup>2</sup>) との関係。英字は作物の種類を示す。0.1-5% は施肥窒素量に対する N<sub>2</sub>O 発生量の割合を示す (鶴田 1997)。

したことを明らかにしました。一方、畑地にはたい肥や有機質肥料も投入されますが、それらの有機物施用区では、化学窒素肥料施用区よりも多くの  $N_2O$  が発生することも明らかになりました (Akiyama and Tsuruta 2003)。また Koga *et al.* (2004) は北海道の十勝地方の畑地で調査を行い、キャベツ畑で作物残差の夏季の収穫直後のすきこみ後、あるいはてんさいや小豆畑で秋の作物残差の表面散布後の春の雪解け時に、 $N_2O$  フラックスが短期間に急激に増加したことが測定されました。後者の事例では、雪解け時の表層土壌水分量は約60%と多かったため、 $N_2O$  は脱窒により発生したためと報告しています。一方、水田からも  $N_2O$  は、 $CH_4$  が発生しなくなった収穫後から翌年の栽培ま

での休耕期間中に主に発生し、 $CH_4$  と  $N_2O$  の発生はトレードオフの関係にあることが明らかになりました (Tsuruta *et al.* 1997)。また休耕期間中では、土壌からの  $CO_2$  の発生も  $N_2O$  と比例関係にあることがわかりました。前述した不耕起乾田直播水田からの  $N_2O$  発生量は、耕起移植栽培水田からの  $N_2O$  発生量よりも約5倍でしたが、不耕起乾田直播水田からの  $CH_4$  発生量の10%前後だったこともわかりました (石橋ほか 2009)。同時に近隣で渦相関法で測定された  $CO_2$  フラックスのデータも用いて炭素収支を解析した結果、不耕起乾田直播水田では炭素が土壌に貯留することがわかりました。

これらの調査は作物生育中に、季節変化も把握する

必要があるため、1回の調査結果が得られるまでに半年以上の期間を要しました。また、年による差も大きいので、2-3年かけて調査することが推奨されていました。前述したように、環境の条件が短期間に急に変化した時に  $CH_4$  や  $N_2O$  のフラックスの急激な増加が生じるため、また発生量がトレードオフの関係を示すこともあるので、 $CO_2$ 、 $CH_4$ 、 $N_2O$  の温室効果ガスのフラックス同時分析方法が3種類のガスクロマトグラフ (TCD, FID, ECD) を用いて確立され (須藤・山本 2017)、多くの調査に貢献しています。ところで、 $N_2O$  は、土壌表面から直接大気中に放出されるだけでなく、投入された窒素肥料の一部が降水などにより地下に浸透して溶脱した後に、河川などへ流出することでも発生し、この間接発生量を把握することも重要です (IPCC 2013)。Sawamoto *et al.* (2005) は、国内の北海道や愛知県などおよび外国のデータを解析して、日本における間接発生による  $N_2O$



第17図 3種類の窒素肥料 (CU, AM, UA) を施用して人参を栽培した畑地における (a) 土壌水分量 (WFPS) と日降水量, (b)  $N_2O$  フラックス, (c)  $NO$  フラックスの季節変化。土壌中の (d)  $NO_3^-$  濃度と (e)  $NH_4^+$  濃度の季節変化。 (f) AM 肥料区における土壌水分量 (WFPS) とフラックス比  $NO/N_2O$  との関係。CU は被覆尿素肥料区, AM は (硫安+尿素) 肥料区, UA は硝化抑制剤入り (硫安+尿素) 肥料区。矢印は施肥日 (Akiyama *et al.* 2000)。



の排出係数を算定しました。

### 3.3 アジアでの共同研究と研究協力

国内での調査研究と並行して、アジアでも、多くの国と共同研究や研究協力を行いました。1991年にタイ国農業局 (DOA) および国際農林水産技術研究センター (JIRCAS) のタイ支所と共同で、タイの水田からのメタン発生プロジェクトが開始され、南部を除く中部、北部、および北東部の広範囲に存在する天水に依存する水田などでの長期間の  $\text{CH}_4$  発生の実態が明らかになりました (Yagi *et al.* 1994; Katoh *et al.* 1999a, 1999b)。また、タイの施肥した畑地からの  $\text{N}_2\text{O}$  発生に関する調査も実施しました (Watanabe *et al.* 2000)。熱帯アジアの土地利用変化が温室効果ガスの発生に及ぼす影響に関するプロジェクトでは、インドネシアの水田や熱帯林から農地となった地域などで、ポゴール農業大学 (IPB) や国際森林研究センター (CIFOR) と、幅広く共同で  $\text{CH}_4$  や  $\text{N}_2\text{O}$  の発生に関する調査を実施しました (Ishizuka *et al.* 2002, 2005; Murdiyarso *et al.* 2005; Nakajima *et al.* 2005; Ueda *et al.* 2005)。熱帯泥炭湿地からの  $\text{CH}_4$  発生については、インドネシアのランゲン・マンクラート大学と千葉大学と共同で実施しました (Hadi *et al.* 2005; Furukawa *et al.* 2005; Inubushi *et al.* 2005)。また、インドネシア気象局 (BMKG)、マレーシア気象局 (MMD) およびシンガポール気象庁 (MSS) などと、森林火災で生成されたエアロゾルや対流圏オゾンの調査研究も行いました (鶴田 1998b; Yonemura *et al.* 2002a, 2002b; 中島・鶴田 2004)。インドでは、国立物理学実験研究所 (NPL) やリモートセンシング庁 (NRSA) とも協力関係を持ちました (Prasad *et al.* 2001, 2004, 2005)。東アジアでは、中国科学院南京土壤研究所と、水田からの  $\text{CH}_4$  と  $\text{N}_2\text{O}$  の発生に関する共同研究が実施され、広範囲の農耕地で測定が行われました (Cai *et al.* 1997, 1999, 2000, 2003b; Xu *et al.* 2000)。一方、中国科学院瀋陽応用生態研究所とも、畑地や草地からの  $\text{N}_2\text{O}$  発生に関する共同研究を実施しました (Hou *et al.* 2000; Bin *et al.* 2003)。

### 3.4 農耕地からの温室効果ガス発生に関する国際共同研究

これまで、現地での調査に基づいた研究成果を示しましたが、Li *et al.* (1992, 1994) および Li (2000) により、作物の生育モデルや土壌環境、硝化と脱窒、および有機物分解モデルなどを組み込んで、農耕地からの微量ガス ( $\text{NO}$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{NH}_3$ ) のフラッ

