論 文

福島第一原発港湾からの放射性セシウム 137 の推定流出量の変遷 —2011 年 4 月～2018 年 6 月までの 7 年間に渡る月間流出量の推定—

町田 昌彦^{1,*}, 山田 進¹, 岩田 亜矢子¹, 乙坂 重嘉^{2,†},
小林 卓也², 渡辺 将久³, 船坂 英之^{3,‡}, 森田 貴己⁴

Seven-year Temporal Variation of Cesium-137 Discharge Inventory from the Port of Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant

Continuous Monthly Estimation of Cesium-137 Discharge in the Period from April 2011 to June 2018

Masahiko MACHIDA^{1,*}, Susumu YAMADA¹, Ayako IWATA¹, Shigeyoshi OTOSAKA^{2,†},
Takuya KOBAYASHI², Masahisa WATANABE³, Hideyuki FUNASAKA^{3,‡} and Takami MORITA⁴

¹Center for Computational Science and e-Systems, Japan Atomic Energy Agency, 178-4-4 Wakashiba, Kashiwa-shi, Chiba 277-0871, Japan

²Nuclear Science and Engineering Center, Japan Atomic Energy Agency, 2-4 Shirane, Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1195, Japan

³Sector for Fukushima Research and Development, Japan Atomic Energy Agency, 7-1 Omachi, Taira, Iwaki-shi, Fukushima 970-8026, Japan

⁴National Research Institute of Fisheries Science, Japan Fisheries Research and Education Agency, 2-12-4 Fukuura, Kanazawa-ku, Yokohama 236-8648, Japan

(Received October 31, 2018; accepted in revised form July 2, 2019; published online October 25, 2019)

After direct discharges of highly contaminated water from Units 2 and 3 of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (1F) from April to May 2011, Kanda suggested that relatively small amounts of run-off of radionuclides from the 1F port into the Fukushima coastal region subsequently continued, on the basis of his estimation method. However, the estimation period was limited to up to September 2012, and there has been no report on the issue since that work. Therefore, this paper focuses on the discharge inventory from the 1F port up to June 2018. In the missing period, the Japanese government and Tokyo Electric Power Company Holdings have continued efforts to stop the discharge, and consequently, the radionuclide concentration in seawater inside the 1F port has gradually diminished. We show the monthly discharge inventory of ¹³⁷Cs up to June 2018 by two methods, i.e., Kanda's method partially improved by the authors and a more sophisticated method using Voronoi tessellation reflecting the increase in the number of monitoring points inside the 1F port. The results show that the former always yields overestimated results compared with the latter, but the ratio of the former to the latter is less than one order of magnitude. Using these results, we evaluate the impact of the discharge inventory from the 1F port into the coastal area and the radiation dose upon fish digestion.

KEYWORDS: Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, cesium 137, environment, 1F port, discharge inventory, Voronoi tessellation, coastal area, seawater concentration, radiation dose, fish digestion

¹ (国研)日本原子力研究開発機構 システム計算科学センター

² (国研)日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学部門

³ (国研)日本原子力研究開発機構 福島研究開発部門

⁴ (国研)水産研究・教育機構 中央水産研究所

* Corresponding author, E-mail: machida.masahiko@jaea.go.jp

† 現在, 東京大学 大気海洋研究所 (AORI, The University of Tokyo)

‡ 現在, 株式会社アトックス (Tokai Office, ATOX CO. LTD)

I. はじめに

東京電力ホールディングス(東電)・福島第一原子力発電所(1F)事故により, 放射性物質が環境中に放出され, その一部は大気拡散を通して地上および海上へと降下し

た^{1~3)}。セシウムは土壌粘土鉱物に強く固着する性質⁴⁾を有するため、地上に降下した放射性セシウムは土壌表層に残り、1F 周辺地域の高い空間線量率が維持される要因となった⁴⁾。一方、海上に降下した放射性核種は海水表面の放射性核種濃度を一時上昇させ、採取された表層魚は高い濃度を示したが、福島沖の沿岸流や海流等の特徴的海水流動に従い、太平洋上に広く拡散し、海水濃度は速やかに減少した^{5~8)}。

1F からの環境放出では、大気拡散以外にも汚染水が原子炉建屋内に大量に滞留したため、汚染水の海洋への直接流出が起こった⁹⁾。目視できた範囲では、2 号機取水口ピットからの流出が最大で、その後、3 号機からの流出があったほか、低濃度の汚染水の計画的排出等もあった。それらは、計画的排出を除きすべて 1F 港湾内に排出されたため、いったん、港湾内に滞留した後、港湾外すなわち太平洋へと拡散したと考えられる¹⁰⁾。本論文では、上記の 1F 港湾内に放出された種々の放射性核種の中でも、最も環境影響が重要な核種の 1 つである ^{137}Cs に着目し、港湾外へと流出したインベントリーについて、2011 年 4 月から 2018 年 6 月までのおよそ 7 年間に渡る変遷を推定した結果を報告する。また、その継続した流出による福島沿岸海洋環境への影響を評価した結果についても記す(沿岸海水への影響と人への被ばく量の簡単な推定等を行う)。

1F 事故初期の汚染水漏えいの後、国・東電は原子炉建屋内に滞留する汚染水を常時、処理可能とする体制を整える¹¹⁾と同時に、海洋への汚染水の流出を抑制する対策を打ち出し実行した¹¹⁾。その効果もあり、2011 年事故当初と

比べ、2018 年 8 月現在、港湾内の放射性セシウム (^{137}Cs) 濃度は、港湾護岸の中央部に位置する物揚場と呼ばれる測定点において、100,000 分の 1 程度に減少したことがモニタリング結果からわかる^{11,12)} (Fig. 1 参照)。その減少率は事故初期が最も速やかで、その後、緩やかとなったが減少する傾向は続いている。しかし、1F 港湾内の放射性核種濃度は、港湾外の濃度と比べていまだ高く、港湾内においても濃度勾配がある。この事実は、今後も 1F 港湾内外でのモニタリングを継続し、その濃度の空間変化や経時変化を注視していく必要があることを示唆している。

本論文では、半減期が 30 年と長く、比較的長期に渡り環境影響が大きい ^{137}Cs に着目し、1F 港湾からの放射性核種の流出量を港湾内のモニタリングデータをもとに推定する¹³⁾。これまでに、港湾内のデータを利用し推定した文献は、事故初期から 2012 年 9 月までの期間、 ^{137}Cs の流出量を推定した Kanda の論文¹³⁾のみであり、その後の文献報告はなく、論文の多くは港湾外からの推定の議論である^{6~8,14)}。したがって、筆者らは事故初期から現在(2018 年 6 月)までの 7 年間の流出量を Kanda¹³⁾と同様に 1F 港湾内から推定分析し、その環境影響について考察した。

本論文で取り扱ったデータは、東電が測定し公開した 1F 港湾内海水濃度データであり、推定に当たり採用した手法は以下の 2 つである。1 つ目は Kanda の論文¹³⁾にて 2011 年 4 月(4 月 3 日)から 2012 年 9 月末までの流出量推定を行った方法である¹³⁾。Kanda は、1F 港湾内の物揚場(In front of shallow draft quay)の ^{137}Cs 濃度を、港湾内を代表する ^{137}Cs 濃度とみなして、港湾全体のインベン

Fig. 1 Seven-year temporal variation of ^{137}Cs seawater concentration (Bq/L) at the monitoring point called “In front of shallow draft quay”, “West side in the port”, and “South side in the port” displayed in the right-hand-side insert figure. The left-hand-side insert figure is an enlarged view of a part of the main figure.

