福島第一原発港湾から流出したトリチウム量の経時変化の推定 流出量変化の要因分析と福島事故前後の日本および世界の原子力施設との 排出量比較

町田 昌彦^{1,*}, 岩田 亜矢子¹, 山田 進¹, 乙坂 重嘉²,
小林 卓也³, 船坂 英之⁴, 森田 貴己⁵

Estimation of Temporal Variation of Discharged Tritium from Port of Fukushima Dai-ichi
Nuclear Power Plant:

Analysis of the Temporal Variation and Comparison with released Tritium from Japan and Major Nuclear
Facilities Worldwide

Masahiko MACHIDA^{1,*}, Ayako IWATA¹, Susumu YAMADA¹, Shigeyoshi OTOSAKA²,
Takuya KOBAYASHI³, Hideyuki FUNASAKA⁴ and Takami MORITA⁵

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

²Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of Tokyo, 5-1-5 Kashiwanoha, Kashiwa-shi, Chiba 277-8564, Japan

³Nuclear Science and Engineering Center, Japan Atomic Energy Agency, 2-4 Shirane, Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki 319-1195, Japan

⁴ATOX Co., Ltd., 161-2 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1112, Japan

⁵Fisheries Resources Institute, Japan Fisheries Research and Education Agency, 2-12-4 Fukuura, Kanazawa-ku, Yokohama
236-8648, Japan

(Received March 22, 2021; accepted in revised form October 21, 2021; published online January 26, 2022)

We estimate the monthly discharge inventory of tritium from the port of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (1F) from Jun. 2013 to Mar. 2020 using the Voronoi tessellation scheme, following the tritium monitoring inside the port that started in Jun. 2013. As for the missing period from the initial month, Apr. 2011 to May 2013, we calculate the tritium discharge by utilizing the ratio of tritium concentration to ¹³⁷Cs concentration in stagnant contaminant water during the initial direct runoff period to Jun. 2011 and the discharge inventory correlation between tritium and ¹³⁷Cs for the next-unknown continuous-discharge period up to May 2013. From all the estimated results over 9 years, we found that the monthly discharge inventory sharply dropped immediately after closing the seaside impermeable wall in Oct. 2015 and subsequently coincided well with the sum of those of drainage and subdrain etc. By comparing the estimated results with those in the normal operation period before the accident, we point out that the discharge inventory from the 1F port after the accident is not very large. Even the estimation for the year 2011 is found to be comparable to the maximum of operating pressurized water reactors releasing relatively large inventories in the number of digits. In the national level, the total domestic release inventory in Japan significantly decreased after the accident owing to the operational shutdown of most plants. Furthermore, 1F and even the total Japanese discharge inventory are found to be minor compared with those of nuclear reprocessing plants and heavy-water reactors on a worldwide level. From the above, we suggest that various scenarios can be

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 東京大学 大気海洋研究所

³ (国研)日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究センター

⁴ (株)アトックス

⁵ (国研)水産研究・教育機構 水産資源研究所

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

openly discussed regarding the management of tritium stored inside 1F with the help of the present estimated data and its comparison with the past discharge inventory.

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

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)}。さらに、1F事故では海洋への汚染水の直接流出があった^{4,5)}。地上に放出された主要な放射性物質の1つである放射性セシウム(¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs)は、土壌粘土鉱物に強く固着する性質^{6,7)}を有するため、その多くは土壌表層に留まり、降下した放射性セシウム量の多い1F周辺地域では、帰還困難区域が設定される事態となった⁸⁾。

1F事故では、もう1つの主要な放射性物質であるトリチウム(T:略記号)も、環境へと放出された^{9~20)}。トリチウムとは、水素の同位体(³H)であり、その主な化学形態は、トリチウム水(主にHTO, わずかにT₂Oも存在)およびトリチウムガス(主にHT, わずかにT₂も存在)となる^{21,22)}。事故当初、トリチウムの一部は大気中に放出されたが、その多くは炉内に留まった。その後、原子炉建屋に流れこむ地下水や冷却水中へ移行し、1F敷地内のタンク群に貯蔵(他の放射性物質の除去後)²³⁾されてきたが、一部は排水路や地表・地下を介し、海へと達したと考えられている。本論文では、1F事故後、1F港湾内に達し外洋へと流出したトリチウム量を推定するため、1F港湾内におけるインベントリー変化をもとに、その流出量を事故初期から2020年3月まで約9年間に渡り推定する²⁴⁾。

1F事故により、大気中へと放出された放射性核種の一部は、海上に降下した一方、汚染水の海洋への直接流出もあり、事故初期の福島沿岸の海水表面の放射性核種濃度は、一時、大幅に上昇し、採取された表層魚も高い濃度を示す事態となった²⁵⁾。しかし、その後は、沿岸流や福島沖の海流等の海水流動に従い、太平洋上を広く拡散し、海水濃度は速やかに減少した^{26~29)}。ただし、これらの観測は、流出量および放射線影響の大きさから放射性セシウムに対するものが主³⁰⁾であり、トリチウムについての報告例は比較的少なく、特に初期の流出インベントリーについての情報は少ない^{9,16,17,19,20)}。しかし、初期放出量として、トリチウム量も環境中に放出された主要な核種の1つとして推定すべきであるほか、トリチウムは、その化学的特性から環境中での易動度が高く^{21,22)}、そのほとんどが最終的に海洋へ達することを考えると、海洋への流出量を推定すべき核種の1つである。

以上、本論文では、原発事故後に1F港湾内に流入し外洋へと流出したトリチウムに着目し、その流出量を推定す

る。まず、1F港湾内のモニタリング結果をもとに、以前報告した¹³⁷Csと同様の方法²⁴⁾を用い、1F港湾からの月間流出量を推定する。しかし、港湾内のトリチウムのモニタリングは、2013年6月以降に開始されたため、事故初期から2013年5月までの推定は、事故初期の滞留水中の放射能度比(トリチウム(Bq/L)/¹³⁷Cs(Bq/L))³¹⁾や2013年6月以降に得られるトリチウムと¹³⁷Csとの流出量比(港湾内のモニタリング結果をもとに求める)を用いて流出量を推定する。以上、本論文で報告する推定期間は、2011年4月から2020年3月までの9年間とする。

流出量の推定後、分析すべき点は、その流出元を明らかにすることである。東電は1F敷地内(排水路や浄化水)で別途測定されたトリチウムのモニタリングデータを公開²⁷⁾しており、1F港湾からの流出量との比較が可能である。もし、主要な流出源が識別可能となれば、流出抑制対策を的確に打ち出すことが可能となる。本論文では、1F港湾内へと流入する排水路、サブドレンと地下水ドレン(サブドレン等浄化水としてまとめられ排出)と地下水バイパス(港湾外に排出される)からの各々の排出量を推定し、その排出量の経時変化と1F港湾からの流出量との比較を行う。

次に重要な点として、1F事故前も含めトリチウム排出量の経時変化を議論する。推定する1F事故後の流出量を用いると、1F事故以前の正常稼働時期のトリチウム排出量との比較が可能となるほか、他の正常に稼働している原発からの排出量との比較も可能となる³²⁾。トリチウムは正常に稼働している場合でも、常に発生する放射性物質である。しかし、その化学的特性から、保管や管理は困難であり、環境影響も他の放射性物質と比べて小さいと判断されることから、各国とも基準を設け、その基準以下の濃度で放出している²¹⁾。本論文では、1F事故前後の日本全体の排出量を、1F事故後の流出量(本論文で推定)も含めて比較するほか、世界の原子力施設の排出量^{21,33~36)}と比較することで、事故前後および今後の環境への影響についても議論する。これまで、事故後の1Fからの流出量の推定報告は少なく^{9,16,17,19)}、特に継続的に推定した報告がないため、科学的議論が十分に進展していないことを踏まえ、大きな社会的課題となっている保管処理水³⁴⁾に対し、上記の情報をもとに議論する。

以下、本論文の構成を記す。次章(II章)にて、1F港湾内のトリチウムのインベントリーを推定し、1F港湾から福島沿岸への流出量を推定する計算方法を説明する。すでに¹³⁷Csに対し、方法および推定結果を本誌にて報告済み²⁴⁾であるため、方法論は簡潔に記し、推定結果について

詳細に議論する。III章では、推定された流出量の経時変化の主要な要因を分析するほか、1F 港湾内への流入量を別途、東電が公開している排水路・サブドレン等浄化水のデータから推定し、1F 港湾外への流出量と比較評価する。IV章では、II章で示す流出トリチウム量の推定結果と ^{137}Cs の推定結果(発表済み)との比や滞留水の放射能比等をもとに港湾内モニタリング開始以前(2013年5月以前)の流出量を推定し、事故直後(2011年4月)から2020年3月まで、9年分の推定流出量を示す。V章は、IV章までの結果より、1F事故後の年間流出量を求め、事故以前(正常稼働時)の排出量との比較を行う。また、他の稼働原発の年間排出量との比較とともに日本全体の排出量の経時変化(事故前後)を示すほか、世界の原子力施設との排出量比較を行い、保管処理水について議論する。最後にVI章でまとめと結論を記す。