クスを予測する DNDC (Denitrification-Decomposition) モデルが開発されました。これは、おもに米国や中国を対象として、必要な現地でのデータを入力して数値計算で予測するモデルです。アジア太平洋地球変動研究ネットワーク (APN) の公募研究に採択されたプロジェクトで、この生物地球化学的な DNDC モデルを使用した国際共同研究 (日本、中国、米国、タイ、ドイツ、フィリピンが参加) が開始されました。このプロジェクトでは最初に、日本のつくば (Akiyama *et al.* 2000) と北海道の三笠 (澤本・波多野 2000; Kusa *et al.* 2002) の畑地と中国 (Cai *et al.* 1997, 1999, 2000) とタイ (Yagi *et al.* 1994) などの水田や畑地で測定された  $\text{CH}_4/\text{N}_2\text{O}/\text{NO}$  のフラックスデータを用いて、DNDC モデルの検証を行いました (Cai *et al.* 2003a)。その結果、DNDC モデルによる数値計算では、北海道の玉ねぎ畑からの  $\text{N}_2\text{O}$  フラックスと、中国の水田からの  $\text{CH}_4$  フラックスの季節変化が良く再現できました。しかし、北海道の玉ねぎ畑からの  $\text{NO}$  とつくばの黒ボク土の人参畑からの  $\text{N}_2\text{O}$  と  $\text{NO}$  のフラックスの季節変化は再現できませんでした。また、タイの天水田や深水田からの  $\text{CH}_4$  フラックスも再現できませんでした。これらから、DNDC モデルの改良すべき点として、地域固有の土壌の性質や作物の栽培管理システム、水稻栽培様式や品種などの情報を組み込む必要があることが明らかになりました。そこで Li *et al.* (2004) は、DNDC モデルを改良して、土壌の酸化還元電位が湛水により低下するにつれて固有の微生物の働きで有機物の分解や窒素化合物の硝化と脱窒で分解して微量ガスが生成する過程を取り入れました (Stumm and Morgan 1981; 和田 1984; 木村 1991) (第18図)。そして、事例研究として中国の水田全体からの温室効果ガス発生量を計算し、水管理が異なった1980年 (主に常時湛水栽培) と2000年 (主に中干しを取り入れた間断灌水栽培) とで比較しました。その結果、1980年に比べて2000年の  $\text{CH}_4$  発生量は約半分に減少したと推計されましたが、 $\text{N}_2\text{O}$  発生量は逆に増加したため、 $\text{CH}_4$  減少量の約65%が  $\text{N}_2\text{O}$  の増加によって相殺されてしまうことになりました。一方、2000年の  $\text{CH}_4$  発生量は、野外調査から推定した値と大きな差はみられませんでした。その後、DNDC モデルは、農地だけでなく森林土壌など陸域生態系の温室効果ガスの発生量推計で世界中で広く利用されています。日本では、このモデルに基づく DNDC-Rice モデルが開発され、日本の水田からの  $\text{CH}_4$  発生量が算定されました (Katayanagi *et al.* 2016)。

3.5 IPCCでの活動

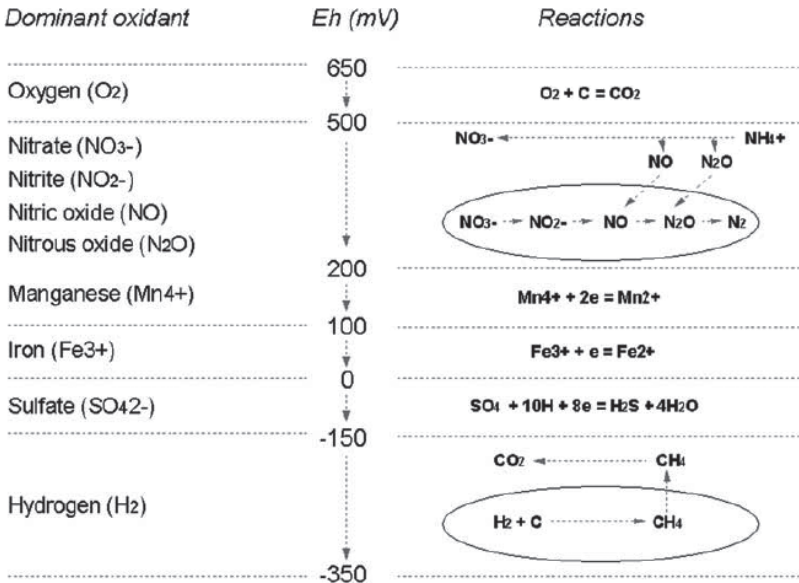
IPCCでは、3つの作業部会のほかにインベントリ・タスクフォース（各国における温室効果ガス排出量・吸収量の目録に関する計画の運営委員会）が設置され、1999年にその事務局（TSU）が日本の地球環境戦略研究機関（IGES）に設置されました。そして2000年に、「国別温室効果ガス排出目録作成に関する良好事例指針と不確実性管理」を作成しました（IPCC 2000）。私が参画した第4章「農業」の中の「農耕地土壌からの直接発生」のグループは、農耕地からの温室効果ガス排出量の計算方法を作成しました。各国はそれに基づいて自国のいろいろな分野からの排出量を算定するようになりました。その後、温室効果ガスの排出量の計算手法は改定され、2006年に現在の国別温室効果ガス排出目録のIPCCガイドライン（IPCC 2006）が作成されました。2019年にこのガイドラインはさらに改定されています（IPCC 2019）。排出量の算定手法は基本的に、投入した稲わらや肥料の窒素量などの活動量（Activity data）と排出係数（Emission factors）から構成されています。CH<sub>4</sub>とN<sub>2</sub>Oの発生要因は複雑な場合が多いので、その詳細はこれらのガイドライン（IPCC 2006, 2019）に記載されています。

4. おわりに

原発事故後の使用済みテプロ紙上に採取されたエアロゾル中の<sup>137</sup>Csのデータとそれらを解析した論文（Tsuruta *et al.* 2014；Oura *et al.* 2015）は、UNSCEARの白書（UNSCEAR 2015, 2016）では、「大気中への放出、拡散および沈着に関する研究ニーズに重要な寄与をするとみなされる文献」と評価されています。現在研究チームでは、さらに多くのSPM地点で放射性セシウムの測定を行いましたので、その新たなデータを含めた解析を継続しており、総まとめの報告書を作成するとともに、テプロ紙裏面への影響を考慮したデータベースを作成中です。これらが、まだ不明な点の多い事故時の炉内事象や放射性物質放出後の大気環境の実態解明に役立つことを切に願っています。

一方、私は、横浜市の旧公害対策局と旧公害研究所に在職した後に農林水産省の旧農業環境技術研究所（現農研機構 農業環境研究部門）に在職し（1990年10月-2002年3月）、農耕地からの温室効果ガスの発生・抑制技術の開発に関する分野の調査研究の初期に、国内外の多くの先進的な研究者や新進気鋭の若手研究者と一緒に、無我夢中で仕事をしました。IPCCの第4次評価報告書（IPCC 2007）には、これらの国内外での共同研究による論文（Cai *et al.* 2000, 2003b；Koga *et al.* 2006；Xu *et al.* 2000, 2003；Yagi *et al.* 1997）が