トリーを推定し、別途推定した港湾内外の海水交換率から港湾外への流出量を見積もった¹³⁾。本論文でもその方法を踏襲したが、Kanda が推定した期間以後は濃度が減少し、かつ変動も激しくなったことから、筆者らによる改良を加えた(II 章参照)。なお、Kanda の方法¹³⁾は物揚場を観測代表点とした時点で、陸側の比較的濃度の高い地点を代表点としたことから、港湾内の代表海水濃度を高く見積もっており、保守的立場の推定に相当する。実際、2013 年 8 月以降、港湾内の複数の地点での観測結果が報告され¹⁵⁾始めたことから、港湾内でも明瞭な空間分布があり、港湾内のインベントリーについては、2013 年 8 月以降、その分布をもとにより精度よく評価可能となった。したがって、本論文では、物揚場を港湾の代表点とする簡便な Kanda の方法から、各観測点の濃度データを考慮するボロノイ分割方法¹⁶⁾も採用して推定を行い、Kanda の方法による結果と比較する(III 章参照)。

以下、本論文の構成を記す。まず、次章(II 章)にて、1F 港湾内に対し、Kanda の方法を用いた場合の流出インベントリー計算法を示し、推定法としての課題とその改良点について記す。その後、改良を加えた改良版 Kanda の方法を用い、Kanda の論文以後、報告がない 2012 年 10 月～2018 年 6 月までの推定結果を追加しその経時変化を示し、過去 7 年の時系列トレンドの特徴等について言及する¹⁷⁾。III 章では、筆者らによる手法、すなわちボロノイ分割方法を用いたインベントリー解析手法¹⁶⁾を説明すると同時に、その手法を用いることで得られた推定インベントリー量の経時変化について議論する。IV 章では、得られた月ごとの推定インベントリーをもとに、流出総量として 2011 年以降の年度ごと流出量を記し、その流出により福島沿岸の濃度がどれほど増大するか等について議論し、環境や人への被ばく影響を簡単に評価する。

II. Kanda の方法による港湾からの流出 ¹³⁷Cs インベントリーの評価

本 II 章では、Kanda が用いた推定方法を中心に、まず本章 1 節にてその手法の問題と改良すべき点を示す。2 節では、改良した方法を用いて 2018 年 6 月まで推定した結果を報告する。3 節では、改良した方法による流出インベントリーの 7 年に渡る経時変化を分析し、その変化の要因について考察した結果等を記す。

1. Kanda の方法とその改良について

Kanda が論文にて用いた流出インベントリー推定方法の 2 つの要点を示す¹³⁾。1 つ目は事故初期の ¹³⁷Cs 濃度減少過程をもとに、港湾内海水の湾外海水との交換割合を推定した点である。2 つ目は物揚場(In front of shallow draft quay)と呼ばれるモニタリング地点(Fig. 1 参照)を 1F 港湾内の代表点として港湾内の総インベントリーを算出した点である。本論文では、この 2 つの点を踏襲する

が、2012 年以降の状況を鑑み、以下の改良を加えた。

筆者らの改良について説明する。Kanda が実施した物揚場と呼ばれる観測地点を 1F 港湾内濃度の代表値とした場合、I 章にて記したように「物揚場は港湾内の核種インベントリー推定に適切かどうか？」という問題が生じる。物揚場は陸に近く、その濃度は開渠部(Open channel)と呼ばれる矩形領域(Fig. 1 参照：シルトフェンスにより海水が滞留するため、他の港湾内領域と異なる挙動を示す)を除くと、港湾内の中心域と比べ比較的高く、推定インベントリーは常に過大評価となる可能性が指摘できる(Fig. 1 参照：他の 2 点(港湾内西側(West side in the port)および港湾内南側(South side in the port))の濃度の経時変化と比べて濃度は高い傾向がみとれる)。したがってインベントリー評価の精度向上には、港湾内の他の複数地点のモニタリングデータが必要であることがわかる。それらのデータを用い精度を向上させる試みについては、III 章にて報告する。以上、Kanda の方法は常に保守的立場からの推定であるが、極めて簡便で、環境影響の評価指針を立てる上で有用である(III 章にてその精度を議論する)。もう 1 つの問題点は、検出限界値以下が測定された場合の対処法である。Kanda が論文にてインベントリーを推定評価した事故初期においても、検出限界値を下回ることが度々あったが、その際、その未知の値を周囲の値をもとに内挿することで対処した¹³⁾。しかし、その当時の観測濃度は十分に高く推定量の精度に大きな問題は発生しなかったが、2012 年以降、観測濃度は大幅に低下し検出限界値を下回る頻度が増加した上、日々の変動幅も大きくなったため、推定の精度に問題が発生することがわかる(Fig. 1 参照)。実際、Fig. 2 に月ごとに観測値が限界値を下回った頻度割合(限界値以下が観測される回数/測定回数)を示す。2012 年まで、限界値以下となる頻度は比較的少ないが、その後、時間経過とともにその頻度が増大したことがわかる。その状況に対し、東電は随時、検出限界値を下げ、その頻度を減少させる努力をしている。しかし、濃度は常に減少傾向にあると同時に濃度自身の変動も大きくなるため、推定精度の問題は継続して存在してきた。

上記、2 つ目の問題を解決するため、筆者らは検出限界値を下回った場合、真の濃度値が検出限界値とゼロとの間にあることをもとに、真の値が存在する区間を推定するという方法で対処することとした。つまり、限界値以下が観測された際、検出限界値を最大値、ゼロを最小値とする区間内に真値があるとして、最大値と最小値の 2 値を用いて、月平均や年平均を推定した。以降、この方法を改良版 Kanda の方法と称することとする。改良版 Kanda の方法による推定値は一意に定まらず、最大-最小の区間幅を有する推定となる。つまり、区間内に真の値がある。