II. 1F 港湾から流出するトリチウム量の推定 (ボロノイ分割)

本II章では、1F 港湾内のトリチウムインベントリーを推定可能とするボロノイ分割法を説明し、それをもとに1F 港湾から流出したトリチウム量を推定する。まず、1節にて、1F 港湾内でのトリチウムのモニタリング状況を説明し、ボロノイ分割法と流出量の推定手法²⁴⁾について簡潔に記す。2節では、2013年6月から2020年3月までの月単位での推定流出量を報告する。3節では、2節の推定結果をもとに7年に渡る経時変化の要因を分析するため、国・東電が実施した汚染水対策工事との関係について考察する。

1. トリチウムの 1F 港湾内でのモニタリングとボロノイ分割による流出量の推定

1F 港湾内で測定されたトリチウム濃度の経時変化を Fig. 1 に記す。トリチウムのモニタリングは2013年6月より、港湾内の複数の定地点で、ほぼ週に1回の頻度にて始まった³⁷⁾。Fig. 1 は、その地点の中でも、代表的3点についてのモニタリングデータの経時変化である。Fig. 1 より、港湾内での濃度の変動は大きい、陸地に近い地点ほど濃度は高く、港湾口に近いほど低くなる傾向があることがわかる。なお、モニタリングでは、検出限界値を一定の値に設定し、その値未満と判定された場合は、検出限界値未満と発表される (Fig. 1: 測定において検出限界値以上が得られた場合のみ、その値をプロット)。Fig. 2 は月ごとに観測値が限界値を下回った頻度(限界値未満が観測される回数/測定回数)と設定限界値を示す。当初、限界値は高く設定されていたが、観測濃度が下がると同時に限界値が下げられ、限界値未満となる出現頻度を低下させる取り組みが実施されていることがわかる。

これらのモニタリング結果より、1F 港湾から流出するトリチウム量を推定する手法を説明する。推定方法は下記の式に従い、まず1F 港湾内のトリチウムのインベントリーを推定し、それに一日当たりの港湾内の海水交換率をかけることで、港湾からの一日当たりの流出量を推定する²⁴⁾。

$$\begin{aligned} \text{1F 港湾から流出するトリチウム量(日)} &= \\ &\text{1F 港湾内のトリチウムのインベントリー} \\ &\times \text{1F 港湾の海水交換率(日)} \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、1F 港湾の海水交換率(日)については、0.44

Fig. 1 Seven-year temporal variation of tritium seawater concentration (Bq/L) at the monitoring points 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

Fig. 2 Temporal variation of the monthly frequency when the measurement result was beneath the detection limit whose application periods are displayed along the upper arrows

という値が Kanda²⁸⁾により与えられており、以前の論文²⁴⁾と同様に、本論文でもこの値を利用する。この値は、事故初期に高濃度汚染水の直接流出が2号機取水口付近で起こった際、流出直後の港湾内濃度の減衰過程から算出した値であり、実測データに基づく量である。ただし、その後、北防波堤等の修理³⁸⁾が行われ、港湾内の状況は少しずつ変化し、海水交換率の値は減少している(すなわち、湾内の閉鎖性は向上)と考えられるため、現在、その値を使うことはいく分、保守的な評価となる。ただし、大雨などにより大量の淡水が湾内に流入するような場合、海水交換率は一時的に大きくなる場合が考えられるが、大雨時に流出量が増大する¹³⁷Cs(大半が懸濁態吸着成分として流出)と異なり、トリチウムの場合、流出量を過小に評価する傾向は小さい(排水路のモニタリングによると、降雨時にトリチウム濃度は一般に減少する³⁹⁾)。なお、¹³⁷Csの流出の場合、港湾内海底土等への吸着効果を考慮する必要があるが、その効果は、ほぼ無視できると推定されている²⁸⁾。したがって、その値をトリチウムに対し、Target Area(**Fig. 3(a)**参照)に用いることは妥当と考えられる。

次に、1F港湾内のトリチウムのインベントリーの推定法を記す。方法は、以前の論文にて記した、¹³⁷Csの場合と同様である。本節では、この手法について以下に簡単に記す。詳細は文献²⁴⁾を参照されたい。

まず、1F港湾内のトリチウムのモニタリング体制(モニタリング位置とその経時変化)をFig. 3にまとめた(Fig. 3(b-d)参照: モニタリング位置を点で表示)³⁷⁾。トリチウム濃度(Bq/L)のモニタリングは2013年6月から開始され、現在(2020年12月)まで続いている。このモニタリング体制より、港湾内のインベントリーを評価するには、モニタリング点間の位置関係を勘案するボロノイ分割⁴⁰⁾(Fig. 3参照)が適している。ボロノイ分割とは、隣接する

点間の垂直2等分線により囲むボロノイ面を定義し、対象領域をそのボロノイ面で分割することを指す(Fig. 3(b-d)参照)。定義された各ボロノイ面に対し、その面積と平均水深との積により、各ボロノイ面の海水容積が得られ、モニタリング結果(トリチウム濃度)との積を取ることによって、各ボロノイ面の海水のトリチウムのインベントリーが推定可能となる。したがって、それらの量をすべて足し上げることで、1F港湾内のトリチウムのインベントリーが求まり、(1)式を用いて流出量が推定可能となる。なお、着目する港湾内は、Fig. 3(a)で示したTarget Areaとする。理由は、開渠部(Unit 1~4 Intake Open Channel: 1F1~4号機が海水を取水/排水するための矩形的港湾領域)出口付近にシルトフェンス³⁷⁾が敷設され(Fig. 1, Fig. 3(a)参照)、開渠部内外の海水交換率は大幅に抑制され、Target Areaのみが海水交換率(~0.44)で自由に外部と交換するからである²⁸⁾。なお、モニタリングが開始された初期は、モニタリング地点数が少なく、隣接地点のモニタリング濃度をFig. 3(b-c)の赤矢印のように再分配(最近接サンプリング地点の濃度を分配)することで、港湾全体のインベントリーを推定する。2015年3月以降は、Fig. 3(d)のように8地点での観測が行われ、8地点でのボロノイ分割による推定が可能となり、インベントリー推定精度は向上した。

2. ボロノイ分割による2013年6月~2020年3月までのトリチウム月間流出量の推定

本節では、前節にて記した方法を用いて流出量を推定した結果を示す。なお、各ボロノイ面のインベントリーを推定するため、各モニタリング値を入力するが、そのモニタリング値は検出限界未満となる場合もあり(Fig. 2参照)、その場合は、検出限界値とゼロの2つの値を入力し、そ

Fig. 3 (a)Target area for estimation of tritium inventory and (b-d) temporal variation of monitoring system of tritium inside 1F port up to March 2020

Fig. 4 Temporal variation of monthly estimation of tritium discharge inventory from 1F port, whose comparison with that of ^{137}Cs is inserted in the right-hand upper side, and history of countermeasure constructions to suppress contaminated water leakage from June 2013 to March 2020

の幅内での推定とする²⁴⁾。なお、真の値は、おおよそ検出限界値とゼロの間にあり、得られる幅内に真の流出量があると考えられる。

上記の方法にて推定した 1F 港湾内からの月間トリチウム流出量の経時変化を **Fig. 4** に記す(なお、上記期間の月間流出量値は **Table 1** にて黒字で記載)。図からわかるように、推定値は最大値および最小値の 2 値であり、観測初期の最大と最小の区間幅は小さいが、2015 年以降はその幅が拡大していることがわかる。これは、港湾内のトリチウム濃度が減少するにつれ、検出限界値未満となる頻度が比較的大きくなったためである (Fig. 2 参照)。

3. ボロノイ分割によるトリチウム推定流出量の経時変化要因の分析

Figure 4 で示した推定流出量のおおよそ 7 年分の経時変化について、その特徴的変動を分析する。まず、年を経るにつれ減少傾向にあることがみて取れるが、比較的大き

な増加および減少が断続的に起こったことがわかる。そこで、1F 港湾内での主要な工事⁴¹⁾が行われた時期をグラフ上に記した。増加イベントとしては、2015 年 4 月ポンプを用いた K 排水路の港湾内への付け替えがあった(付け替え試験は 3 月下旬より実施されたため 3 月度から上昇³⁹⁾と考えられる)一方、劇的な減少イベントとして、2015 年 10 月の海側遮水壁閉合⁴²⁾があった。この閉合工事により、流出量はおおよそ一桁(最大)程度減少し、その後の流出量の変化はあまりない。トリチウムの場合、同じ方法による¹³⁷Cs の流出量推定結果²⁴⁾と比べ、閉合工事による効果は明白に観察された (Fig. 4 挿入図参照: トリチウムと¹³⁷Cs の経時変化²⁴⁾をプロット)。この違いは、トリチウムが水の同位体としての化学形態を取るためと考えられる。すなわち、トリチウムの懸濁態(固相)成分への分配は Cs と比較し無視できるため、汚染濃度の高い水の流出さえ抑制されれば、海水中濃度は時間とともに迅速に減少すると考えられる。