引用されました。旧農業環境技術研究所を退職後に、IGESからの要請で2002年から4年間、国連気候変動枠組条約（UNFCCC）の農業分野の専門家として、各国の温室効果ガス排出量報告書の農業部分を審査して、問題点と改善策を勧告する仕事をしました。この分野の調査研究は、その後も多くの研究者により年々進展してさらにより良い成果が得られていますので、最新の研究成果の情報は関係する分野のホームページ（たとえば、農研機構 農業環境研究部門 <https://www.naro.go.jp/laboratory/niaes/> 2021.6.15閲覧）を訪れていたきたいと思います。今後も



第18図 土壌が湛水するにつれて酸化還元電位（Eh）の段階的低下によって固有の微生物の働きで引き起こされる化学反応と微量ガス生成のモデル化。左側が主要な酸化性物質で右側が化学反応（Li *et al.* 2004）。

引き続き、ボトムアップによる積み上げ方式と、インバースモデル (Patra *et al.* 2016) や人工衛星データを用いたトップダウン方法による温室効果ガス排出量推計の精緻化とともに、地域に固有の抑制技術の開発など、異なる分野が連携して、地球環境保全と持続可能な農業との調和を目指す方向に進むことを、心から切望しています。

これまで長い間、非常にたくさんの方々のご指導、ご協力とご支援があったからこそ、このたびの受賞にたどり着けたと深く感謝いたします。今回の受賞を励みに、微力ですが今後も大気環境保全に尽くしたいと思っておりますので、さらなる叱咤激励をいただきたく、どうかよろしくお願い申し上げます。

## 謝 辞

東京電力福島第一原子力発電所事故後の SPM テープろ紙を提供して下さったすべての自治体に厚く感謝いたします。また、SPM テープろ紙の保存と運用につきましてご尽力くださった、若松伸司愛媛大学名誉教授、環境省、文部科学省、原子力規制庁に、深く感謝いたします。さらに、SPM テープろ紙の分析と解析を当初から一緒に実施して下さった、中島映至東京大学名誉教授、海老原 充早稲田大学教授、大浦泰嗣東京都立大学准教授、大原利真埼玉県環境科学国際センター研究所長、および森口祐一東京大学教授 (現・国立環境研究所理事) に、深くお礼申し上げます。また、膨大な放射性物質のデータの処理と時空間分布図などを作成して下さった、当時東京大学大気海洋研究所に在籍されていた司馬 薫様、山田裕子様、草間優子様、荒井俊昭様および JAXA の松本伸弘様に心から感謝いたします。さらに、当時の東京大学大気海洋研究所の中島研究室と事務部門の皆様のご協力と温かい励ましに、厚くお礼申し上げます。放射性物質や気象モデルなどの専門的な知識を教えてください、また有意義な助言をして下さった、日本原子力開発研究機構、量子科学技術研究開発機構、日本分析センター、気象研究所、海洋研究開発機構、筑波大学アイソトープ環境動態研究センター、福島大学、学習院大学、理化学研究所、東京都立産業技術研究センター、弘前大学被ばく医療総合研究所、東京電力ホールディングス福島第一廃炉推進カンパニー、東京大学先端科学技術研究センター、京都大学、茨城大学、フランスの Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN)、日本地球惑星科学連合、日本放射化学会、日本地球化

学会、など、多くの機関の研究者に、深くお礼申し上げます。また、この研究を現在も継続して実施させて下さっているリモート・センシング技術センターに厚く感謝いたします。本研究の一部は文部科学省科学研究費補助金 (24110002, 24110008, 24110009) と (独) 環境再生保全機構の環境研究総合推進費 (JPMEERF20155001, JPMEERF20181002) で実施しました。

また、農耕地からの温室効果ガスの発生・抑制技術の開発に関する研究でも、国内外の多くの方々大変お世話になりました。陽 捷行旧農業環境技術研究所元所長をはじめ、神田健一元国際農林水産業研究センター上級研究員、旧農業環境変動研究センターの八木一行元温暖化研究統括監、農業・食品産業技術総合研究機構農業環境研究部門の秋山博子革新的循環機能開発グループ長、須藤重人緩和技術体系化グループ長と西村誠一同上グループ上級研究員、中島泰弘高度分析研究センター上級研究員、また、明治大学の Iain McTaggart 准教授、および多くの方々には、親切に指導して下さり、また調査研究を共同で一緒にさせていただき、厚く感謝申し上げます。旧農業環境技術研究所業務課の皆様には、圃場の整備と年間に及ぶ維持管理をして下さったおかげで、調査に集中することができましたことを、厚く感謝申し上げます。さらに、旧農業環境技術研究所秘書の佐々木明子様、旧農業環境変動研究センター秘書の番澤佐千子様と吉澤亜紀子様 (現農業環境研究部門) には、国内外の大量の試料の分析とデータ整理をして下さったおかげで、データの解析とプロジェクトの実施に集中することができましたことを、深く感謝いたします。農林水産省の旧北海道農業研究センター、旧森林総合研究所、旧畜産試験場、旧草地試験場、および全国の自治体の農業試験場、国際農林水産業研究センター、北海道大学、酪農学園大学、筑波大学などの多くの方々に、調査研究を共同で実施させていただき、厚く感謝いたします。また、Keith Smith 英国エディンバラ大学教授と Arvin Mosier メルボルン大学名誉教授 (当時は米国農務省農業研究局) には、IPCC などの国際会議で参加した新人の私を懇切丁寧に指導して下さったおかげで、幅広い視野と国際感覚を身につけられましたことを、厚くお礼申し上げます。さらに、故 Changsheng Li ニューハンプシャー大学教授には、モデルの重要性を親切に教えてくださいましたことを、深く感謝申し上げます。さらに、中国では、中国科学院南京土壤研



研究所 (Cai Zucong 南京師範大学教授ほか), 中国科学院瀋陽応用生態研究所 (Hou Aixin ペンシルベニア州立大学教授ほか), 北京大学, タイでは, タイ国農業局 (DOA; 故 Chairaj Prapai 元土壌科学部長ほか), チュラロンコーン大学, キングモンクット工科大学トンプリー校 (KMUTT) の JGSEE, インドネシアでは, 国際森林研究所 (CIFOR; Daniel Murdiyarso 教授ほか), ポゴール農科大学 (IPB; Bambang Hero Saharjo 教授ほか), インドネシア気候・気象庁 (BMKG; Noer Nurhayati 気候部長ほか), さらに, マレーシア気象局 (MMD; Leon Chow Peng 元環境部長ほか), シンガポール気象庁 (MSS), インドの国立物理学実験研究所 (NPL; 故 A. P. Mitra 元所長ほか) とリモートセンシング庁 (NRSA; Krishna Prasad Vadrevu NASA 研究員ほか), フィリピンの国際稲研究所 (IRRI), 韓国の韓国農業科学技術院などの多くの方々には, 一緒に調査研究や研究協力ができましたことを, 厚く感謝いたします。2007年度のノーベル平和賞を受賞された IPCC には, その活動に貢献した研究者の一人として認定していただき, 厚く感謝いたします。故等松隆夫 東京大学名誉教授および小川利紘 東京大学名誉教授には, 私を大気汚染研究に導いていただき, 心から感謝申し上げます。浅井富雄 東京大学名誉教授には, 旧東京大学海洋研究所の外来研究員として受け入れていただき, 深く感謝いたします。猿田勝美 神奈川大学名誉教授 (元横浜市公害対策局長) および故助川信彦 旧横浜市公害研究所長には, 激しい大気汚染の実態を把握する現地調査を厳しく指導していただき, 厚く感謝申し上げます。横浜市の旧公害対策局と旧公害研究所の皆様には, 大気汚染調査と一緒に参加させていただき, 深く感謝いたします。