Fig. 2 Temporal variation of the monthly frequency in which the measurement result was beneath the detection limit whose application period is displayed along the upper arrows

Table 1 Monthly estimation of discharge inventory of ^{137}Cs (Bq/month) using the Kanda's method partly improved by authors for the period from April 2011 to June 2018

year													
					Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
2011	Max				2.3E+15	1.4E+13	4.0E+12	2.3E+12	2.0E+12	9.7E+11	8.3E+11	6.9E+11	4.4E+11
	Min				2.3E+15	1.4E+13	4.0E+12	2.3E+12	2.0E+12	9.7E+11	8.3E+11	6.9E+11	4.4E+11
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
2012	Max	5.8E+11	2.8E+11	1.7E+11	2.7E+11	2.4E+11	2.3E+11	2.3E+11	2.6E+11	1.6E+11	1.5E+11	1.5E+11	1.5E+11
	Min	5.8E+11	2.8E+11	1.7E+11	2.7E+11	2.4E+11	2.3E+11	2.3E+11	2.6E+11	1.6E+11	1.5E+11	1.5E+11	1.5E+11
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
2013	Max	1.2E+11	1.1E+11	1.4E+11	7.5E+10	5.6E+10	8.3E+10	1.0E+11	1.5E+11	1.3E+11	1.4E+11	1.2E+11	1.8E+11
	Min	1.2E+11	1.1E+11	1.4E+11	7.5E+10	5.6E+10	8.3E+10	1.0E+11	1.5E+11	1.2E+11	1.4E+11	1.2E+11	1.8E+11
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
2014	Max	9.3E+10	8.2E+10	5.3E+10	4.3E+10	5.5E+10	6.6E+10	6.3E+10	9.0E+10	8.0E+10	5.7E+10	3.4E+10	2.6E+10
	Min	9.1E+10	8.2E+10	5.3E+10	3.6E+10	5.5E+10	6.0E+10	6.2E+10	8.9E+10	8.0E+10	5.3E+10	3.0E+10	2.2E+10
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
2015	Max	4.4E+10	6.0E+10	5.9E+10	5.9E+10	6.9E+10	5.8E+10	7.6E+10	7.4E+10	6.9E+10	3.0E+10	2.8E+10	1.7E+10
	Min	2.1E+10	1.8E+10	3.9E+09	2.0E+10	3.0E+10	2.3E+10	4.4E+10	4.9E+10	4.3E+10	3.0E+10	2.8E+10	1.1E+10
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
2016	Max	1.6E+10	1.3E+10	1.6E+10	2.1E+10	1.8E+10	4.2E+10	2.3E+10	4.7E+10	3.0E+10	1.8E+10	1.9E+10	1.4E+10
	Min	1.0E+10	6.1E+09	9.2E+09	1.7E+10	1.5E+10	4.1E+10	2.0E+10	4.7E+10	2.9E+10	1.6E+10	1.8E+10	8.8E+09
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
2017	Max	1.7E+10	2.1E+10	1.5E+10	1.4E+10	1.6E+10	2.2E+10	2.2E+10	2.2E+10	2.9E+10	2.7E+10	1.8E+10	1.3E+10
	Min	1.3E+10	1.9E+10	1.1E+10	7.8E+09	8.9E+09	2.0E+10	2.0E+10	2.0E+10	2.8E+10	2.6E+10	1.4E+10	6.8E+09
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun						
2018	Max	1.5E+10	1.2E+10	1.6E+10	1.8E+10	2.5E+10	3.1E+10						
	Min	9.4E+09	2.6E+09	1.2E+10	1.4E+10	2.5E+10	3.0E+10						

2. 改良版 Kanda の方法による 2018 年 6 月までの流出インベントリー評価

本節では、前節(II 章 1 節)にて記した改良版 Kanda の

方法を用いて流出インベントリーを推定した結果を示す。まず、前節にて説明した Kanda の方法のインベントリー評価式を以下に記す。Kanda の論文¹³⁾に従うと 1 日当た

Fig. 3 Main panel: Seven-year temporal variation of monthly estimation of ^{137}Cs discharge inventory from the 1F port by using Kanda's method partly improved by authors for the period from April 2011 to June 2018, and inserted one: focused variation of the main panel

りの港湾外への核種流出量は以下の式で与えられる。

$$\begin{aligned} & \text{物揚場の核種濃度 [Bq/L]} \\ & \times 1.88 \cdot 10^9 [\text{港湾内海水容積 (L)}] \\ & \times 0.44 [\text{交換率 (/day)}] \end{aligned} \quad (1)$$

上記、港湾内海水容積 (Fig. 1 参照 1F 港湾内開渠部を除く領域) および交換率については、本論文でもそのまま利用する。なお、交換率 (/day) については、事故初期の高濃度海水が示す明瞭な減少傾向から推定したため、実測結果の裏付けがあることを付記する。本 (1) 式を用い、限界値以上の値が得られた場合はオリジナルの方法と同じくその観測濃度を代入する¹³⁾ 一方、限界値以下の場合には前節 (II 章 1 節) にて記したように、限界値 (最大値) とゼロ (最小値) を上式に代入し、区間幅を与えるため 2 値を取得する。こうして得られた月単位の流出インベントリーを **Table 1** に、得られた推定流出インベントリーの経時変化グラフを **Fig. 3** に記す。Table 1 のすべての月単位の推定値は、最大値および最小値の 2 値を有する。

3. 流出インベントリー (改良版 Kanda の方法による推定) の変動要因分析

Figure 3 で示した推定流出インベントリー量のおおよそ 7 年分の経時変化について、その特徴的な変動を分析する。まず、事故初期に高濃度汚染水が流出した際の減衰は迅速で、その迅速な減衰は海水交換による港湾外部への輸送によって生じたと考えられる。しかし、その減衰過程は事故前の状態 (流出インベントリーがゼロ) へと単調に減少するのではなく、あるインベントリー量レベルまで減少した後は、極めてゆっくりとした減衰過程が支配していることがわかる。もし背景に“常に一定”の定常流出インベントリーがあると仮定した場合、その遅い減衰は単純には物理半減期により支配されると考えられるが、その遅い減衰

も物理半減期より十分に早いことが Fig. 3 (挿入図) の比較結果からわかる。これは、定常流出のソース自体のインベントリーがなんらかの要因により減少したか、港湾内へと定常流出するフラックスが抑制されたかのどちらかである。すなわち、滞留汚染水そのものの濃度が低減する場合が考えられる一方、海底土被覆、遮水壁閉合等の対策により、港湾内に流出するインベントリーが抑制されたとも考えられる。しかしながら、排水路の港湾外から港湾内への付け替え等もあり、それらの抑制効果を相殺する施策もあるため、減少傾向を一意に抑制効果と対応付けることの難しさがある。また、事故初期から十分に減少した 2016 年以降は、港湾内海水濃度の変動幅は激しく、特に季節による変動が明瞭に存在することがわかる (Fig. 3: 挿入図参照)。季節変動については、III 章にて考察する。