Table 1 Monthly estimation of discharge inventory of tritium (Bq/month) using the Voronoi tessellation method during the period from June 2013 to March 2020 (black) and the ratio of tritium to ¹³⁷Cs in the stagnant water (red and blue) and the discharge inventory (purple) during April 2011 to May 2013

year													
2011				Apr.	May	Jun.	Jul.	Aug.	Sep.	Oct.	Nov.	Dec.	
	Max			2.4E+13	2.4E+13	2.4E+13	2.1E+13	1.8E+13	9.8E+12	8.1E+12	6.7E+12	4.3E+12	
2012		Jan.	Feb.	Mar.	Apr.	May	Jun.	Jul.	Aug.	Sep.	Oct.	Nov.	Dec.
	Max	5.5E+12	3.2E+12	1.6E+12	2.7E+12	2.2E+12	2.1E+12	2.2E+12	2.4E+12	1.6E+12	1.4E+12	1.5E+12	1.4E+12
2013		Jan.	Feb.	Mar.	Apr.	May	Jun.	Jul.	Aug.	Sep.	Oct.	Nov.	Dec.
	Max	1.4E+12	1.1E+12	1.4E+12	7.7E+11	5.5E+11	7.4E+11	3.6E+11	5.1E+11	2.2E+11	3.3E+11	1.6E+11	1.5E+11
	Min						7.4E+11	1.9E+11	3.9E+11	7.2E+10	2.2E+11	1.6E+11	1.5E+11
2014		Jan.	Feb.	Mar.	Apr.	May	Jun.	Jul.	Aug.	Sep.	Oct.	Nov.	Dec.
	Max	1.7E+11	1.3E+11	1.1E+11	1.8E+11	9.6E+10	4.8E+10	1.4E+11	1.4E+11	1.1E+11	1.5E+11	1.7E+11	8.7E+10
	Min	1.7E+11	1.3E+11	1.1E+11	1.7E+11	7.7E+10	2.3E+10	1.3E+11	1.3E+11	1.1E+11	1.4E+11	1.7E+11	8.0E+10
2015		Jan.	Feb.	Mar.	Apr.	May	Jun.	Jul.	Aug.	Sep.	Oct.	Nov.	Dec.
	Max	9.3E+10	9.3E+10	2.2E+11	3.5E+11	3.2E+11	1.8E+11	2.6E+11	2.2E+11	1.5E+11	1.3E+11	4.8E+10	4.4E+10
	Min	8.9E+10	9.2E+10	2.2E+11	3.4E+11	3.2E+11	1.7E+11	2.5E+11	2.1E+11	1.2E+11	1.1E+11	2.2E+10	1.2E+10
2016		Jan.	Feb.	Mar.	Apr.	May	Jun.	Jul.	Aug.	Sep.	Oct.	Nov.	Dec.
	Max	4.4E+10	4.5E+10	4.2E+10	4.6E+10	4.7E+10	4.8E+10	5.0E+10	3.8E+10	5.9E+10	6.2E+10	4.4E+10	5.3E+10
	Min	1.7E+10	1.8E+10	2.4E+10	2.2E+10	2.2E+10	2.5E+10	2.0E+10	9.6E+09	3.7E+10	3.5E+10	1.6E+10	2.4E+10
2017		Jan.	Feb.	Mar.	Apr.	May	Jun.	Jul.	Aug.	Sep.	Oct.	Nov.	Dec.
	Max	4.6E+10	4.0E+10	3.8E+10	4.8E+10	5.7E+10	4.1E+10	5.7E+10	4.3E+10	4.2E+10	4.3E+10	4.5E+10	4.2E+10
	Min	1.9E+10	2.0E+10	2.0E+10	3.3E+10	4.1E+10	2.0E+10	3.6E+10	2.5E+10	2.1E+10	2.2E+10	3.2E+10	2.0E+10
2018		Jan.	Feb.	Mar.	Apr.	May	Jun.	Jul.	Aug.	Sep.	Oct.	Nov.	Dec.
	Max	4.2E+10	3.5E+10	3.6E+10	3.9E+10	4.2E+10	5.3E+10	7.0E+10	4.2E+10	4.0E+10	3.4E+10	3.7E+10	3.6E+10
	Min	1.8E+10	9.0E+09	1.2E+10	1.9E+10	2.9E+10	4.3E+10	6.3E+10	2.8E+10	1.8E+10	1.3E+10	1.7E+10	1.8E+10
2019		Jan.	Feb.	Mar.	Apr.	May	Jun.	Jul.	Aug.	Sep.	Oct.	Nov.	Dec.
	Max	3.5E+10	3.9E+10	3.8E+10	3.4E+10	3.7E+10	3.8E+10	4.7E+10	4.2E+10	4.3E+10	3.7E+10	3.9E+10	3.6E+10
	Min	5.5E+09	1.6E+10	1.4E+10	3.1E+09	1.1E+10	1.5E+10	3.0E+10	1.8E+10	2.3E+10	1.2E+10	2.4E+10	5.7E+09
2020		Jan.	Feb.	Mar.									
	Max	3.7E+10	3.5E+10	3.9E+10									
	Min	1.6E+10	2.2E+09	1.6E+10									

III. 1F 敷地内から港湾へ流入するトリチウム量との比較

本 III 章では、前章にて推定した 1F 港湾外へのトリチウム流出量に対し、1F 敷地内からの港湾内への流入量と比較し、港湾外へ流出するトリチウムの起源について考察する。1 節では、1F 敷地内の雨水や排水の流路⁴³⁾のほか、サブドレンおよび地下水ドレンの浄化水の流路⁴⁴⁾を示し、それらの排出先(港湾内/港湾外)について、東電公開済みの資料をもとに整理する。2 節では、それらの流路から港湾内への流入量を推定し、前 II 章にて推定した 1F 港湾からの流出量と比較する。

1. 1F 敷地内の排水路および浄化水の流路とその経時変化

本節では、1F 敷地内の排水路とサブドレンおよび地下水ドレンの浄化水の流路を東電が公開した資料^{43,44)}をもとに示す。**Fig. 5** は、1F 敷地内の排水路の流路と浄化水の流路の経時変化を示した模式図である。なお、サブドレンと地下水ドレンとは、各々、建屋内近くと護岸近くで地下水をくみ上げる井戸(Fig. 5(d)にて、それらが設置された地点を模式的に示した)を指すが、両者は一元化された後、浄化されサブドレン等浄化水として排出される⁴⁴⁾(サブドレン等浄化水と記されることに注意)。

事故後、Fig. 5(a-c) (排水路の流路のみ表示)からわかるように、複数の排水路の流路が変更となり、排出口は港湾外から港湾内へとその付け替えが行われてきたことがわかる(港湾外へ排出する流路は点線で表示)。こうして、1F 敷地内の発生源での発生量が常に等しいと仮定すると、港湾内への付け替えごとに 1F 港湾内のトリチウムのインベントリーは増大すると考えられる。しかし、Fig. 4 からわかるように 1F 港湾外への流出量は減少傾向にあることから、各排水路からの 1F 港湾へのトリチウムの流入量自体が減少していると推定できる。Fig. 5(d)はサブドレン等浄化水の流路と排水口を示しており、サブドレン等浄化水は 1F 港湾内に排出される。また、1F 内には、地下水井戸が建屋より山側にも配置され、そのくみ上げ水は地下水バイパス⁴⁵⁾と呼ぶ流路を通して港湾外に排出されている(Fig. 5(d)参照)。

以上、これらの排水および浄化水の流出先とその経時変化を **Table 2** にまとめた。青色は港湾外に流出していた時期を示し、赤色は流出先が港湾内となった時期を示す。Table 2 をみてわかるように、排水路の流出先を港湾外から港湾内へと順次移動させたが、地下水バイパスや 5, 6 号機排水路は常に港湾外に排出している。すなわち、比較的、放射性物質濃度が高いと考えられる、事故が発生した原子炉建屋付近での排水および浄化水を港湾内に排出することで、沿岸への環境影響の低減を図ってきた。港湾内へ

Fig. 5 History of drainage route maps up to March 2020 [Map data: Google, ZENRIN], in which solid and dashed arrows indicate routes released into inside and outside 1F port, respectively.

Schematic figures for (a-c) drainage routes and for (d) processing and releasing routes for water collected from both subdrain and groundwater drain and bypassing route for groundwater flowing downhill before reaching the reactor buildings.

Table 2 Table for events of construction work on drainages, subdrain etc., and groundwater bypass up to the present (March 2020)

	Drainage Channel K	Drainage Channel C	Drainage Channel A	Unit 5, 6 Drainage Channel	New Drainage Channel	Subdrain etc.	Groundwater bypass
Feb., 2014		Completion of culvert					
May 21, 2014							Start of releasing to outside the port
Jun. 14, 2014		Start of releasing to inside the port (discharging after changing the route)					
Jul. 14, 2014		Completion of changing the route					
Apr. 17, 2015	Start of releasing to inside the port (water transfer pump to Drainage Channel C)						
May 11, 2015					Start of construction		
Sep. 15, 2015						Start of releasing to inside the port	
Oct., 2015					Start of releasing to inside the port (water transfer pump to Drainage Channel B)		
Mar. 28, 2016	Completion of changing the route						
Apr. 26, 2016					Start passing water to Drainage at shallow draft quay (northern route)		
Jun. 20, 2016					Start passing water to Drainage Channel K (southern route)		
Nov. 21, 2016			Start of construc- tion of changing the route				
Mar. 26, 2018			Start of releasing to inside the port (Completion of changing the route)				
Mar. 27, 2018				Start of monitoring			

Those release destinations are classified into inside (red color) and outside (blue one) 1F port.

