

日本における環境要素間の アクチニド元素の移行挙動に関する研究(Ⅱ)

(核燃料サイクル開発機構 研究委託内容報告書)

2000年2月

京都大学原子炉実験所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2000

日本における環境要素間のアクチノイド元素の移行挙動に関する研究 (II)

(研究委託内容報告書)

京都大学原子炉実験所
工藤章, 藤川陽子

要 旨

本書では、前半部分において「長崎原爆プルトニウムの放出と環境中の移動性」について、後半部分において「わが国のファーフールドにおける放射性核種移行研究の到達点」についての研究成果を報告する。

長崎県長崎市西山地区で 450cm の深さまでの不飽和帯土のコアを採取し、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 $^{239+240}\text{Pu}$ の鉛直分布を決定した。その結果、大部分の放射性核種は、地表から 30cm の層に見出された。しかしながら、 ^{90}Sr と $^{239+240}\text{Pu}$ は、200cm 以深の地下水からも発見された。 ^{137}Cs は、地表面から 40cm 以深、あるいは地下水中には見出せなかった。これらのことから、全 $^{239+240}\text{Pu}$ の 3% は、土壌表層に留まる残り 97% のプルトニウムよりも速く、土壌中を移行していることを示している。また、1945 年の長崎フォールアウトを示す ^{137}Cs と $^{239+240}\text{Pu}$ のシャープなピークが、西山貯水池の堆積物コアから見つかった。一方、 ^{90}Sr はその堆積物中を移動するため、1945 年に堆積した層にはピークを見出すことが出来なかった。さらに、 $^{239+240}\text{Pu}$ は 1945 年よりも古い年代の層でも見つかった。一方、年輪中の $^{239+240}\text{Pu}$ は、堆積物コアとほぼ同様の分布をしていたが、極めて微量の $^{239+240}\text{Pu}$ (1%程度) は 1945 年の年輪よりも内側から発見された。これら事象より環境中の移動性 $^{239+240}\text{Pu}$ の存在を推定した。

報告書の後半部分においては、「地層処分研究開発第 2 次とりまとめ」および現状の放射能移行評価研究について、特に天然バリア (例えば、ファーフールド) および地表生態圏を対象とした放射能移行モデルを中心にレビューを行い、今後の地層処分の環境安全評価に関連して進めるべき環境関連研究の方向について検討した。その中では、Generic な安全評価研究からサイト特異的な安全評価研究への移行を中心に、説明的モデル、スクリーニングモデル、予測モデルといった目的別モデルの適用手順、モデル予測と安全評価にまつわる不確実性への対処手順、そして安全評価の予測に対する信頼性向上の手順としてわが国の野外条件下で取得された物質移行データによるモデル検証の必要性について議論を行った。

Distribution of Actinide Elements among Various Environmental Factors (II)

Akira Kudo, Yoko Fujikawa
Research Reactor Institute, Kyoto University

Abstract

The first and second environmental releases of man-made $^{239+240}\text{Pu}$ came from nuclear explosions at Alamogordo and Nagasaki in 1945. The release at Nagasaki was more serious than at Alamogordo, because it happened in an area with a high population density. Unfissioned $^{239+240}\text{Pu}$ and various fission products have been interacting here with various environmental materials (soils, sediments, and plants) under wet and temperature conditions for more than 45 years. To assess the environmental mobility of $^{239+240}\text{Pu}$, the distributions of radionuclides from this release were investigated at Nishiyama where heavy black rain containing unfissioned plutonium and fission products fell 30 minutes after the nuclear explosion. The vertical distributions of ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$ were determined in unsaturated soil cores up to 450cm deep. Most radionuclides were found in the soil column 30cm from the ground surface. However, $^{239+240}\text{Pu}$ were detected in the groundwater as well below a depth of 200cm. No ^{137}Cs was found below 40cm from the ground surface or in groundwater. These observations reveal that about 3% of the total $^{239+240}\text{Pu}$ have been migrating in the soil at a faster rate than the remaining $^{239+240}\text{Pu}$. Sharp peak of ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$, indicating heavy deposition from the Nagasaki local fallout of 1945, were found in sediment cores collected from the Nishiyama reservoir. $^{239+240}\text{Pu}$ peaks were unexpectedly discovered in pre-1945 sediment core sections. No ^{137}Cs was found. By contrast to the distribution in sediment cores, ^{137}Cs in tree rings had spread by diffusion from the bark to the center of the tree without holding a fallout deposition record. Most of the $^{239+240}\text{Pu}$ was distributed in the tree rings following a similar deposition record to that found in sediment cores. Furthermore, a very small amount of $^{239+240}\text{Pu}$ (about 1%) was found unexpectedly in pre-1945 tree rings. The only reasonable explanation for these unexpected discoveries is the existence of mobile $^{239+240}\text{Pu}$ in the environment.

In the second section, the path of migration in the natural environment was verified on the basis of reference research about cases of environmental pollution. For the evaluation of geosphere, we summarized the consistency of the migration behaviour at a local area and the model availability in a specific site. Especially, the site-specific viability assessment was more important role than the generic assessment. We discussed the prediction model of migration for radioactive elements.