III. ボロノイ分割によるインベントリー推定

本 III 章では、Kanda の方法¹³⁾ が物揚場観測値を港湾内の代表点としたことで、常に過大評価となることから、評価精度を向上させることを目的として、物揚場地点以外の複数の地点の観測値も活用し推定する手法について説明し、その手法を用いて推定した結果を示す。実際、2013 年 8 月以降、物揚場だけでなく、港湾内の各地点で海水濃度が観測され公開され始めたこと¹⁵⁾ を受け、それらの地点も含め空間分布を考慮した推定が可能となった。本論文では、それらの複数の観測点を中心点としたボロノイ分割¹⁶⁾ を港湾内で行い、ボロノイ面内平均水深との積により得られるボロノイ多角柱内のインベントリーを推定し、それらを足し合わせたものを港湾内総インベントリーとする。そして、そのインベントリー推定値に港湾内の日ごとの海水交換率 (Kanda¹³⁾ が事故初期の濃度減衰より推定した 0.44 (/day) : (1) 式参照) を乗じることで、港湾外への

流出量を推定する。本章 1 節では、本方法の詳細を説明し、2 節では推定インベントリーの経時変化(2011 年 4 月～2018 年 6 月)を示し、改良版 Kanda の方法による推定量と比較する。3 節では、本手法で推定したインベントリーの経時変化を分析し考察した結果を示す。なお、Fig. 1 にてわかるように、港湾内各点の濃度は変動するものの、港湾内各点間には一定の濃度勾配があり、かつおおよそ定常的状态にあることがわかる。この事実より各点を中心としたボロノイ各多角柱に対して一律に海水交換率をかけるという操作はおおよそ妥当であることがわかる。

1. ボロノイ分割を利用したインベントリー推定手法

まず、1F 港湾内における海水濃度の観測体制がどう変化したか、その経時変化について記す。2011 年 4 月 3 日～2013 年 5 月末までは、港湾内の観測地点数は少なく、物揚場(In front of shallow draft quay)と港湾口(Port entrance)の 2 点のみであった¹⁵⁾。その後、2013 年 8 月以降、観測地点は計 8 点に増え、港湾内の濃度分布について、おおよその情報が入手可能となった¹⁵⁾。Fig. 4 は、そのモニタリングの歴史を 1F 港湾内の模式図上で示す。

Figure 4 から分かるように、Kanda¹³⁾が流出インベントリーを推定した時期は、観測点数が少なく、物揚場を港湾内濃度の代表点とせざるを得ない一方、2013 年 8 月以降は港湾内濃度がどのように分布しているかが把握できる体制となっている。したがって、本論文では、2013 年 8 月以降の各観測地点を、その付近を代表する点とすべく、ボロノイ分割¹⁶⁾を行い、各ボロノイ多角柱内のインベントリーを多角柱ごとに計算し、その総和を港湾内のインベントリーとした。その分割の様子は Fig. 4(b) に示してある。なお、2013 年 6 月以前については、観測点数が少ないため、Fig. 4(b)中の各ボロノイ多角柱に対し、物揚場のデータを Fig. 4(a)に示したように割り振った。したがって、2013 年 6 月以前は、Kanda の方法と同等となる一方、2013 年 8 月以降は、複数の各ボロノイ多角柱のインベントリーの総和をもとにした推定となる。以上から、

2013 年 8 月以降、港湾内のインベントリー評価精度は向上したと判断できる。

2. ボロノイ分割を利用する推定方法による流出インベントリーの経時変化

ボロノイ分割方法により総流出インベントリーを推定して得られた月単位の流出インベントリーを Table 2 に、その結果の時系列変化を改良版 Kanda の方法による結果とともに Fig. 5 に示す。Fig. 5 からわかるように、事故初期の高濃度海水が観測されていた時期を除いて最大-最小の区間が明瞭に得られている。これは、II 章に記したように、各測定地点の観測 ^{137}Cs 濃度がしばしば検出限界値以下となったため、その真値は限界値とゼロの間にあることを示している。なお、ボロノイ多角柱は各々が最大と最小値を取り得るため、その最大値だけの総和と最小値だけの総和を取ることで、港湾内全体のインベントリーの最大および最小値を取得した。Fig. 5 から明らかなように、ボロノイ分割による推定の方が、改良版 Kanda の方法による推定よりも十分に小さい値を示す。これは、港湾口付近の濃度が物揚場と比較して濃度が小さく、港湾内の推定インベントリー量が小さくなるためである。しかしながら、改良版 Kanda の方法を用いた際のインベントリー量と、ボロノイ分割法による量と比べると、推定域中央値(改良版 Kanda の方法)/推定域中央値(ボロノイ分割方法)はおおよそ一桁の範囲内にあり、改良版 Kanda の方法も、その簡便さから有用であることがわかる(推定のオーダーはおおよそ等しい)。

3. 流出インベントリー (ボロノイ分割方法による推定)の変動要因分析

本章 3 節では、流出インベントリーの経時変化傾向について、その変動要因を分析する。ボロノイ分割方法による推定量は、一般に改良版 Kanda の方法より小さいが、Fig. 5 からわかるように最大-最小区間がオーバーラップすることも観察される。これは、ボロノイ分割方法を用いた複数の地点で検出限界値以下が計測される際、最大値はより過大に、最小値はより過小に評価されがちとなるためで

Fig. 4 Changing history of monitoring points inside the 1F port: (a) from April 2011 to May 2013 and (b) from August 2013 to July 2018