排出することで、放射性物質は一時的に湾内に滞留し、湾内での希釈と流出の遅延効果が期待できる他、湾内での一時的滞留により、本論文で報告するように、港湾内の放射性物質のインベントリーを常時、推定評価²⁴⁾できるメリットもある。したがって、本論文では、一部を除いて港湾内に排出されたトリチウム量のみ議論することを明記する。

2. 排水路およびサブドレン等浄化水の 1F 港湾内へのトリチウム排出量の推定

本節では、Table 2 で示した各排水路およびサブドレン等浄化水の排出量を推定し、前 II 章で示した港湾外への推定流出量と比較する。各排水路では、毎週 1 回、トリチウムの濃度(Bq/L) (トリチウム以外は毎日 1 回)、と毎日 1 回、流量(m³/秒)がモニタリングされ、それらのデータは公開²⁷⁾されている(モニタリングは 2014 年 4 月 16 日

から開始)。公開された流量と濃度より、それらの積を求めることで月間排出量を推定し、その経時変化を得ることが可能となる。なお、月単位での推定の場合、おおよそ 4 回のサンプリング値をもとに推定するが、比較的トリチウム濃度の変動は少なく、推定する月間流出量は妥当と考えられる。

上記の推定法による、排水およびサブドレン等浄化水の月単位での港湾内排出推定量の経時変化と 1F 港湾外への流出量の経時変化をあわせて記した結果を **Fig. 6** に示す。なお、排水路全体およびサブドレン等浄化水の月単位での排出量の内訳を Fig. 6 の挿入図に示した。

Figure 6 より、海側遮水壁閉合(2015 年 10 月)後、1F 港湾外への流出量の推定結果(最小値)と港湾内に流入する排水および浄化水の和の推定結果がおおよそ一致したことがわかる(排水路モニタリングでは、濃度が高く排出量の

Fig. 6 Temporal variation of monthly estimation of tritium discharge inventory from 1F port and estimated tritium input inventory into 1F port through all drainages and subdrain etc. with the insert figure for their component decomposition

大半を占める K 排水路にて、検出限界値未満となるものが少なく、過大推定が抑制されるため、1F 港湾外への流出量の最小値と一致したと考えられる。この結果は、海側遮水壁閉合後、1F 港湾外への流出源が把握可能となったことを意味している（すなわち、排水路とサブドレン等浄化水が主たる流出源であることがわかる）。一方、閉合以前については、排水²⁷⁾およびサブドレン等浄化水⁴⁴⁾以外の未確認の流出源があったこと、その寄与は排水とサブドレン等浄化水の和より 1 桁程度大きかったことがわかる。以上、海側遮水壁閉合⁴²⁾により、未確認の大きな流出は、おおよそ抑止されたと考えられ、今後、海洋への流出量をさらに減少させるには、排水およびサブドレン等浄化水のトリチウム濃度を低減することに注力すればよいことがわかる。

次に、Fig. 6 の挿入図に着目すると、排水路からの 1F 港湾内への排出量の経時変化において、2015 年 5 月にステップ状の増大がみられる。これは、最も寄与の大きい K 排水路の港湾内への付け替え⁴⁶⁾が行われたことが原因である（Table 2 に記した主要な工事時期を参照）。その後、月単位の変動はあるが、緩やかな減少傾向がみられる。一方、サブドレン等浄化水の寄与は観測開始後に増大したが、2016 年以降の変化は少なく、港湾内への排出量の変化はおおよそ一定に保たれている。なお、港湾外に放出している地下水バイパス⁴⁵⁾も参考情報として示したが、他の量と比べ小さく経時変化もほとんどない。これは、山側から 1F 敷地内へと集水される、比較的安定した地下水（1F

敷地外も含む広い集水域の降雨に由来する）の流れを反映しているものと考えられる。

以上より、海側遮水壁閉合後、港湾外への流出量の減少傾向の主たる要因は、最も寄与の大きい K 排水路（事故が発生した原子炉建屋周辺の排水を集水した排水路：Fig. 5 参照）からのトリチウム量が減少傾向を示していることである。廃炉が進展することでさらなる減少が期待される一方、サブドレン等浄化水のトリチウム排出量は、おおよそ一定に制御⁴⁷⁾する方策を維持すべきと考えられる。

現在（2020 年 3 月時点）、炉心への地下水流入量は、陸側遮水壁⁴⁸⁾により減少したが、いまだ有限量の汚染水が常時発生し、トリチウムを含む保管処理水の貯蔵量の増大は継続している。その課題の解決策として保管処理水の海洋放出が議論^{21,49)}されているが、上記のように未確認の流出が抑制されたことから、排水路およびサブドレン等浄化水の排出に由来する 1F 港湾からの推定流出量を加味すれば、環境影響をほぼ正確に考慮した排出計画が立案可能であることを記す。

IV. 1F 事故初期の 1F 港湾からのトリチウム流出量の推定

本 IV 章では、トリチウムの港湾内モニタリングが開始される以前、すなわち 2013 年 5 月以前の流出量を推定する。まず、本章 1 節にて、事故直後から 2020 年 3 月までの ¹³⁷Cs の港湾からの流出を、その減少傾向の違いをもとに 3 つの期間に分類する。2 節では、分類された期間ごと

に、事故初期の建屋内滞留水中の ^{137}Cs との放射能比³¹⁾や ^{137}Cs との流出量比の関係をもとにトリチウムの流出量を推定する。以上、事故初期 2011 年 4 月から 2013 年 5 月までのおよそ 2 年間(港湾内モニタリングが未実施)の 1F 港湾からのトリチウムの流出量の推定を試みる。

1. 1F 事故後の放射性物質(^{137}Cs)の 1F 港湾からの流出の経時変化の分類

まず、Fig. 7 に、筆者らによる ^{137}Cs の 1F 港湾からの流出量推定結果²⁴⁾と本論文にて推定したトリチウムの流出量との比較結果を示す。Fig. 7 からわかるように、港湾内での ^{137}Cs のモニタリングは事故初期(2011 年 4 月)から行われていたが、トリチウムのモニタリング³⁷⁾は 2013 年 6 月以降のため、事故初期より 2013 年 5 月までは、II 章とは異なる方法で推定する必要がある。Fig. 7 をみると、どちらの核種についても、変動の詳細の違いはあるが、両者間の流出量の経時変化にはおよそその相関があることがみて取れる。次に、Fig. 7 の挿入図に ^{137}Cs とトリチウムの流出推定量の経時変化の両対数グラフを示したが、 ^{137}Cs の減少傾向の違いにより、流出状況をおおよそ 3 つの期間に分類できることがわかる。1 つ目は事故初期の約 3 ヶ月程度の期間(期間 I とする)であり、一時的に港湾内に流入した高濃度汚染水が港湾外に流出した直後、港湾内濃度が素早く減少した期間²⁸⁾である。この期間の初期、 ^{137}Cs とトリチウムの流出量の比は、原子炉建屋内の滞留水の放射能比³¹⁾に従うと考えられる¹⁹⁾。理由は滞留水が直接流出したことが確認されたからである^{50,51)}。2 つ目の期

間は、直接流出の影響がおおよそ消失し、継続する未確認の流出があったと推定される期間(期間 II とする)である。この不明な継続流出があった期間 II は、海側遮水壁閉合⁴²⁾まで続いたと考えるのが自然である(前 III 章参照)。この期間以後は、期間 III とし、III 章にて示したように、1F 港湾外へのトリチウム流出量は、排水路およびサブドレン等浄化水の排出量とおおよそ一致している(Fig. 7 の挿入図から、期間 II と III の減少傾向に違いがみられる)。以上、放射性物質の流出の経時変化は 3 つの期間に分類可能であり、別途モニタリングされていた ^{137}Cs の推定流出量をもとに次節以降にて、トリチウム流出量を推定する。

2. 事故初期から 2013 年 5 月までのトリチウムの港湾外流出量の推定

まず、前節で定義した期間 I のトリチウム流出量の推定を行う。事故初期の直接流出は、その後の流出量と比べて極めて大きく、原子炉建屋内滞留水の直接流出が支配的である(特に 2 号機取水口付近からの流出の影響が支配的である^{50,51)})。したがって、 ^{137}Cs の流出量が推定されている場合、建屋内滞留水の濃度比(トリチウム濃度/ ^{137}Cs 濃度)³¹⁾から、トリチウムの流出量が推定可能である¹⁹⁾。事故初期のタービン建屋内等の滞留水中の各核種濃度は、西原らにより報告されている³¹⁾。その報告によると、滞留水の存在地点(主に号機とサンプリング地点の違い)により濃度比は異なるが、2 号機の滞留水に対して、トリチウムの流出量の過小評価を避けるため、測定された濃度比が