### 参 考 文 献

- Abe, Y. *et al.*, 2021: Widespread distribution of radiocesium-bearing microparticles over the greater Kanto Region resulting from the Fukushima nuclear accident. *Prog. Earth Planet. Sci.*, **8**, 13, doi:10.1186/s40645-020-00403-6.
- Adachi, K., M. Kajino, Y. Zaizen and Y. Igarashi, 2013: Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. *Sci. Rep.*, **3**, 2554, doi:10.1038/srep02554.
- Akiyama, H. and H. Tsuruta, 2003: Effect of organic matter application on N<sub>2</sub>O, NO, and NO<sub>2</sub> fluxes from an Andisol field. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **17**, 1100, doi:10.1029/2002GB002016.
- Akiyama, H., H. Tsuruta and T. Watanabe, 2000: N<sub>2</sub>O and NO emissions from soils after the application of different chemical fertilizers. *Chemosphere—Glob. Change Sci.*, **2**, 313–320.
- Akiyama, H., X. Yan and K. Yagi, 2010: Evaluation of effectiveness of enhanced-efficiency fertilizers as mitigation options for N<sub>2</sub>O and NO emissions from agricultural soils: meta-analysis. *Glob. Change Biol.*, **16**, 1837–1846.
- Amano, H. *et al.*, 2012: Radiation measurements in the Chiba Metropolitan Area and radiological aspects of fallout from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plants accident. *J. Environ. Radioact.*, **111**, 42–52.
- Bin, H., G. X. Chen, G. H. Huang and H. Tsuruta, 2003: Nitrous oxide emission from temperate meadow grassland and emission estimation for temperate grassland of China. *Nutr. Cycl. Agroecosys.*, **67**, 31–36.
- Cai, Z. C., G. X. Xing, X. Y. Yan, H. Xu, H. Tsuruta, K. Yagi and K. Minami, 1997: Methane and nitrous oxide emissions from rice paddy fields as affected by nitrogen fertilizers and water management. *Plant Soil*, **196**, 7–14.
- Cai, Z. C., G. X. Xing, G. Y. Shen, H. Xu, X. Y. Yan and H. Tsuruta, 1999: Measurements of CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O emissions from rice fields in Fengqiu, China. *Soil Sci. Plant Nutr.*, **45**, 1–13.
- Cai, Z. C., H. Tsuruta and K. Minami, 2000: Methane emission from rice fields in China: Measurements and influencing factors. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **105**, 17231–17242.
- Cai, Z. C., T. Sawamoto, C. Li, G. Kang, J. Boonjawat, A. Mosier, R. Wassmann and H. Tsuruta, 2003a: Field validation of the DNDC model for greenhouse gas emissions in East Asian cropping systems. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **17**, 1107, doi:10.1029/2003GB002046.
- Cai, Z. C., H. Tsuruta, M. Gao, H. Xu, and C. F. Wei, 2003b: Options for mitigating methane emission from a permanently flooded rice field. *Glob. Change Biol.*, **9**, 37–45.
- Davidson, E. A., 1991: Fluxes of nitrous oxide and nitric oxide from terrestrial ecosystems. *Microbial Production and Consumption of Greenhouse Gases: Methane, Nitrogen Oxides, and Halomethanes* (J. E. Rogers, W. B. Whitman, eds.), Amer. Soc. Microbiol., Washington DC, 219–235.
- Ebihara, M., Y. Oura, N. Shirai, Y. Nagakawa, N. Sakurai, H. Haba, H. Matsuzaki, H. Tsuruta and Y. Moriguchi, 2019: A new approach for reconstructing the <sup>131</sup>I-spreading due to the 2011 Fukushima nuclear accident by means of measuring <sup>129</sup>I in airborne particulate mat-