Table 2 Monthly estimation of discharge inventory of ^{137}Cs (Bq/month) using Voronoi tessellation method for the period from April 2011 to June 2018

year													
					Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
2011	Max				$1.9\text{E}+15$	$1.1\text{E}+13$	$3.1\text{E}+12$	$1.6\text{E}+12$	$1.4\text{E}+12$	$7.7\text{E}+11$	$6.3\text{E}+11$	$5.3\text{E}+11$	$3.3\text{E}+11$
	Min				$1.9\text{E}+15$	$1.1\text{E}+13$	$3.1\text{E}+12$	$1.6\text{E}+12$	$1.4\text{E}+12$	$6.9\text{E}+11$	$6.3\text{E}+11$	$5.3\text{E}+11$	$3.3\text{E}+11$
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
2012	Max	$4.3\text{E}+11$	$2.5\text{E}+11$	$1.3\text{E}+11$	$2.1\text{E}+11$	$1.7\text{E}+11$	$1.6\text{E}+11$	$1.7\text{E}+11$	$1.9\text{E}+11$	$1.3\text{E}+11$	$1.1\text{E}+11$	$1.2\text{E}+11$	$1.1\text{E}+11$
	Min	$4.3\text{E}+11$	$2.4\text{E}+11$	$1.1\text{E}+11$	$2.1\text{E}+11$	$1.7\text{E}+11$	$1.6\text{E}+11$	$1.5\text{E}+11$	$1.9\text{E}+11$	$1.3\text{E}+11$	$1.1\text{E}+11$	$1.1\text{E}+11$	$1.1\text{E}+11$
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
2013	Max	$1.1\text{E}+11$	$8.9\text{E}+10$	$1.1\text{E}+11$	$6.0\text{E}+10$	$4.3\text{E}+10$	$5.7\text{E}+10$	$4.6\text{E}+10$	$6.3\text{E}+10$	$3.7\text{E}+10$	$7.4\text{E}+10$	$4.1\text{E}+10$	$7.8\text{E}+10$
	Min	$1.1\text{E}+11$	$8.0\text{E}+10$	$9.5\text{E}+10$	$5.6\text{E}+10$	$4.1\text{E}+10$	$4.9\text{E}+10$	$1.5\text{E}+10$	$4.7\text{E}+10$	$2.8\text{E}+10$	$7.1\text{E}+10$	$3.2\text{E}+10$	$7.3\text{E}+10$
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
2014	Max	$4.7\text{E}+10$	$6.2\text{E}+10$	$3.6\text{E}+10$	$3.6\text{E}+10$	$2.8\text{E}+10$	$2.5\text{E}+10$	$3.0\text{E}+10$	$3.1\text{E}+10$	$3.7\text{E}+10$	$4.7\text{E}+10$	$4.1\text{E}+10$	$2.7\text{E}+10$
	Min	$4.2\text{E}+10$	$5.6\text{E}+10$	$2.7\text{E}+10$	$2.2\text{E}+10$	$7.5\text{E}+09$	$4.6\text{E}+09$	$1.8\text{E}+10$	$2.0\text{E}+10$	$2.4\text{E}+10$	$3.9\text{E}+10$	$2.8\text{E}+10$	$1.2\text{E}+10$
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
2015	Max	$2.4\text{E}+10$	$2.9\text{E}+10$	$2.6\text{E}+10$	$3.2\text{E}+10$	$3.6\text{E}+10$	$4.1\text{E}+10$	$4.7\text{E}+10$	$5.2\text{E}+10$	$5.7\text{E}+10$	$2.3\text{E}+10$	$2.6\text{E}+10$	$1.5\text{E}+10$
	Min	$4.3\text{E}+09$	$9.3\text{E}+09$	$5.7\text{E}+09$	$1.2\text{E}+10$	$1.6\text{E}+10$	$2.6\text{E}+10$	$3.3\text{E}+10$	$3.9\text{E}+10$	$4.9\text{E}+10$	$1.8\text{E}+10$	$2.2\text{E}+10$	$7.8\text{E}+09$
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
2016	Max	$1.4\text{E}+10$	$1.3\text{E}+10$	$1.2\text{E}+10$	$1.6\text{E}+10$	$1.3\text{E}+10$	$2.7\text{E}+10$	$1.4\text{E}+10$	$4.3\text{E}+10$	$4.8\text{E}+10$	$1.5\text{E}+10$	$1.5\text{E}+10$	$1.4\text{E}+10$
	Min	$7.5\text{E}+09$	$7.1\text{E}+09$	$5.2\text{E}+09$	$1.1\text{E}+10$	$7.3\text{E}+09$	$2.5\text{E}+10$	$1.2\text{E}+10$	$4.2\text{E}+10$	$4.7\text{E}+10$	$1.3\text{E}+10$	$1.4\text{E}+10$	$1.2\text{E}+10$
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
2017	Max	$1.3\text{E}+10$	$1.4\text{E}+10$	$1.0\text{E}+10$	$1.1\text{E}+10$	$1.2\text{E}+10$	$1.7\text{E}+10$	$1.4\text{E}+10$	$1.7\text{E}+10$	$1.8\text{E}+10$	$1.7\text{E}+10$	$9.5\text{E}+09$	$8.2\text{E}+09$
	Min	$1.0\text{E}+10$	$1.3\text{E}+10$	$7.5\text{E}+09$	$7.9\text{E}+09$	$9.0\text{E}+09$	$1.5\text{E}+10$	$1.3\text{E}+10$	$1.4\text{E}+10$	$1.7\text{E}+10$	$1.6\text{E}+10$	$6.3\text{E}+09$	$4.1\text{E}+09$
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun						
2018	Max	$8.9\text{E}+09$	$7.6\text{E}+09$	$1.2\text{E}+10$	$9.4\text{E}+09$	$1.2\text{E}+10$	$1.4\text{E}+10$						
	Min	$5.1\text{E}+09$	$2.6\text{E}+09$	$8.7\text{E}+09$	$6.1\text{E}+09$	$9.4\text{E}+09$	$1.2\text{E}+10$

Fig. 5 Main panel: Seven-year temporal variation of monthly estimation of ^{137}Cs discharge inventory from the 1F port by using Voronoi tessellation method with Kanda's method (minimum estimation only) for the period from April 2011 to June 2018 and inserted one: focused variation of the main panel

ある。しかし、ボロノイ分割方法の最小値が改良版 Kanda の方法の最小値を上回ることがほとんどなく、精度は向上していることがわかる (Fig. 5 参照)。

ボロノイ分割方法を用いた結果の経時変化傾向だが、その傾向は II 章 3 節にて、改良版 Kanda の方法において議

論したものと定性的には等しいが、より変動が激しい(最大-最小区間幅も一般に広い)ことがわかる。これは推定の際、港湾の中央部付近の濃度が低い観測点を多数含むためであり、変動はより明瞭に観察される。なお、その変動は夏に推定区間域が高く冬に低くなる傾向があり、河川等で

の ^{137}Cs 溶存成分の季節変動¹⁸⁾とよく似ている。河川において溶存 ^{137}Cs 濃度の季節変動を引き起こす要因の1つとして、夏季の水温上昇によって ^{137}Cs を保持していた有機物の分解が促進され、水中の溶存 ^{137}Cs が増加したことが指摘されている¹⁸⁾。港湾や沿岸域は、外洋域とは異なり温度変動への応答性が高く同様の機構が働き得るが、 ^{137}Cs のキャリアとなる物質の供給経路や動態については不明であり、今後の詳細な調査が望まれる。港湾内は準閉鎖的であることから ^{137}Cs 濃度の季節変動要因が解明されれば、河川等と異なり様々な抑制手段が実行可能となるため、その要因調査は1Fからの海洋流出の抑制に大きく寄与することが期待される。