Fig. 7 Temporal variation of estimated monthly ^{137}Cs (from April 2011 to March 2020) and tritium (from June 2013 to March 2020) discharge inventory from 1F port

最大となるように、Ref. 31)の Table 7 の 2 号機の測定値 Cs-137 : 1.9E+6, H-3 : 2.4E+4 を用い、H-3/Cs-137 の濃度比を 0.0126 とした。推定結果(2011 年 4 月分)は Table 1 に記し(Table 1 の赤字), Fig. 8 に示した(Fig. 8 にて△でプロット)。なお、期間 I(3 ヶ月分)において、事故当初の 4 月の推定以外は、滞留水の直接流出が抑止された後となることから、滞留水中の濃度比を使う方法の妥当性が問題になると考えられるが、5, 6 月(期間 I'とする)も 4 月と同量の流出があるとする保守的推定とする(Table 1 の水色字と Fig. 8 にて◇でプロット)。この推定は、 ^{137}Cs の推定流出量の変化と異なり、一見すると過大とみられるが、その妥当性については、期間 II における推定との関連から下記に詳述する。なお、事故初期のトリチウムの流出量については、沿岸(沖合い)でのモニタリング結果(^{137}Cs とトリチウムの濃度比)より、複数の文献^{9,16,17,19)}にて推定が行われた(文献により異なるが 0.05~1.0 PBq の範囲で推定されている。なお、文献 9,16,17)は大気からの降下と直接流出を加えた推定であることに注意。一方、19)は直接流出に着目し~0.05 PBq と推定)。これらの推定結果は、本推定結果(Table 1 : 2011 年 4 月 : 0.024 PBq および V 章 Table 3 参照 : 2011 年の流出量は 0.14 PBq)とおおよそ同レベルであり、本推定の妥当性が確認できる。

次に、直接流出による影響消失後の期間 II に対し、トリチウム流出量の推定を試みる。本期間は、直接流出の影響は消失したが、未確認の流出が 2015 年の海側遮水壁閉合まで継続したと推測される期間である。本期間中、

2013 年 6 月以降より閉合までのおおよそ 2 年間は、トリチウムと ^{137}Cs の両者が港湾内にてモニタリングされたため、両核種の流出量比が推定可能である。なお、両者の推定流出量には、おおよその相関関係がある(Fig. 7 参照)ため、この相関関係を Fig. 8 の挿入図に示す。バラつきはあるが、過小評価を避けるため、トリチウムと ^{137}Cs の流出量比の最大値(挿入図中の実線で示す比 : 12.8)を用いて、期間 II に対し、トリチウムの流出量の推定を行った結果を Table 1 に記し(Table 1 の紫字), Fig. 8 に示した(Fig. 8 にて□でプロット)。

以上の推定結果(期間 I と II の前期)を考察する。Fig. 8 からわかるように、事故初期のトリチウムの流出量は ^{137}Cs のそれと比べて小さく、滞留水の核種比³¹⁾に由来し、おおよそ 0.0126 (~1/79)倍と推定される。しかし、直接流出が抑制された後の未確認の継続流出では、トリチウムの比率は大きく増大した。期間 II 内の 2013 年 6 月以降より遮水壁閉合前までの期間、その比率は Fig. 8 の挿入図からわかるように ^{137}Cs と比べ 12.8 倍(最大)となり、期間 I と II の間で、その比は、おおよそ 1,000 倍ほど増加したことがわかる。しかし、この 1,000 倍にまで増加した際の比率の経時変化を推定することは難しい。なお、期間 II にて測定された最大比を 2011 年 5, 6 月(期間 I')に適用すると、最大の放出量と推定される事故初期の推定量(2011 年 4 月分の推定量)をはるかに超える結果となり、不自然となる一方、前述の保守的な推定(初期流出(2011 年 4 月)と同程度の流出が、その後の 2 ヶ月(2011 年 5, 6 月)継続すると仮定した場合、初期の期間 I と期間 II の推

Fig. 8 Temporal variation of estimated monthly ^{137}Cs and tritium discharge inventory from 1F port in the period from April 2011 to March 2020

定値が Fig. 8 に示したように、連続的な変化となり、自然な経時変化となる。以上より、上記の推定は保守的だが、十分に妥当な推定と判断できる。

次に、期間 I と II の間で起こった 1,000 倍もの流出比率の増加の要因を考察する。直接流出時、滞留水それ自体の流出^{50,51)}が目視されたが、直接流出の抑制後は、汚染水は幾分、護岸地下等に浸透し、放射性物質は、護岸土壌や構造物等と十分に接触した後、1F 港湾へ流出したと考えられる。その際、粘土鉱物等への吸着力^{6,7)}がトリチウムに比して強い ^{137}Cs の流出は、トリチウムに比べ大きく減少したと推測される(護岸近くの土壌に多くの ^{137}Cs が吸着)。また、各種の汚染水処理システムが 2011 年 6 月より段階的に運転を開始したことも、流出水中の ^{137}Cs に対するトリチウムの濃度比を増加させた要因と考えられる。このように、 ^{137}Cs の流出量は、土壌によるフィルタリングの効果等により大幅に減少したが、易動度の高いトリチウムの流出量はほとんど横ばいとなり、期間 I (F) において、流出比率がセシウムを上回ったと推定される (Fig. 8 参照)。なお、トリチウム流出量の比率が大きい状況は、期間 II と海側遮水壁閉合後の期間 III でも継続している。これも、トリチウムの易動度の高さ(セシウムと比べ)が、その要因として考えられる。

以上、期間 I で起こったと考えられる 1,000 倍もの流出比の変化について議論し、両核種の土壌等との反応性の違い(固液分配係数の違い)が最大の要因と考えられるが、その経時変化を正確に推定することは難しく、本節で実施した推定は、不確かさは大きい一方、保守的推定としては十分に妥当と考えられる。

V. 福島事故以前の排出量との比較および日本全体の排出量の経時変化と世界の原子力施設との比較

本 V 章では、前章までに推定した 1F 事故後のトリチウム流出量を、事故前の稼働時のトリチウム排出量や他の稼働原発からの排出量と比較し、事故後の 1F 港湾からの流出量も含め福島事故前後の日本全体としての排出量の推移を示すほか³²⁾、世界の原子力施設からの排出量^{21,33~36)}と比較する。まず、本章 1 節にて、2011 年以降 2019 年までの 1F 港湾からの年間流出量を示し、事故以前の稼働時排出量と比較する。2 節では、他の日本の原発からの排出量と比較し、日本全体の排出量の事故前後の推移を示す。最後に、世界の代表的原子力施設の排出量^{21,33~36)}との比較を行い、課題となっているトリチウムを含む保管処理水の海洋放出⁴⁹⁾についても議論する。

1. 1F 事故前のトリチウム排出量と事故後の港湾外流出量の比較

まず、前章までに示した 1F 事故後の推定年間流出量より求めた 1F からの年間流出量を **Table 3** に示す。なお、

Table 3 Temporal variation of annual estimations of tritium discharge inventory (Bq/year) from 1F port

Year	Min	Max
2011	—	1.4E+14
2012	—	2.8E+13
2013	—	7.7E+12
2014	1.4E+12	1.5E+12
2015	2.0E+12	2.1E+12
2016	2.7E+11	5.8E+11
2017	3.1E+11	5.4E+11
2018	2.9E+11	5.1E+11
2019	1.8E+11	4.7E+11

1F 事故直後については、前章で説明したように保守的推定のみ実施したことから最大値のみ示してある。この年間流出量の最大推定値(赤字で記載)と事故以前の稼働時の年間排出量³²⁾(青字で記載)をあわせて **Table 4** に示す。なお、Table 4 には、公開されている他の原発の年間排出量³²⁾も同時に記載した。Table 4 に記した 1F からの年間排出量(事故後は流出量)の経時変化を **Fig. 9** の挿入図に示した。以上、事故前の稼働時の年間排出量と比較すると、1F 事故が起きた年(2011 年)の突出した流出量を別にとすると、稼働時と事故後 2015 年までの年間流出量は、ほぼ同じレベルであることがわかる。また、2016 年以降は、稼働時の排出量の半分程度となっていることがわかる (Table 4 および Fig. 9 挿入図参照)。この事故前後の比較により、現在のトリチウムの流出量は稼働時以下となっており、十分に抑制されていると判断できる。しかし、炉心への地下水の流入による汚染水は現時点でも生成され、トリチウムの分離は困難で実施されていないことから、トリチウムを含む浄化水が 1F 敷地内に保管され続けている²³⁾。その累積保管処理水の増加は、1F 廃炉を進める上で、大きな課題となっており、その課題解決に向けた取り組みが国・東電に求められている^{21,23,49)}。