- ters. *J. Environ. Radioact.*, **208-209**, 106000.
- Firestone, M. K. and E. A. Davidson, 1989: Microbiological basis of NO and N<sub>2</sub>O production and consumption in soil. Exchange of Trace Gases between Terrestrial Ecosystems and the Atmosphere (M. O. Andreae and D. S. Schimel, eds.), John Wiley & Sons Ltd., 7-21.
- 福島県, 2012: 原子力発電所の環境放射能測定結果(平成23年3月11日-3月31日). [https://www.pref.fukushima.lg.jp/sec\\_file/monitoring/etc/post3-20120921.pdf](https://www.pref.fukushima.lg.jp/sec_file/monitoring/etc/post3-20120921.pdf) (2021.6.15閲覧).
- Furukawa, Y., K. Inubushi, M. Ali, A. M. Itang and H. Tsuruta, 2005: Effect of changing groundwater levels caused by land-use changes on greenhouse gas fluxes from tropical peatlands. *Nutr. Cycl. Agroecosys.*, **71**, 81-91.
- 原子力規制委員会, 2012: 空間線量率(環境放射能水準調査)(2011年3月). <https://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/224/list-201103.html> (2021.6.15閲覧).
- Hadi, A., K. Inubushi, Y. Furukawa, E. Purnomo, M. Rasnadi and H. Tsuruta, 2005: Greenhouse gas emissions from tropical peatlands of Kalimantan, Indonesia. *Nutr. Cycl. Agroecosys.*, **71**, 73-80.
- Hidaka, A. and J. Ishikawa, 2014: Quantities of I-131 and Cs-137 in accumulated water in the basements of reactor buildings in process of core cooling at Fukushima Daiichi nuclear power plants accident and its influence on late phase source terms. *J. Nucl. Sci. Technol.*, **51**, 413-424.
- Hososhima, M. and N. Kaneyasu, 2015: Altitude-dependent distribution of ambient gamma dose rates in a mountainous area of Japan caused by the Fukushima nuclear accident. *Environ. Sci. Technol.*, **45**, 3341-3348.
- Hou, A., H. Akiyama, Y. Nakajima, S. Sudo and H. Tsuruta, 2000: Effects of urea form and soil moisture on N<sub>2</sub>O and NO emissions from Japanese Andosols. *Chemosphere—Glob. Change Sci.*, **2**, 321-327.
- IAEA, 2000: Generic procedures for assessment and response during a radiological emergency. IAEA-TEC-DOC-1162. [https://www-pub.iaea.org/mtcd/publications/pdf/te\\_1162\\_prn.pdf](https://www-pub.iaea.org/mtcd/publications/pdf/te_1162_prn.pdf) (2021.6.15閲覧).
- Inubushi, K., S. Otake, Y. Furukawa, N. Shibasaki, M. Ali, A. M. Itang and H. Tsuruta, 2005: Factors influencing methane emission from peat soils: Comparison of tropical and temperate wetlands. *Nutr. Cycl. Agroecosys.*, **71**, 93-99.
- IPCC, 2000: Good Practice Guidance and Uncertainty Management in National Greenhouse Gases Inventories. (IPCC, IPCC NGGIP Task Force Bureau, IPCC NGGIP Japan Technical Support Unit, eds.). Institute for Global Environmental Strategies (IGES) for the IPCC, Japan.
- IPCC, 2006: 2006 IPCC Guidelines for the National Greenhouse Gases Inventories. (S. Eggleston, L. Buendia, K. Miwa, T. Ngara, K. Tanabe, eds.). Institute for Global Environmental Strategies (IGES) for the IPCC, Japan.
- IPCC, 2007: Climate Change 2007: Mitigation. Contribution of Working Group III to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change (B. Metz, O. R. Davidson, P. R. Bosch, R. Dave, L. A. Meyer, eds.), Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- IPCC, 2013: Climate change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change (T. F. Stocker, D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S. K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P. M. Midgley, eds.). Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- IPCC, 2019: 2019 Refinement to the 2006 IPCC Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories. Volume 4: Agriculture, Forestry and Other Land Use. <https://www.ipcc-nggip.iges.or.jp/public/2019rf/vol4.html> (2021.6.15閲覧).
- 石橋英二, 赤井直彦, 大家理哉, 石井俊雄, 鶴田治雄, 2001: 不耕起乾田直播栽培の継続とメタン発生量の関係. *日本土壤肥科学雑誌*, **72**, 542-549.
- 石橋英二, 山本章彦, 赤井直彦, 岩田 徹, 鶴田治雄, 2009: 水稲の不耕起乾田直播栽培が温室効果ガス発生に及ぼす影響—(第5報) 水田から発生するメタン, 亜酸化窒素および二酸化炭素の年間発生量と水田土壌への炭素貯留—. *日本土壤肥科学雑誌*, **80**, 123-135.
- Ishizuka, S., H. Tsuruta and D. Murdiyarso, 2002: An intensive field study on CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O emissions from soils at four land-use types in Sumatra, Indonesia. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **16**, 1049, doi:10.1029/2001GB001614.
- Ishizuka, S., A. Iswandi, Y. Nakajima, Y. Yonemura, S. Sudo, H. Tsuruta and D. Murdiyarso, 2005: The variation of greenhouse gas emissions from soils of various land-use/cover types in Jambi province, Indonesia. *Nutr. Cycl. Agroecosys.*, **71**, 17-32.
- Itoh, M. *et al.*, 2011: Mitigation of methane emissions from paddy fields by prolonging mid-season drainage. *Agric. Ecosys. Environ.*, **141**, 359-372.
- Kajino, M., T. T. Sekiyama, Y. Igarashi, G. Katata, M.

- Sawada, K. Adachi, Y. Zaizen, H. Tsuruta and T. Nakajima, 2019: Deposition and dispersion of radio-caesium released due to the Fukushima nuclear accident: Sensitivity to meteorological models and physical modules. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **124**, 1823-1845.
- Katata, G. *et al.*, 2015: Detailed source term estimation of the atmospheric release for the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident by coupling simulations of an atmospheric dispersion model with an improved deposition scheme and oceanic dispersion model. *Atmos. Chem. Phys.*, **15**, 1029-1070.
- Katayanagi, N. *et al.*, 2016: Development of a method for estimating total CH<sub>4</sub> emission from rice paddies in Japan using the DNDC-Rice model. *Sci. Total Environ.*, **547**, 429-440.
- Katoh, K., P. Chairaj, K. Yagi, H. Tsuruta, K. Minami and W. Cholitkul, 1999a: Methane emission from rice paddy fields in Northern Thailand. *JIRCAS Journal*, **34**, 77-85.
- Katoh, K., P. Chairaj, K. Yagi, H. Tsuruta, K. Minami and W. Cholitkul, 1999b: Methane emission from paddy fields in Northeast Thailand. *JIRCAS Journal*, **34**, 87-96.
- 経済産業省 (METI), 2011: 東京電力株式会社福島第一原子力発電所及び福島第二原子力発電所周辺の緊急時モニタリング調査結果について (3月11日~15日実施分). 報道発表, 平成23年6月3日, 原子力安全・保安院. <https://warp.da.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/8422823/www.meti.go.jp/press/2011/06/20110603019/20110603019.html> (2021.6.15閲覧).
- 木村真人, 1991: 土壌中の微生物とその働き (その4) - 水田の微生物 - . *農業土木学会誌*, **59**, 1187-1194.
- Kita, K. and M. Kajino, 2019: Monitoring the radioactivity of atmospheric aerosols and the influence of resuspension from the ground. *Environmental Contamination from the Fukushima Nuclear Disaster* (T. Nakajima, T. Ohara, M. Uematsu, Y. Onda, eds.), Cambridge Univ. Press, 98-103.
- Kitayama, K. *et al.*, 2018: Atmospheric modeling of <sup>137</sup>Cs plumes from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant-Evaluation of the model intercomparison data of the Science Council of Japan. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **123**, 7754-7770, doi:10.1029/2017JD028230.
- Koga, N., H. Tsuruta, T. Sawamoto, S. Nishimura and K. Yagi, 2004: N<sub>2</sub>O emission and CH<sub>4</sub> uptake in arable fields managed under conventional and reduced tillage cropping systems in northern Japan. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **18**, 1100, doi:10.1029/2004GB002260.
- Koga, N., T. Sawamoto and H. Tsuruta, 2006: Life cycle inventory-based analysis of greenhouse gas emissions from arable land farming systems in Hokkaido, northern Japan. *Soil Sci. Plant Nutr.*, **52**, 564-574.
- Kusa, K., T. Sawamoto and R. Hatano, 2002: Nitrous oxide emissions for six years from a Gray Lowland Soil cultivated with onions in Hokkaido, Japan. *Nutr. Cycling Agroecosyst.*, **63**, 239-247.
- Li, C., 2000: Modeling trace gas emissions from agricultural ecosystems. *Nutr. Cycl. Agroecosyst.*, **58**, 259-276.
- Li, C., S. Frolking and T. A. Frolking, 1992: A model of nitrous oxide evolution from soil driven by rainfall events: I. Model structure and sensitivity. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **97**, 9759-9776.
- Li, C., S. Frolking and R. C. Harriss, 1994: Modeling carbon biogeochemistry in agricultural soils. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **8**, 237-254.
- Li, C., A. Mosier, R. Wassmann, Z. C. Cai, X. Zheng, Y. Huang, H. Tsuruta, J. Boonjawat and R. Lantin, 2004: Modeling greenhouse gas emissions from rice-based production systems: sensitivity and upscaling. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **18**, GB1034, doi:10.1029/2003GB002045.
- Mathieu, A. *et al.*, 2018: Fukushima Daiichi-derived radionuclides in the atmosphere, transport and deposition in Japan: A review. *Appl. Geochem.*, **91**, 122-139.
- McTaggart, I. P., H. Akiyama, H. Tsuruta and B. C. Ball, 2002: Influence of soil physical properties and fertiliser type on N<sub>2</sub>O and NO emissions from nearly saturated Japanese upland soils. *Nutr. Cycl. Agroecosyst.*, **63**, 207-217.
- Minami, K., 1987: Emission of nitrous oxide (N<sub>2</sub>O) from agro-ecosystem. *Japan Agric. Res. Quart.*, **21**, 22-27.
- 陽 捷行, 八木一行, 1988: 水田から発生するメタンのフラックスの測定法. *日本土壤肥科学雑誌*, **59**, 458-463.
- Miyasaka, T., H. Tsuruta, H. Nakamura, Y. Oura, M. Ebihara, T. Ohara and T. Nakajima, 2015: Trajectory analysis for transport of radionuclides from Fukushima to Kanto plane. Annual meeting of ISET-R (2015).
- Miyata, A., R. Leuning, O. T. Denmead, J. Kim and Y. Harazono, 2000: Carbon dioxide and methane fluxes from an intermittently flooded paddy field. *Agric. For. Meteorol.*, **102**, 287-303.
- 文部科学省 (MEXT), 2011: 文部科学省による第4次航空機モニタリングの測手結果について. 報道発表, 平成23年12月16日. [http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/5000/4901/24/1910\\_1216.pdf](http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/5000/4901/24/1910_1216.pdf) (2021.6.15閲覧).
- Murdiyarso, D., H. Tsuruta, S. Ishizuka, K. Hairiah and C. A. Palm, 2005: Greenhouse gas fluxes in slash-and-burn and alternative land-use practices in Sumatra, Indonesia. *Slash and Burn Agriculture: The Search for*