IV. 推定流出インベントリーが福島沿岸に与える影響および推定被ばく量

II, III 章にて得られた結果をもとに、年度単位の流出推定量の各手法間の比較結果を **Table 3** に示す。Table 3 から、事故初年度の流出量の大きさの推定量は突出して大きく、両方法間の差は小さい。しかし、2年目以降は、両方法での推定量を比較すると、ボロノイ分割方法の区間中央値は改良版 Kanda の方法の区間中央値の 50~85% 程度であることがわかる。

以下、ボロノイ分割方法の年度ごとの推定流出量の変化に着目すると、2011 年当時と比べ、2017 年には、およそ 10,000 分の 1 に流出インベントリーが減少したことがわかる。初期の減衰は極めて迅速であった一方、その後の緩やかな減衰過程は、 ^{137}Cs の半減期より十分に早く、抑制対策の効果がみとれる。以下では具体的にその効果について考察する。まず 1F 港湾という状況を考えると、直接流出以後の流出過程として、下記の 3 つの過程が考えられる。

- ① 地下水(汚染水を含む)の港湾内への定常的流出
- ② 港湾内海底に沈着および付着した海底土からの溶出

による定常的流出

- ③ 1F 地上各面からの雨水等の排水を介した港湾内への流出

以下、その 3 つについて各々考察する。①については、2015 年 10 月 26 日の海側遮水壁閉合¹⁹⁾により、相当量のインベントリー減少が明瞭にみられた(Fig. 1 からその時期に海水濃度の不連続な減少がみられる)。その減少は月間流出量や年間流出量の減少にも寄与しているが、7 年間の経時変化において、大きく支配的な減少とはなっていない。②についても、その効果は大きいことが推定されるが、海底土被覆が港湾全体に及ぶ 1 次工事が 2015 年 4 月末に終了²⁰⁾したにも関わらず、明瞭な変化はみられていない。その一方、③については、2015 年 5 月から港湾内への付け替え工事が行われ²¹⁾、港湾内インベントリーの明瞭な増大がみられるはずだが、Fig. 5 からわかるように、これも明瞭にみえていない。したがって、海底土被覆施工終了とともに排水路付け替えが実施されたことから、②と③の効果はおおよそ相殺したものと考えられる。したがって、現在、①②に対する抑制対策は、ほぼ一段落したことから、今後は明らかに③への積極的抑制対策を図ることが望まれる。

最後に、**Fig. 6** に示す福島沿岸域の全海水に対して、

Fig. 6 Schematic figure for the coastal region around the 1F port, in which the white line roughly indicates 20 km range distant from the land and median values of measured seawater concentrations of ^{137}Cs are displayed for the corresponding areas [Map data: Google, ZENRIN].

Table 3 Comparison of annual estimations of ^{137}Cs discharge inventory (Bq/year) from the 1F port by using two methods, one of which is Kanda's method partly improved by authors and another of which uses Voronoi tessellation method

Year	Voronoi		Kanda	
	Min	Max	Min	Max
2011	1.9E+15	1.9E+15	2.3E+15	2.3E+15
2012	2.1E+12	2.2E+12	2.9E+12	2.9E+12
2013	7.0E+11	8.1E+11	1.4E+12	1.4E+12
2014	3.0E+11	4.5E+11	7.1E+11	7.4E+11
2015	2.4E+11	4.1E+11	3.2E+11	6.4E+11
2016	2.0E+11	2.5E+11	2.4E+11	2.8E+11
2017	1.3E+11	1.6E+11	1.9E+11	2.4E+11
2018 (up to June)	4.4E+10	6.4E+10	9.2E+10	1.2E+11

一例として 2014 年度の流出インベントリーが与える影響について考察し、その環境影響を簡単に評価する。Fig. 6 に示す 1F 港湾を中心とした南北 100 km 内かつ沿岸 20 km 内の沿岸域を考えると、その面積はおおよそ $2 \times 10^9 \text{ m}^2$ ($100 \text{ km} \times 20 \text{ km}$) であり、その海域のおおよその最大水深 ($\sim 100 \text{ m}$) を考慮して全海水容量を求めると、その領域にはおおよそ $1 \times 10^{11} \text{ m}^3$ ($1 \times 10^{14} \text{ L}$) の海水があることがわかる。この海域でのバックグラウンドの ^{137}Cs 濃度は $\sim 2.0 \text{ mBq/L}$ (事故前の海水濃度に相当) であるが、事故後は 2013~2015 年の間、おおよそ 14.0 mBq/L 程度で維持され²²⁾、その後、減衰傾向にはあるが、その減衰は緩慢であることが知られている (一方、20 km 以東は事故後もおおよそバックグラウンドレベルを維持^{23,24)})。この海域に 1 例として、2014 年の 1F 港湾からの流出 ^{137}Cs インベントリー ($3.0 \sim 4.5 \times 10^{11} \text{ Bq}$: Table 3 参照) が一様に拡散し滞留すると仮定した場合 (実際にはその範囲以上に十分に拡散混合する²⁵⁾ ことが知られており、保守的な仮定である) の寄与を考えると、バックグラウンド ($\sim 2.0 \text{ mBq/L}$) に加えて $3.0 \sim 4.5 \text{ mBq/L}$ 程度の濃度上昇が見込めるが、その沿岸海域のインベントリーを 1F 港湾からの流出インベントリーのみで維持することは困難であることがわかる (おおよそ 14.0 mBq/L 程度の濃度が観測されている事実より)。したがって、1F 港湾以外のインプットが存在し、河川および海底土その他の沿岸に供給される流出源を考える必要がある。最近、沿岸地下水の ^{137}Cs 濃度が予想外に高く、沿岸へのインベントリーとして重要な寄与を示すことが指摘されている²²⁾ こともあり、沿岸の詳細なインベントリー評価が今後、重要な研究になると位置付けられる。