2. 国内外の稼働原子力発電所および原子力施設の排出量との比較

Table 4 (他の国内の稼働原子力発電所からのトリチウムの年間排出量³²⁾を併記)をみると、国内の他の原子力発電所の中には、1F 事故直後の 2011 年の大きな流出量に匹敵する排出量を示す原子力発電所があることがわかる (Table 4 でみられる排出量の大きい関西電力(株)大飯発電所、九州電力(株)玄海原子力発電所、四国電力(株)伊方発電所等は、加圧水型軽水炉(PWR)であり、沸騰水型軽水炉(BWR)より排出量が多い。なお、重水炉はさらに排出量が多い²¹⁾)。これらの排出量に着目すると、PWR 稼働時の年間最大排出量と、2011 年の 1F からの推定流出量のオーダーは、同レベルであることがわかる。次に、日本全体としてのトリチウム排出量の年次変化 (Fig. 9 参照)を

Table 4 Annual release inventory of tritium (Bq/year) from major nuclear facilities including Fukushima Daiichi Nuclear Power plant (highlighted by blue and red colors) in Japan

FY	Bq/year														
Name of Nuclear Power Plants	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017
Tomari (Hokkaido, PWR)	2.2E+13	1.9E+13	3.1E+13	2.9E+13	2.7E+13	2.0E+13	3.0E+13	3.3E+13	3.8E+13	8.7E+12	5.7E+11	6.8E+10	2.2E+11	1.3E+11	3.0E+10
Onagawa (Tohoku, BWR)	5.6E+09	8.0E+08	2.1E+09	5.4E+09	5.1E+09	6.7E+09	6.6E+10	2.2E+10	8.4E+09	1.7E+10	1.3E+10	1.4E+10	2.9E+09	3.0E+09	4.0E+08
Higashidori (Tohoku, BWR)		9.4E+08	3.9E+10	3.4E+10	5.3E+10	9.0E+10	2.3E+11	3.0E+10	1.6E+11	4.5E+10	2.7E+09	N.D. (0.2)	3.0E+10	8.6E+09	N.D. (0.2)
Fukushima Daiichi (TEPCO, BWR)	1.4E+12	1.0E+12	1.3E+12	2.6E+12	1.4E+12	1.6E+12	2.0E+12	2.2E+12	1.4E+14	2.8E+13	7.7E+12	1.5E+12	2.1E+12	5.8E+11	5.4E+11
Fukushima Daini (TEPCO, BWR)	3.8E+11	3.5E+11	9.6E+11	6.6E+11	7.3E+11	5.0E+11	9.8E+11	1.6E+12	2.3E+12	8.0E+11	7.5E+11	1.0E+10	2.2E+11	1.3E+11	2.0E+10
Kashiwazaki-Kariwa (TEPCO, BWR)	8.5E+11	4.9E+11	8.1E+11	8.8E+11	8.8E+11	9.2E+11	5.4E+11	6.6E+11	4.6E+11	2.6E+11	4.6E+09	2.1E+08	N.D. (0.2)	N.D. (0.2)	4.2E+09
Hamaoka (Chubu, BWR)	5.9E+11	4.6E+11	7.5E+11	6.8E+11	6.0E+11	7.3E+11	6.4E+11	6.4E+11	4.6E+11	2.0E+11	3.1E+11	1.7E+10	4.8E+10	5.8E+10	2.8E+10
Shika (Hokuriku, BWR)	2.2E+11	1.2E+11	1.8E+11	1.8E+11	2.5E+10	7.6E+10	3.9E+11	2.8E+11	2.1E+11	1.1E+10	1.1E+10	1.6E+10	N.D. (0.2)	N.D. (0.2)	N.D. (0.2)
Mihama (Kansai, PWR)	2.3E+13	1.6E+13	1.5E+13	1.4E+13	2.0E+13	1.8E+13	2.3E+13	1.3E+13	2.2E+13	4.3E+12	5.3E+12	3.1E+12	1.8E+12	9.5E+12	3.2E+12
Takahama (Kansai, PWR)	5.9E+13	6.3E+13	6.9E+13	6.8E+13	6.0E+13	4.0E+13	4.3E+13	6.5E+13	3.8E+13	6.8E+12	3.4E+12	1.3E+12	4.8E+12	9.8E+12	1.1E+13
Ohi (Kansai, PWR)	9.0E+13	9.8E+13	6.6E+13	7.7E+13	8.9E+13	7.4E+13	8.1E+13	5.6E+13	5.6E+13	2.2E+13	6.0E+13	3.1E+12	3.1E+12	1.8E+12	2.6E+12
Shimane (Chugoku)	5.2E+11	6.3E+11	6.3E+11	3.0E+11	6.6E+11	2.8E+11	2.2E+11	2.3E+11	3.4E+11	1.5E+11	1.5E+11	7.9E+10	4.5E+10	2.4E+10	1.5E+10
Ikata (Shikoku, PWR)	5.4E+13	6.8E+13	5.3E+13	4.6E+13	6.6E+13	5.8E+13	5.7E+13	5.1E+13	5.3E+13	1.8E+12	6.8E+11	2.4E+11	3.6E+11	4.0E+12	4.0E+13
Genkai (Kyushu, PWR)	9.5E+13	7.3E+13	7.4E+13	9.9E+13	8.6E+13	6.9E+13	8.1E+13	1.0E+14	5.6E+13	2.0E+12	8.6E+11	1.1E+11	1.9E+11	2.5E+11	5.2E+11
Sendai (Kyushu, PWR)	3.8E+13	5.1E+13	4.8E+13	3.5E+13	3.8E+13	5.3E+13	5.0E+13	3.0E+13	3.7E+13	1.0E+12	2.1E+11	2.1E+11	8.5E+12	6.5E+13	4.6E+13
Tokai (JAPC)	3.7E+06	N.D.	4.1E+08	2.0E+08	1.0E+09	1.3E+09	7.5E+07	N.D. (0.2)	N.D. (0.2)	N.D. (0.2)	5.9E+07	N.D. (0.2)	3.1E+07	3.3E+07	3.6E+07
Tokai Daini (JAPC, PWR)	8.5E+11	6.1E+11	7.4E+11	6.2E+11	5.8E+11	5.5E+11	7.0E+11	4.2E+11	8.7E+11	4.1E+10	8.6E+10	2.6E+10	1.4E+10	6.3E+10	1.4E+10
Tsuruga (JAPC)	2.2E+13	2.6E+13	9.2E+12	1.5E+13	1.3E+13	4.9E+12	1.5E+13	1.2E+13	6.0E+12	9.3E+11	3.2E+11	4.5E+11	3.8E+11	1.4E+11	6.3E+11
FUGEN Decommissioning Engineering Center (JAEA)	3.7E+11	8.4E+11	1.0E+12	1.4E+12	8.9E+11	2.6E+12	2.1E+12	8.6E+11	8.6E+11	3.1E+11	8.9E+11	5.4E+11	6.1E+11	1.7E+11	6.7E+10
Prototype Fast Breeder Reactor MONJU (JAEA)	4.9E+08	1.3E+08	4.7E+08	2.0E+08	2.1E+07	2.1E+08	2.7E+08	1.5E+08	7.7E+07	1.5E+08	1.2E+08	1.2E+08	2.5E+07	2.6E+07	2.1E+07
Total	4.1E+14	4.2E+14	3.7E+14	3.9E+14	4.0E+14	3.4E+14	3.9E+14	3.7E+14	4.5E+14	7.7E+13	8.1E+13	1.1E+13	2.2E+13	9.2E+13	1.0E+14

The first column shows the plant name (company or organization and PWR or BWR) for nuclear power plant.

Fig. 9 Total annual release inventory of tritium in Japanese major nuclear facilities from 2003 to 2017 with the insert figure showing only that from 1F

みると、2011 年時は、1F からの寄与により極大を示したが、2012 年以降は大きく減少していることがわかる。これは、1F 事故以後の国内の原子力発電所の稼働停止によるものである。

次に、比較のため、Table 5 に世界の代表的な原子力関連施設からの年間排出量^{21,33~36)}を記した。これらとの比較から、1F 事故による 2011 年時の推定流出量より、はるかに大きい(オーダーの異なる)排出が行われている原子力施設²¹⁾(重水炉と再処理工場)が複数あることがわかる。

以上より、1F 事故によるトリチウムの海洋への流出量と世界の代表的な原子力施設からの排出量^{21,33~36)}と比較すると、1F 事故による影響は、世界レベルの排出量から比較すると、ごくわずかである一方、事故後 2012 年以降の日本の排出量は、大きく減少したこともあり、現在、日本のトリチウムの総排出量は十分に抑制された状態にあることがわかる。なお、日本にある再処理施設からの排出量については、日本原子力研究開発機構・東海再処理施設において、30 年間(1977~2007)における累積放出量は 4.5×10^{15} Bq⁵²⁾、日本原燃(株)・六ヶ所再処理施設の 3 年間(2006~2008)における累積放出量は 2.15×10^{15} Bq であったこと⁵³⁾を付記する。世界の原子力施設との比較から、それらの寄与は小さいことがわかる(日本の再処理施設については、累積流出量であり、世界のそれらは年間流出量であることに注意)。

現在(2020 年)、1F サイト内には、おおよそ 10^{15} Bq のトリチウムを含む処理水がタンク内に保管されており、この保管量の累積増加が大きな課題²³⁾となっている。1F 廃