- Alternatives (C. A. Palm *et al.*, eds.), Columbia Univ. Press, New York, 64–82.
- Nagakawa, Y., T. Sotodate, Y. Kinjo and T. Suzuki, 2015: One-year time variations of anthropogenic radionuclides in aerosols in Tokyo after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant reactor failures. *J. Nucl. Sci. Technol.*, **52**, 784–791.
- 中島映至, 鶴田治雄, 2004: 森林火災とエアロゾル. *自然災害科学*, **23**, 337–341.
- Nakajima, Y., S. Ishizuka, H. Tsuruta, A. Iswandi and D. Murdiyarso, 2005: Microbial processes responsible for nitrous oxide production from acid soils in different land-use patterns in Pasirmayang, central Sumatra, Indonesia. *Nutr. Cycl. Agroecosys.*, **71**, 33–42.
- Nakajima, T. *et al.*, 2017: Model depiction of the atmospheric flows of radioactive cesium emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident. *Prog. Earth Planet. Sci.*, **4**, 2, doi:10.1186/s40645-017-0117-x.
- Nishihara, K., H. Iwamoto and K. Suyama, 2012: Estimation of Fuel Compositions in Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant. JAEA-Data/Code 2012-018, Japan Atomic Energy Agency, 190pp.
- Nouchi, I., S. Mariko and K. Aoki, 1990: Mechanism of methane transport from the rhizosphere to the atmosphere through rice plants. *Plant Physiol.*, **94**, 59–66.
- 野内 勇, 細野達夫, 青木一幸, 1999: 水田からの水稲を介したメタンの放出. *農業気象*, **55**, 267–287.
- Ohkura, T. *et al.*, 2012: Emergency Monitoring of Environmental Radiation and Atmospheric Radionuclides at Nuclear Science Research Institute, JAEA Following the Accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. JAEA-Data/Code 2012-010, Japan Atomic Energy Agency, 37pp.
- 小野崎晴佳ほか, 2019: 福島第一原子力発電所事故により1号機から放出された放射性エアロゾルの物理・化学的性状の解明. *分析化学*, **68**, 757–768.
- Oura, Y., M. Ebihara, H. Tsuruta, T. Nakajima, T. Ohara, M. Ishimoto, H. Sawahata, Y. Katsumura and W. Nitta, 2015: A Database of hourly atmospheric concentrations of radiocesium ( $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$ ) in suspended particulate matter collected in March 2011 at 99 air pollution monitoring stations in eastern Japan. *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, **15**, 1–12.
- 大浦泰嗣, 鶴田治雄, 海老原 充, 大原利真, 中島映至, 2020: 浮遊粒子状物質自動測定機で使用されたテーブル紙を利用する大気中放射性セシウムの定量. *分析化学*, **69**, 1–9.
- Patra, P. K. *et al.*, 2016: Regional methane emission estimation based on observed atmospheric concentrations (2002–2012). *J. Meteor. Soc. Japan*, **94**, 91–113.
- Prasad, V. K., K. V. S. Badrinath, P. K. Gupta, C. Sharma, A. P. Mitra, S. Sudo, S. Yonemura and H. Tsuruta, 2001: Methyl halide emissions from biomass burning of tropical secondary mixed deciduous forests of Eastern Ghats of India. *Asian J. Energy Environ.*, **2**, 273–303.
- Prasad, V. K., K. V. S. Badarinath, S. Yonemura and H. Tsuruta, 2004: Regional inventory of soil surface nitrogen balances in Indian agriculture (2000–2001). *J. Environ. Manag.*, **73**, 209–218.
- Prasad, V. K., P. K. Gupta, C. Sharma, Y. Kant, A. P. Mitra, S. Sudo, S. Yonemura, H. Tsuruta and K. V. S. Badarinath, 2005: Greenhouse gas emission inventory from biomass burning due to shifting cultivation in forest clearing in India. *Trends in Air Pollution Research* (J. V. Livingston, ed.), Nova Sci. Publishers, 1–26.
- Saito, K. *et al.*, 2015: Detailed deposition density maps constructed by large-scale soil sampling for gamma-ray emitting radioactive nuclides from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.*, **139**, 308–319.
- Sato, Y. *et al.*, 2018: Model intercomparison of atmospheric  $^{137}\text{Cs}$  from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident: Simulations based on identical input data. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **123**, 11748–11765, doi:10.1029/2018JD029144.
- Sato, Y. *et al.*, 2020: A model intercomparison of atmospheric  $^{137}\text{Cs}$  concentrations from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, phase III: Simulation with an identical source term and meteorological field at 1-km resolution. *Atmos. Environ.*, **X**, 7, 100086, doi:10.1016/j.jaeaoa.2020.100086.
- 澤本卓治, 波多野隆介, 2000: 北海道の土壤構造が発達した灰色低地土タマネギ畑からの $\text{N}_2\text{O}$ フラックス. *日本土壤肥料学雑誌*, **71**, 659–665.
- Sawamoto, T., Y. Nakajima, M. Kasuya, H. Tsuruta and K. Yagi, 2005: Evaluation of emission factors for indirect  $\text{N}_2\text{O}$  emission due to nitrogen leaching in agro-ecosystems. *Geophys. Res. Lett.*, **32**, L03403, doi:10.1029/2004GL021625.
- Schutz, H., P. Schruder and H. Rennenberg, 1991: Role of plants in regulating the methane flux to the atmosphere. *Trace Gas Emissions by Plants* (T. D. Sharkey, E. A. Holland, H. A. Mooney, eds.), Academic Press, San Diego, 29–63.
- Sekiyama, T. T. and T. Iwasaki, 2018: Mass flux analysis of  $^{137}\text{Cs}$  plumes emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Tellus B*, **70**, 1–11, doi:10.1080/160