次に本海域の ^{137}Cs から人に与える影響を簡単に考えてみる。主要な影響は海水魚を食した場合の内部被ばくであることを鑑み、その内部被ばく量について考える。まず、比較対象として、バックグラウンドレベルの場合の年間被ばく量については、 $1.3 \times 10^{-4} \text{ mSv}$ と推定される。これは、 ^{137}Cs に対して、1 Bq 当たり成人 $1.3 \times 10^{-5} \text{ mSv}$ (3 歳児までは $2.0 \times 10^{-5} \text{ mSv}$) の被ばく量があるため^{23,26)}、魚への移行係数を仮に一律 100 とし²⁷⁾、一年間に上記沿岸域の魚のみを食した場合 (年間 50 kg を食すと仮定)、 $2.0 \text{ mBq/kg} \times 100 \times 50 \text{ kg} = 10 \text{ Bq}$ を摂取することとなり $1.3 \times 10^{-4} \text{ mSv}$ の被ばく量となるためである。これをもとに 2014 年の 1F 港湾由来の ^{137}Cs のみの被ばく量を推定すると、その 1.5~2.3 倍となり、2014 年の 1F 港湾流出 ^{137}Cs インベントリーからの被ばく量は $1.95 \sim 2.93 \times 10^{-4} \text{ mSv}$ となることが分かる。以上、2014 年の 1F 港湾からの流出 ^{137}Cs インベントリーのみによる魚食による被ばく量は自然放射線 (^{40}K および U , Th 系列の元素由来) からの内部被ばく量 0.3 mSv/year と比較しても、おおよそ 1,000 分の 1 と低く、ほとんど無視できる量であることがわかる^{23,26)}。なお、海産物に関しては、 ^{137}Cs および

^{134}Cs の総和に関する内部被ばく量から 100 Bq/kg の基準値が設定されており、上記の 1F 港湾流出 ^{137}Cs インベントリーからの魚への寄与は $0.3 \sim 0.45 \text{ Bq/kg}$ であり、その基準値をはるかに下回る寄与となっていることがわかる。

しかし、この評価は、南北 100 km および沖合 20 km 内の海域に一様に拡散・滞留したとする仮定の下、評価した結果であり、海水の移流・拡散の非一様性により、濃度の非一様な分布ができた場合を想定していないことを注意する。高濃度の地点が局在する場合には、高い濃度の魚および海産物が稀に出現することもあり、評価は簡単ではない。したがって、今後は放射能濃度の分布に注視しつつ、高い濃度を有すると推定される魚等の分散を防ぐ必要がある²⁸⁾。実際、1F 港湾内からの海水魚の移動抑制対策が取られており^{29,30)}、2015 年 4 月以降、基準値 100 Bq/kg-wet を超えた例は国および県のモニタリング調査では一例も観測されていない^{31,32)} (ただし、東電の調査によると、港湾から出てきたと推定される魚にて一部超過がみられた^{33,34)}。しかし、港湾内由来との断定は困難である)。しかしながら、濃度の空間分布についてはいまだに 1F 港湾内が高く、港湾外へと濃度勾配がみられることから、今後も海水濃度だけでなく海水魚のモニタリングを続け、濃度分布とその変遷について注視していく必要がある。

V. 結 論

本論文では、1F 港湾内から港湾外に流出する ^{137}Cs インベントリーを推定し、2018 年 6 月時点までの 7 年間の変化を推定分析した。推定方法としては、改良版 Kanda の方法とボロノイ分割方法を採用し両者を比較した。前者は物揚場を港湾代表点とする一方、後者は港湾内の観測点すべてを用いて評価するため、前者は、ほぼ常に過大評価となるが、その比 (前者/後者) は 1 ケタ以内に収まり、前者も十分に有用であることがわかった。また、年度を追うごとに、海水濃度は減衰し、検出限界値以下と観測される頻度が増えており、限界値とゼロの間に真の値があることをもとに、両者ともに最大-最小の区間幅を有する推定とした。これらの結果をもとに 7 年間の経時変化を分析すると、事故初期の海洋拡散による減衰過程は非常に早い一方、わずかな定常的流出を抑制することの困難さがわかる。しかし、その減衰過程は物理半減期よりは十分に早く、現在は他の環境 (河川等) と同様に季節変動がみられる等、環境因子の影響が明瞭にみられるようなフェーズに入ったものと判断できる。また、上記結果をもとに年間インベントリーを用いて環境影響を調べた結果、1F からのインベントリーだけで、沿岸濃度を維持するのは困難であり、支配的要因が他にもあることがわかる。さらに、1F 港湾から流出するインベントリーが沿岸域に一様に拡散・滞留したと仮定した場合、その内部被ばく量への寄与は極めて低いことが推定された。