炉作業を円滑に実施するには、その海洋放出が 1 つの手段^{21,49)}として検討されているが、すでに指摘したように、現時点での 1F からの海洋への流出量も含め、総排出量を適切に管理することが求められる。なお、海洋放出に際しては、放出後、トリチウムの濃度分布の変化など、事前に様々なケーススタディーを行うことで環境影響の情報を充実させ、関係者のコンセンサスを得る必要がある。一例として、1F および 2F が、ともに稼働していた 2011 年以前の海水トリチウム濃度の分布や、1F 事故後の分布、そして海洋放出を実施した際の分布との差異などを科学的に分析し明確化することが挙げられる。また、モニタリング体制についても、これまでの様々なデータ(福島沿岸については、1F 事故後、多くの研究が行われ海水の動き等の知見が蓄積されている)を活用することで、計画を明確化することが可能となる。以上、十分な事前準備を行い、様々な情報を開示することで、放出による沿岸環境影響の科学的理解が進み、可能な限り多くの関係者のコンセンサスを得ることが重要と考えられる。

VI. 結 論

本論文では、1F 港湾内から港湾外に流出するトリチウムの流出量を、港湾内のモニタリング結果からボロノイ分割を利用し推定した。トリチウムの港湾内のモニタリング³⁷⁾は 2013 年 6 月から開始されたため、2013 年 6 月から 2020 年 3 月までの流出量を上記手法により推定した。次に、1F 事故初期から現在(2020 年 3 月)までの流出状態を ^{137}Cs 流出量²⁴⁾の減少傾向から 3 つの期間に分け、1F

Table 5 Annual release inventory of tritium (Bq/year) in major nuclear facilities in the world and tritium production and release data as reference information

Annual release of tritium into the environment from major nuclear facilities around the world (including estimated and calculated values): liquid		
Cases	Release ^{a-d)}	Comments
Release and annual average of La Hague Reprocessing Plant	(1990-2010) $9.66\text{E}+15$ (Bq/year) (2013-2014) $1.305\text{E}+16$ (Bq/year)	French facility
Release and annual average of Sellafield Reprocessing Plant	(1990-2010) $2.10\text{E}+15$ (Bq/year) (2011-2015) $1.48\text{E}+15$ (Bq/year)	British facility
Release and annual average of Bruce Nuclear Generating Station, Canada	(1990-2012) $1.12\text{E}+15$ (Bq/year)	The world's largest nuclear power plant before the start of operation of Kashiwazaki-Kariwa
Release and annual average of nuclear power plants in Canada	(2013-2015) $1.786\text{E}+15$ (Bq/year)	Total of 19 unites of 4 operating sites + 1 unit of 1 discontinued site
Reference Information ^{e)}		
Naturally-derived holdings on Earth	$1.28\text{E}+18$ (Bq)	
Release from atmospheric nuclear tests (543 times) conducted until 1980	$1.86\text{E}+20$ (Bq/total)	Total of liquid and gaseous
Release from nuclear power plants and re-processing plants around the world until 1997	$1.27\text{E}+17$ (Bq/total)	

^{a)} Reference 21, ^{b)} Reference 33, ^{c)} Reference 34, ^{d)} Reference 35, ^{e)} Reference 36

事故直後については、滞留水中の ^{137}Cs との放射能比³¹⁾をもとに、それ以降は、1F港湾内モニタリング結果から得られた流出量比をもとに ^{137}Cs の推定結果から求めることで、2011年4月から2020年3月までの9年間に渡る月間流出量を推定した。

以上の推定結果から、1F事故後、トリチウムの流出量は減少してきたが、特に2015年の海側遮水壁閉合⁴²⁾により、大きく減少したことがわかった。閉合前は、1F事故が発生した原子炉建屋等から護岸を通じて未確認の流出が継続していたが、閉合後の1F港湾からの流出量は、排水路およびサブドレン等浄化水から求められるトリチウム排出量と、おおよそ一致することがわかった。この事実より、海側遮水壁閉合後、トリチウムの流出量および流出源は判明しており、部分的には制御管理下にあると判断できる。次に、推定した1F港湾からの流出量を1F事故以前の正常稼働時の海洋排出量³²⁾と比較すると、事故時2011年以外の流出量は、稼働時排出量と比べても低く、他の稼働原子力発電所の排出量と比較しても、十分に低いレベルにあることがわかった。また、2011年時の流出量も、他の高い排出量を示す稼働原子力発電所(PWR)のそれと比べ、オーダーにおいては同レベルであることがわかった。

以上より、1Fからの推定トリチウム流出量を加えた日本の総排出量は、2012年以降、大きく減少していることがわかる。さらに、世界の特に排出量の多い原子力施設^{21,33~36)}と比較すると、1Fからの流出量および日本全体の排出量のレベルは十分に低いことがわかる。今後、1Fからの流出量については、さらなる抑制を図る一方、他の国内の稼働原子力発電所からの排出量も踏まえ、1F内の保管処理水の課題²³⁾を、科学的視点から広範囲に検討し、情報を開示する必要があると考えられる。

追記

本論文の投稿(2021年3月)の後、2021年4月に、政府による1F内の保管処理水の海洋放出の決定があった。

本論文は、日本原子力研究開発機構・福島研究開発部門との連携による成果です。福島研究開発部門の方々(特に、中山真一氏、渡辺将久氏、操上広志氏、佐久間一幸氏、寺島元基氏)との議論に感謝致します。また、筑波大学・青山道夫氏、電力中央研究所・津旨大輔氏との議論は大変参考になりました。ここに感謝致します。

— 参考文献 —

- 1) H. Yamazawa, S. Hirao, "Impacts of Fukushima Daiichi 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. Aoyama, M. Kajino, T. Y. Tanaka, T. T. Sekiyama, D. Tsumune, T. Tsubono, Y. Hamajima, Y. Inomata, T. Gamo, " ^{134}Cs and ^{137}Cs in the North Pacific Ocean derived from the March 2011 TEPCO Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Japan. Part two: estimation of ^{134}Cs and ^{137}Cs inventories in the North Pacific Ocean," *J. Oceanogr.*, **72**, 67-76 (2015).
- 5) D. Tsumune, T. Tsubono, M. Aoyama, M. Uematsu, K. Misumi, Y. Maeda, Y. Yoshida, H. Hayami, "One-year, regional-scale simulation of ^{137}Cs radioactivity in the ocean following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident," *Biogeosciences*, **10**, 5601-5617 (2013).
- 6) 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>.
- 7) M. Okumura, H. Nakamura, M. Machida, "Mechanism of strong affinity of clay minerals to radioactive cesium: First-principles calculation study for adsorption of cesium at frayed edge sites in Muscovite," *J. Phys. Soc. Jpn.*, **82**, 033802 (2013).
- 8) Ministry of Economy, Trade and Industry, *Assistance of Residents Affected by the Nuclear Incidents*, Ministry of Economy, Trade and Industry, [Internet], <https://www.meti.go.jp/english/earthquake/nuclear/roadmap/index.html> (cited 2021 January 26).
- 9) J. Kaizer, M. Aoyama, Y. Kumamoto, M. Molnár, L. Palsu, P. P. Povinec, "Tritium and radiocarbon in the western North Pacific waters: post-Fukushima situation," *J. Environ. Radioact.*, **184-185**, 83-94 (2018).
- 10) H. Kakiuchi, N. Akata, H. Hasegawa, S. Ueda, S. Tokonami, M. Yamada *et al.*, "Concentration of ^3H in plants around Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station," *Sci. Rep.*, **2**, 94 (2012).
- 11) N. Kanda, Y. Wang, N. Kataoka, R. Yamada, H. Imaizumi, N. Kano, "Effect of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident on lakes in Fukushima Prefecture and Niigata City," *Radioisotopes*, **64**, 717-728 (2015).
- 12) K. Kashiwaya, Y. Muto, T. Kubo, R. Ikawa, S. Nakaya, K. Koike *et al.*, "Spatial variations of tritium concentrations in groundwater collected in the southern coastal region of Fukushima, Japan, after the nuclear accident," *Sci. Rep.*, **7**, 78 (2017).
- 13) Y. Kumamoto, M. Aoyama, Y. Hamajima, A. Murata, T. Kawano, "Impact of Fukushima-derived radiocesium in the western North Pacific Ocean about ten months after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident," *J. Environ. Radioact.*, **140**, 114-122 (2015).
- 14) T. Maruoka, T. Kawamoto, T. Ohno, Y. Muramatsu, H. Matsuzaki, T. Matsumoto *et al.*, "Tritium and iodine-129 concentrations in precipitation at Tsukuba, Japan, after