- 00889.2018.1507390.
- Sekiyama, T. T., M. Kunii and K. Kajino, 2017: The impact of surface wind data assimilation on the predictability of near-surface plume advection in the case of the Fukushima nuclear accident. *J. Meteor. Soc. Japan*, **95**, 447-454, doi:10.2151/jmsj.2017-025.
- Shiratori, Y., H. Watanabe, Y. Furukawa, H. Tsuruta and K. Inubushi, 2007: Effectiveness of a subsurface drainage system in poorly-drained paddy fields on reduction of methane emission. *Soil Sci. Plant Nutr.*, **53**, 387-400.
- Smith, K. A., I. P. McTaggart and H. Tsuruta, 2007: Emissions of N<sub>2</sub>O and NO associated with nitrogen fertilization in intensive agriculture, and the potential for mitigation. *Soil Use Manag.*, **13**, 296-304.
- Stumm, W. and J. J. Morgan, 1981: *Aquatic Chemistry: An Introduction Emphasizing Chemical Equilibria in Natural Waters* (2nd ed.). John Wiley, New York, 418-503.
- 須藤重人, 山本昭範, 2017: 3成分同時分析装置および3成分同時分析方法. 特開 W02017/138646.
- Takagi, M. *et al.*, 2020: Reassessment of early <sup>131</sup>I inhalation doses by the Fukushima nuclear accident based on atmospheric <sup>137</sup>Cs and <sup>131</sup>I/<sup>137</sup>Cs observation data and multi-ensemble of atmospheric transport and deposition models. *J. Environ. Radioact.*, **218**, 106233, doi:10.1016/j.jenvrad.2020.106233.
- 竹田 厚, 三澤信彦, 石川浩治, 鶴田治雄, 前田裕行, 鈴木英世, 遠藤辰雄, 長利富勝, 1978: 相模湾および伊豆諸島近海における大気中の汚染物質と「その輸送過程」に関する観測. *天気*, **25**, 33-42.
- TEPCO, 2011: Press release (May 28, 2011): Additional monitoring data at Fukushima Daiichi Nuclear Power station. <https://www.tepco.co.jp/en/press/corp-com/release/11052811-e.html> (2021.6.15閲覧).
- TEPCO, 2015: Press release (Dec. 17, 2015): The 4th progress report on the investigation and examination of unconfirmed and unresolved issues on the development mechanism of the Fukushima Daiichi Nuclear Accident.[Main body (UPDATE)] [https://www4.tepco.co.jp/en/press/corp-com/release/betu15\\_e/images/151217e0102.pdf](https://www4.tepco.co.jp/en/press/corp-com/release/betu15_e/images/151217e0102.pdf) (2021.6.15閲覧).
- Terada, H., H. Nagai, K. Tsuduki, A. Furuno, M. Kadowaki and T. Kakefuda, 2020: Refinement of source term and atmospheric dispersion simulations of radionuclides during the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident. *J. Environ. Radioact.*, **213**, 106104, doi:10.1016/j.jenvrad.2019.106104.
- 鶴田治雄, 1983: 相模湾岸域における汚染物質の濃度分布とその日変化, 広域大気汚染の動態(文部省「環境科学」特別研究「広域大気汚染の動態」研究班)。「環境科学」研究報告(B163-R11-4), 92-141.
- 鶴田治雄, 1987: 沿岸域と内陸域における輸送・変質・沈着過程, 沿岸域から内陸域にいたる広域大気汚染に関する研究(文部省「環境科学」特別研究「沿岸域から内陸域にいたる広域大気汚染に関する研究」研究班)。「環境科学」研究報告(B307 R11-2).
- 鶴田治雄, 1989: 対流圏オゾンとメタンの動態, 大気汚染と農業生態系に関する研究会資料集, 農業環境技術研究所, 11-21.
- 鶴田治雄, 1991: 大気中のメタンの発生源とその挙動. *化学工業*, **41**, 572-578.
- 鶴田治雄, 1997: 日本の水田からのメタン発生と畑地からの亜酸化窒素の発生量—3年間(1992-1994年)の全国調査結果の概要. 農業環境技術研究所資源生体管理科研究集録, **13**, 101-130.
- 鶴田治雄, 1998a: 亜酸化窒素と土壌. *農業および園芸*, **73**, 267-272.
- 鶴田治雄, 1998b: 1997年インドネシア森林火災の実態とその大気環境への影響. *火災*, **233**, 8-15.
- 鶴田治雄, 1999: わが国の農耕地におけるメタンと亜酸化窒素の発生の実態. *圃場と土壌*, **31**, 31-38.
- 鶴田治雄, 2000: 地球温暖化ガスの土壌生態系との関わり: 3. 人間活動による窒素化合物の排出と亜酸化窒素の発生. *日本土壌肥科学雑誌*, **71**, 554-564.
- 鶴田治雄, 中島映至, 2012: 福島第一原子力発電所の事故により放出された放射性物質の大気中での動態. *地球化学*, **46**, 99-111.
- Tsuruta, H. and T. Nakajima, 2019: Urgent atmospheric measurements in collaboration between geoscientists and radiological chemists. *Environmental Contamination from the Fukushima Nuclear Disaster* (T. Nakajima, T. Ohara, M. Uematsu, Y. Onda, eds.). Cambridge Univ. Press, 294-297.
- Tsuruta, H., K. Kanda and T. Hirose, 1997: Nitrous oxide emission from a rice paddy field in Japan. *Nutr. Cycl. Agroecosys.*, **49**, 51-58.
- 鶴田治雄, 米村祥央, 蓑毛康太郎, 楊宗興, 赤木 右, 和田幸絵, 犬伏和之, Abdul Hadi, 杉井穂高, 木平英一, 1999: 尾瀬ヶ原におけるメタン発生. 尾瀬の総合研究: 福島・群馬・新潟三県合同調査(尾瀬総合学術調査団編), 尾瀬総合学術調査団, 192-216.
- 鶴田治雄, 矢吹正教, 2008: 奄美大島の春季における大気エアロゾルの化学組成と光学特性. エアロゾルの気候と大気環境への影響, 気象研究ノート, (218), 45-66.
- Tsuruta, H., M. Takigawa and T. Nakajima, 2012: Summary of atmospheric measurements and transport pathways of radioactive materials released by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, *Proceedings of the 1<sup>st</sup> NIRS Symposium on Reconstruction*