—参考文献—

- 1) H. Yamazawa, S. Hirao, “Impacts of Fukushima Daiich NPP accident through atmospheric environment,” *J. At. Energy Soc. Jpn.*, **53**, 479–483 (2011), [in Japanese].
- 2) M. Chino, H. Nakayama, H. Nagai *et al.*, “Preliminary estimation of release amounts of ^{131}I and ^{137}Cs accidentally discharged from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant into the atmosphere,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **48**, 1129–1134 (2011).
- 3) G. Katata, M. Chino, T. Kobayashi *et al.*, “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 (2015).
- 4) M. Okumura, S. Kerisit, I. C. Bourg, L. N. Lammers, T. Ikeda, M. Sassi, K. M. Rosso, M. Machida, “Radiocesium interaction with clay minerals: Theory and simulation advances Post-Fukushima,” *J. Environ. Radioact.*, **189**, 135–145 (2018).
<https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.03.011>.
- 5) M. Nakano, “Long-term impact on the marine environment—Simulation of the marine dispersion of released radionuclides from Fukushima-daiichi nuclear power plant and estimation of internal dose from marine products,” *J. At. Energy Soc. Jpn.*, **53**, 559–563 (2011), [in Japanese].
- 6) H. Kawamura, T. Kobayashi, A. Furuno, T. In, Y. Ishikawa, T. Nakayama, S. Shima, T. Awaji, “Preliminary numerical experiments on oceanic dispersion of ^{131}I and ^{137}Cs discharged into the ocean because of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant disaster,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **48**, 1349–1356 (2011).
- 7) T. Kobayashi, H. Nagai, M. Chino, H. Kawamura, “Source term estimation of atmospheric release due to the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident by atmospheric and oceanic dispersion simulations,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **50**, 255–264 (2013).
- 8) D. Tsumune, T. Tsubono, M. Aoyama, K. Hirose, “Distribution of oceanic ^{137}Cs from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant simulated numerically by a regional ocean model,” *J. Environ. Radioact.*, **111**, 100–108 (2012).
- 9) Nuclear Emergency Response Headquarters Government of Japan, *Report of Japanese Government to the IAEA Ministerial Conference on Nuclear Safety – The Accident at TEPCO’s Fukushima Nuclear Power Stations*, Prime Minister of Japan and His Cabinet, 2011 Jun., [Internet], http://www.kantei.go.jp/foreign/kan/topics/201106/iaea_houkokusho_e.html (cited 2018 October 24).
- 10) K. Buesseler, M. Dai, M. Aoyama *et al.*, “Fukushima Daiichi-Derived Radionuclides in the ocean: Transport, fate, and impacts,” *Annu. Rev. Mar. Sci.*, **9**, 173–203 (2017).
<https://doi.org/10.1146/annurev-marine-010816-060733>.
- 11) K. Yamashita, “Fukushima Daiichi: Post accident countermeasures and mid-and-long-term action plan,” *J. At. Energy Soc. Jpn.*, **54**, 381–385 (2012), [in Japanese].
- 12) Tokyo Electric Power Company Holdings, 福島第一原子力発電所周辺の放射性物質の分析結果, Tokyo Electric Power Company Holdings, [in Japanese], [Internet], <http://www.tepco.co.jp/decommission/data/analysis/index-j.html> (cited 2018 October 26).
- 13) J. Kanda, “Continuing ^{137}Cs release to the sea from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant through 2012,” *Biogeosciences*, **10**, 6107–6113 (2013).
<https://doi.org/10.5194/bg-10-6107-2013>.
- 14) H. Takata, M. Kusakabe, N. Inatomi, T. Ikenoue, K. Hasegawa, “The contribution of sources to the sustained elevated inventory of ^{137}Cs in offshore waters east of Japan after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station accident,” *Environ. Sci. Technol.*, **50**, 6957–6963 (2016).
- 15) Tokyo Electric Power Company Holdings, 福島第一原子力発電所港湾内・外海域のモニタリング強化について, Tokyo Electric Power Company Holdings, 2013 Aug. 5, [in Japanese], [Internet], http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2013/images/handouts_130805_03-j.pdf (cited 2018 October 24).
- 16) A. J. Sinclair, G. H. Blackwell, *Applied Mineral Inventory Estimation*, Cambridge University Press, Cambridge, ISBN 0-521-79103-0 (2006).
- 17) S. Otsuka, T. Kobayashi, M. Machida, “Challenges for enhancing Fukushima environmental resilience (7); Behavior and abundance of radiocesium in the coastal area off Fukushima,” *J. At. Energy Soc. Jpn.*, **59**, 659–663 (2017), [in Japanese].
- 18) T. Nakanishi, K. Sakuma, “Trend of ^{137}Cs concentration in river water in the medium term and future following the Fukushima nuclear accident,” *Chemosphere*, **215**, 272–279 (2019).
<https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2018.10.017>.
- 19) Tokyo Electric Power Company Holdings, 福島第一原子力発電所 海側遮水壁閉合作業完了について, Tokyo Electric Power Company Holdings, 2015 Oct. 26, [in Japanese], [Internet], http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2015/images/handouts_151026_06-j.pdf (cited 2018 October 24).
- 20) Tokyo Electric Power Company Holdings, 福島第一原子力発電所港湾内海底土被覆工事(その2)の実施状況, Tokyo Electric Power Company Holdings, 2016 Dec. 26, [in Japanese], [Internet], http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2016/images2/handouts_161226_17-j.pdf (cited 2018 October 30).
- 21) Tokyo Electric Power Company Holdings, 構内排水路の対策の進捗状況について(K排水路対応状況), Ministry of Economy, Trade and Industry, 2016 Mar. 31, [in Japanese], [Internet], http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2016/pdf/0331_3-6c.pdf (cited 2018 October 31).
- 22) V. Sanial, K. O. Buesseler, M. A. Charette, S. Nagao, “Unexpected source of Fukushima-derived radiocesium to the coastal ocean of Japan,” *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **114**(42), 11092–11096 (2017). DOI: 10.1073/pnas.1708659114.

- 23) P. P. Povinec, K. Hirose, "Fukushima radionuclides in the NW Pacific, and assessment of doses for Japanese and world population from ingestion of seafood," *Sci. Rep.*, **5**, 9016 (2015). DOI: 10.1038/srep09016.
- 24) Nuclear Regulation Authority, Japan, 近傍・沿岸海域の海水の放射能濃度の推移, Nuclear Regulation Authority, 2018 Apr. 18, [in Japanese], [Internet], <http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/9000/8141/24/engan.pdf> (cited 2018 October 26)
- 25) Y. Kamidaira, Y. Uchiyama, H. Kawamura, T. Kobayashi, A. Furuno, "Submesoscale mixing on initial dilution of radionuclides released from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant," *J. Geophys. Res. Oceans*, **123**, 2808–2828 (2018).
- 26) MP. Johansen, E. Ruedig, K. Tagami, S. Uchida, K. Higley, NA. Beresford, "Radiological dose rates to marine fish from the Fukushima Daiichi Accident: The first three years across the North Pacific," *Environ. Sci. Technol.*, **49**[3], 1277–1285 (2015).
- 27) International Atomic Energy Agency, "Sediments distribution coefficients and concentration factors for biota in marine environment," *IAEA Tech. Rep. Ser.*, 422 (2004).
- 28) Y. Shigenobu, K. Fujimoto, D. Ambe *et al.*, "Radiocesium contamination of greenlings (*Hexagrammos otakii*) off the coast of Fukushima," *Sci. Rep.*, **4**, 6851 (2014). doi: 10.1038/srep06851.
- 29) Tokyo Electric Power Company Holdings, 港湾の魚介類対策実施状況, Ministry of Economy, Trade and Industry, 2017 Jul. 27, [in Japanese], [Internet], <http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2017/07/3-06-06.pdf> (cited 2018 October 24).
- 30) T. Wada, T. Fujita, Y. Nemoto *et al.*, "Effects of the nuclear disaster on marine products in Fukushima: An update after five years," *J. Environ. Radioact.*, **164**, 312–324 (2016).
- 31) Tokyo Electric Power Company Holdings, 魚介類の核種分析結果, Tokyo Electric Power Company Holdings, 2018 Aug. 27, [in Japanese], [Internet], http://www.tepco.co.jp/decommission/data/analysis/pdf_csv/2018/3q/fish02_180827-j.pdf http://www.tepco.co.jp/decommission/data/analysis/pdf_csv/2018/3q/fish01_180827-j.pdf (cited 2018 October 24).
- 32) Fisheries Agency, *Results of the Monitoring on Radioactivity Level in Fisheries Products*, Fisheries Agency, [Internet], <http://www.jfa.maff.go.jp/e/inspection/index.html> (cited 2018 October 31).
- 33) Tokyo Electric Power Company Holdings, 魚介類の核種分析結果, Tokyo Electric Power Company Holdings, 2018 Mar. 3, [in Japanese], [Internet], http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/f1/smp/2018/images1/fish01_180303-j.pdf (cited 2018 October 31).
- 34) H. Okamura, S. Ikeda, T. Morita, S. Eguchi, "Risk assessment of radioisotope contamination for aquatic living resources in and around Japan," *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **113**[14], 3838–3843 (2016).