- the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident,” *Geochem. J.*, **51**, 449–455 (2017).
- 15) T. Matsumoto, T. Maruoka, G. Shimoda, H. Obata, H. Kagi, K. Suzuki *et al.*, “Tritium in Japanese precipitation following the March 2011 Fukushima Daiichi Nuclear Plant accident,” *Sci. Total Environ.*, **445–446**, 365–370 (2013).
- 16) P. P. Povinec, M. Aoyama, D. Biddulph, R. Breier, K. Buesseler, C. C. Chang *et al.*, “Cesium, iodine and tritium in NW Pacific waters – a comparison of the Fukushima impact with global fallout,” *Biogeosciences*, **10**, 5481–5496 (2013).
- 17) P. P. Povinec, L. Liong Wee Kwong, J. Kaizer, M. Molnár, H. Nies, L. Palcsu *et al.*, “Impact of the Fukushima accident on tritium, radiocarbon and radiocesium levels in seawater of the western North Pacific Ocean: a comparison with pre-Fukushima situation,” *J. Environ. Radioact.*, **166**, 56–66 (2017).
- 18) K. Tanaka, A. Shimada, A. Hoshi, M. Yasuda, M. Ozawa, Y. Kameo, “Radiochemical analysis of rubble and trees collected from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **51**, 1032–1043 (2014).
- 19) N. Takahata, Y. Tomonaga, Y. Kumamoto, M. Yamada, Y. Sano, “Direct tritium emissions to the ocean from the Fukushima Daiichi nuclear accident,” *Geochem. J.*, **52**, 211–217 (2018).
- 20) S. Ueda, H. Hasegawa, H. Kakiuchi, S. Ochiai, N. Akata, S. Hisamatsu, “Nuclear accident-derived ^3H in river water of Fukushima Prefecture during 2011–2014,” *J. Environ. Radioact.*, **146**, 102–109 (2015).
- 21) B. Nie, S. Fang, M. Jiang, L. Wang, M. Ni, J. Zheng, Z. Yang, F. Li, “Anthropogenic tritium: Inventory, discharge, environmental behavior and health effects,” *Renew. Sust. Energ. Rev.*, **135**, 110188 (2021).
- 22) F. Eyrolle, L. Ducros, S. Le Dizes, K. Beaugelin-Seiller, S. Charmasson, P. Boyer, C. Cossonnet, “An updated review on tritium in the environment,” *J. Environ. Radioact.*, **181**, 128–137 (2018).
- 23) Tokyo Electric Power Company Holdings, *Treated Water Portal Site*, Tokyo Electric Power Company Holdings, [Internet], <https://www.tepco.co.jp/en/decommission/progress/watertreatment/index-e.html> (cited 2021 January 26).
- 24) M. Machida, S. Yamada, A. Iwata, S. Otsuka, T. Kobayashi, M. Watababe, H. Funasaka, T. Morita, “Seven-year temporal variation of Caesium-137 discharge inventory from the port of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant: continuous monthly estimation of Caesium-137 discharge in the period from April 2011 to June 2018,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **57**, 939–950 (2020).
- 25) 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>.
- 26) 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].
- 27) Tokyo Electric Power Company Holdings, *Results of Radioactive Material Analysis in the Vicinity of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station*, Tokyo Electric Power Company Holdings, [Internet], <https://www.tepco.co.jp/en/hd/decommission/data/analysis/index-e.html> (cited 2021 January 26).
- 28) 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>.
- 29) 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].
- 30) M. Aoyama, D. Tsumune, Y. Inomata, Y. Takeda, “Mass balance and latest fluxes of radiocesium derived from the Fukushima accident in the western North Pacific Ocean and coastal regions of Japan,” *J. Environ. Radioact.*, **216**, 106206 (2020).
- 31) K. Nishihara, I. Yamagishi, K. Yasuda, K. Ishimori, K. Tanaka, T. Kuno, S. Inada, Y. Goto, “Radionuclide release to stagnant water in Fukushima-1 Nuclear Power Plant,” *Trans. At. Energy Soc. Jpn.*, **11**, 13–19 (2012), [in Japanese].
- 32) Nuclear Regulation Authority, 原子力施設に係る平成 29 年度放射線管理等報告について, Nuclear Regulation Authority, 2018 Oct. 17. [in Japanese], [Internet], <https://www.nsr.go.jp/data/000249314.pdf> (cited 2021 January 19).
- 33) Mitsubishi Research Institute, 平成 28 年度発電用原子炉等利用環境調査(トリチウム水の処分技術等)に関する調査研究)報告書, Ministry of Economy, Trade and Industry, [in Japanese], [Internet], https://www.meti.go.jp/meti_lib/report/H28FY/000744.pdf (cited 2021 January 26).
- 34) The Subcommittee on Handling ALPS Treated Water, 多核種除去設備等処理水の取扱いに関する小委員会 説明・公聴会 説明資料, Ministry of Economy, Trade and Industry, [in Japanese], [Internet], <https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/osensuitaisaku/committee/takakusyu/pdf/HPup3rd/5siryu.pdf> (cited 2021 January 26).
- 35) Sellafield Ltd, *Discharges and Environmental Monitoring Annual Report 2016*, Sellafield Ltd (2016).
- 36) UNSCEAR, *UNSCEAR 2000 Report*, Sales No. E.00.IX.3, ISBN92-1-142238-8, UNITED NATIONS PUBLICATION (2000).
- 37) Tokyo Electric Power Company Holdings, *Monitoring on East Side of Unit 1 to 4 Turbine Buildings and Bay of Results of Radioactive Analysis around Fukushima Daiichi Nuclear Power Station*, Tokyo Electric Power Company Holdings, [Internet], <https://www.tepco.co.jp/en/hd/decommission/data/analysis/index-e.html> (cited 2021 January 19).
- 38) Tokyo Electric Power Company Holdings, 福島第一原子力発電所港湾復旧改造工事の状況について, Tokyo Electric Power Company Holdings, [in Japanese], [Internet], https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2018/images1/handouts_180228_06-j.pdf (cited 2021 February 22).
- 39) Tokyo Electric Power Company Holdings, K 排水路に関する

- る調査と今後の対策について, Tokyo Electric Power Company Holdings, [in Japanese], [Internet], https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2015/images/handouts_150325_04-j.pdf (cited 2021 June 18).
- 40) A. J. Sinclair, G. H. Blackwell, *Applied Mineral Inventory Estimation*, Cambridge University Press, Cambridge, ISBN 0-521-79103-0 (2006).
- 41) 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の開始について, Tokyo Electric Power Company Holdings, [in Japanese], [Internet], https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/images/handouts_120221_02-j.pdf (cited 2021 January 19).
- 42) 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, [in Japanese], [Internet], https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2015/images/handouts_151026_06-j.pdf (cited 2021 January 19).
- 43) Tokyo Electric Power Company Holdings, *Sampling Places of the Drainage Channels at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station*, Tokyo Electric Power Company Holdings, [Internet], https://www.tepco.co.jp/en/hd/decommission/data/analysis/form_pdf/drainage_form-e.pdf (cited 2021 January 19).
- 44) Tokyo Electric Power Company Holdings, *Pumping Up Groundwater from Subdrain System (Pits) Around Buildings*, Tokyo Electric Power Company Holdings, [Internet], <https://www.tepco.co.jp/en/hd/decommission/progress/watermanagement/subdrain/index-e.html> (cited 2021 January 19).
- 45) Tokyo Electric Power Company Holdings, *Pumping Up Groundwater from Groundwater Bypass Pumping Wells*, Tokyo Electric Power Company Holdings, [Internet], https://www.tepco.co.jp/en/hd/decommission/progress/watermanagement/groundwater_bypass/index-e.html (cited 2021 January 19).
- 46) Tokyo Electric Power Company Holdings, K排水路付替完了, Tokyo Electric Power Company Holdings, [in Japanese], [Internet], https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2016/images1/handouts_160328_08-j.pdf (cited 2021 January 19).
- 47) Ministry of Economy, Trade and Industry, ④サブドレン (汚染源に水を近づけない対策), Ministry of Economy, Trade and Industry, [in Japanese], [Internet], https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/hairo_osensui/04.html (cited 2021 February 22).
- 48) Tokyo Electric Power Company Holdings, *Installation of Land-Side Impermeable Wall (Frozen Soil Wall)*, Tokyo Electric Power Company Holdings, [Internet], <https://www.tepco.co.jp/en/hd/decommission/progress/watermanagement/landwall/index-e.html> (cited 2021 January 19).
- 49) J. Conca, *It's Really ok if Japan Dumps Radioactive Fukushima Water into the Ocean*, Forbes, 2019 Sep. 12, [Internet], <https://www.forbes.com/sites/jamesconca/2019/09/12/its-really-ok-if-japan-dumps-radioactive-fukushima-water-into-the-ocean/#46c8e267b298> (cited 2021 January 26).
- 50) 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, doi:10.1016/j.jenvrad.2011.10.007 (2012).
- 51) Tokyo Electric Power Company Holdings, 福島第一原子力発電所 2号機取水口付近からの放射性物質を含む液体の海への流出について, Tokyo Electric Power Company Holdings, [in Japanese], [Internet], <https://www.tepco.co.jp/cc/press/11040202-j.html> (cited 2021 January 19).
- 52) M. Nakano, Y. Kokubun, M. Takeishi, "Tritium concentration and diffusion in seawater discharged from Tokai Re-processing Plant," *Jpn. J. Health Phys.*, **44**, 60–65 (2009), [in Japanese].
- 53) Japan Nuclear Fuel Limited, 安全協定に基づく定期報告書, Japan Nuclear Fuel Limited, [in Japanese], [Internet], https://www.jnfl.co.jp/ja/business/report/public_archive/safety-agreement-report/2021.html (cited 2021 June 29).