- of Early Internal Dose in the TEPCO Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Accident, 101-111.
- Tsuruta, H., Y. Oura, M. Ebihara, T. Ohara and T. Nakajima, 2014: First retrieval of hourly atmospheric radionuclides just after the Fukushima accident by analyzing filter-tapes of operational air pollution monitoring stations. *Sci. Rep.* 4, 6717, doi:10.1038/srep06717.
- 鶴田治雄, 大浦泰嗣, 海老原 充, 森口祐一, 大原利眞, 中島映至, 2017: 東電福島第一原子力発電所事故直後の東日本における放射性セシウムの時空間分布. *エアロゾル研究*, 32, 244-254.
- Tsuruta, H., Y. Oura, M. Ebihara, Y. Moriguchi, T. Ohara and T. Nakajima, 2018: Time-series analysis of atmospheric radiocesium at two SPM monitoring sites near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant just after the Fukushima accident. *Geochem. J.*, 52, doi:10.2343/geochemj.2.0520.
- Tsuruta, H., Y. Moriguchi and T. Nakajima, 2019: Dynamics of atmospheric  $^{131}\text{I}$  in radioactive plumes in eastern Japan immediately after the Fukushima accident by analysing published data. *Sci. Rep.*, 9, 13240, doi:10.1038/s41598-019-49379-4.
- Ueda, S., C.-S. U. Go, S. Ishizuka, H. Tsuruta, A. Iswandi and D. Murdiyarto, 2005: Isotopic assessment of  $\text{CO}_2$  production through soil organic matter decomposition. *Nutr. Cycl. Agroecosys.*, 71, 109-116.
- UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation), 2014: Levels and Effects of Radiation Exposure Due to the Nuclear Accident after the 2011 Great East-Japan Earthquake and Tsunami, Vol. I, Scientific Annex, UNSCEAR 2013 Report. [https://www.unscear.org/docs/publications/2013/UNSCEAR\\_2013\\_Report\\_Vol.I.pdf](https://www.unscear.org/docs/publications/2013/UNSCEAR_2013_Report_Vol.I.pdf) (2021.6.16閲覧).
- UNSCEAR, 2015: Developments since the 2013 UNSCEAR Report on the Levels and Effects of Radiation Exposure to the Nuclear Accident Following the Great East-Japan Earthquake and Tsunami. A 2015 White Paper to Guide the Scientific Committee's Future Programme of Work. United Nations.
- UNSCEAR, 2016: Developments since the 2013 UNSCEAR Report on the Levels and Effects of Radiation Exposure to the Nuclear Accident Following the Great East-Japan Earthquake and Tsunami. A 2016 White Paper to Guide the Scientific Committee's Future Programme of Work. United Nations.
- U. S. Department of Energy (DOE)/National Nuclear Safety Agency (NNSA), 2012: US DOE/NNSA Response to 2011 Fukushima Incident-Data and Documentation. *FieldSampleAirResults*. <https://www.energy.gov/downloads/us-doennsa-response-2011-fukushima-incident-data-and-documentation> (2021.6.16閲覧).
- 和田秀徳, 1984: 水田土壌. *新土壌学*(久馬一剛ほか 編), 朝倉書店, 159-183.
- Watanabe, T., P. Chairroj, H. Tsuruta, W. Masarngsan, C. Wongwiwatchai, S. Wonprasaid, W. Cholitkul and K. Minami, 2000: Nitrous oxide emissions from fertilized upland fields in Thailand. *Nutr. Cycl. Agroecosys.*, 57, 55-65.
- Xu, H., Z. C. Cai, Z. J. Jia and H. Tsuruta, 2000: Effects of land management in winter crop season on  $\text{CH}_4$  emission during the following and rice-growing period. *Nutr. Cycl. Agroecosys.*, 58, 327-332.
- Xu, H., Z. C. Cai and H. Tsuruta, 2003: Soil moisture between rice-growing seasons affects methane emission, production, and oxidation. *Soil Sci. Soc. Amer. J.*, 67, 1147-1157.
- 八木一行, 1997: 水田からのメタン発生—食糧生産と地球環境保全とのバランス—. *TROPICS*, 6, 227-246.
- Yagi, K. and K. Minami, 1990: Effects of organic matter application on methane emission from some Japanese paddy soils. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 36, 201-217.
- Yagi, K., P. Chairroj, H. Tsuruta, W. Cholitkul and K. Minami, 1994: Methane emission from rice paddy fields in the central plain of Thailand. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 40, 29-37.
- Yagi, K., H. Tsuruta, K. Kanda and K. Minami, 1996: Effect of water management on methane emission from a Japanese rice paddy field: Automated methane monitoring. *Glob. Biogeochem. Cycles*, 10, 255-267.
- Yagi, K., H. Tsuruta and K. Minami, 1997: Possible options for mitigating methane emission from rice cultivation. *Nutr. Cycl. Agroecosys.*, 49, 213-220.
- Yonemura, S., H. Tsuruta, S. Sudo, S. Kawashima, C. P. Leong, S. Z. Lim and J. Zubaidi, 2002a: Tropospheric ozone climatology over Peninsular Malaysia from 1992 to 1999. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 107, 4229, doi:10.1029/2001JD000993.
- Yonemura, S., H. Tsuruta, T. Maeda, S. Kawashima, S. Sudo and M. Hayashi, 2002b: Tropospheric ozone variability over Singapore from August 1996 to December 1999. *Atmos. Environ.*, 36, 2061-2070.
- Yumimoto, K., Y. Morino, T. Ohara, Y. Oura, M. Ebihara, H. Tsuruta and T. Nakajima, 2016: Inverse modeling of the  $^{137}\text{Cs}$  source term of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident constrained by a deposition map monitored by aircraft. *J. Environ. Radioact.*, 164, 1-12.



Contribution to the technical development in the conservation  
of atmospheric environment based on observational studies for atmospheric chemistry

Haruo TSURUTA \*

*\* Remote Sensing Technology Center of Japan, 3-17-1 Toranomon, Minato-ku, Tokyo 105-0001, Japan*

*(Received 5 January 2021; Accepted 20 June 2021)*

---