Contents

- 1 . Introduction
- 2 .
 - a. Plutonium Mass Balance Released from the Nagasaki A-Bomb
 - b. Plutonium Released by the Nagasaki A-Bomb: Mobility in the Environment
- 3 . Verification of the assessment research about migration of radioactive element (Japanese)
- 4 . Conclusion

1. Introduction

The first and second environmental releases of man-made $^{239+240}\text{Pu}$ came from nuclear explosions at Alamogordo and Nagasaki in 1945. The release at Nagasaki was more serious than at Alamogordo, because it happened in an area with a high population density. Unfissioned $^{239+240}\text{Pu}$ and various fission products (e.g. ^{90}Sr and ^{137}Cs) have been interacting here with various environmental materials (soils, sediments, and plants) under wet and temperature conditions for more than 45 years. To assess the environmental mobility of $^{239+240}\text{Pu}$, the distributions of radionuclides from this release were investigated at Nishiyama (3km east of the hypocenter) where heavy black rain containing unfissioned plutonium and fission products fell 30 minutes after the nuclear explosion. The vertical distributions of ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$ were determined in unsaturated soil cores up to 450cm deep. Most radionuclides were found in the soil column 30cm from the ground surface (99% of ^{137}Cs and 97% of $^{239+240}\text{Pu}$). However, $^{239+240}\text{Pu}$ were detected in the groundwater as well below a depth of 200cm. No ^{137}Cs was found below 40cm from the ground surface or in groundwater. These observations reveal that about 3% of the total $^{239+240}\text{Pu}$ have been migrating in the soil at a faster rate than the remaining $^{239+240}\text{Pu}$. Sharp peak of ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$, indicating heavy deposition from the Nagasaki local fallout of 1945, were found in sediment cores collected from the Nishiyama reservoir. On the other hand, since ^{90}Sr is mobile in fresh water sediments, there was no 1945 ^{90}Sr peak in the sediment cores. $^{239+240}\text{Pu}$ peaks were unexpectedly discovered in pre-1945 sediment core sections. Although ^{90}Sr was found in these sections, no ^{137}Cs was found. By contrast to the distribution in sediment cores, ^{137}Cs in tree rings had spread by diffusion from the bark to the center of the tree without holding a fallout deposition record. Most of the $^{239+240}\text{Pu}$ was distributed in the tree rings following a similar deposition record to that found in sediment cores. Furthermore, a very small amount of $^{239+240}\text{Pu}$ (about 1%) was found unexpectedly in pre-1945 tree rings. The only reasonable explanation for these unexpected discoveries is the existence of mobile $^{239+240}\text{Pu}$ in the environment.

In the second section, the path of migration in the natural environment was verified on the basis of reference research about cases of environmental pollution. For the evaluation of geosphere, we summarized the consistency of the migration behaviour at a local area and the model availability in a specific site. Especially, the site specific viability assessment was more important role than the generic assessment. We discussed the prediction model of migration for radioactive elements.

2. a. Plutonium Mass Balance Released from the Nagasaki A-Bomb

The remaining major technological problem for the completion of the nuclear energy cycle is the establishment of the geologic disposal facilities for high-level radioactive wastes which were derived from either nuclear power or fuel reprocessing plants. In either case, plutonium, especially ^{239}Pu , plays a role of the target radionuclide for the behavior of high level radioactive wastes in both geologic and surface environment due to its relatively long half-lives and quantities.

A considerable amount of plutonium, 8.8-13.8 kg, was released into the natural environment when Nagasaki A-bomb was detonated on August 9, 1945. Investigating the Nagasaki plutonium has several advantages for understanding the behavior interacting with a relatively humid environment (annual rain fall is about 2000 mm): 1) a long (more than 50 years) history of the exposure to the environment, 2) relatively large quantity discharged and 3) the initial conditions of the release, such as the height of 503 m above the ground, is mostly known, though the exact amount of plutonium used for the detonation has been still classified.

A multi-disciplinary group investigated a region of the city of Nagasaki, called Nishiyama, and the surrounding area up to 100 km from the hypocentre for more than 10 years, Fig. 1. The scope of investigation included: 1) the geographical distribution of the plutonium deposition, collecting 47 surface soils, 2) the amount of plutonium deposited as the local fallout, 3) the vertical distribution of plutonium for soils and reservoir sediments, considering the driving force of the radionuclide caused by the annual rainfall of 2000 mm and the concentration in the

ecological samples, such as tree rings, vegetable, fish and shell fish. The investigation was extended to a fission product, ^{137}Cs , as a typical reference radionuclide. The investigation at Nagasaki revealed that the most (over 90%) plutonium was released as global fallout rather than local fallout (0.025%). The rest (1.2 kg or 8%) was fission during the detonation in.

In order to find the 1945 Nagasaki plutonium without mixing other plutonium derived from a series of weapons testing in the atmosphere, a team of scientists was sent to the Agassiz ice cap, Ellesmere Island, Canada where ice layers has been preserved for the past 120,000 year. Several field trips were required: 1) determining a surface area of the ice layer for 1945 plutonium measurement, 2) establishing a method collecting the ice layers (using ice cores) and deciding a precise analytical method including a care to avoid cross-contamination and loss of plutonium from the sample during the sampling and transportation of ice cores. There was only single sample (for about 6 months precipitation) from the ice cores. The samples of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs were conducted at the site and the analysis was performed at a clean room at the National Research Council of Canada in Ottawa, Canada.

From the 1945 explosion ice layers, there were peaks for both $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs which was measured as 0.00032 mBq/cm² and 0.055 mBq/cm², respectively, using ten ice cores. The results reported in this article have been published in various journals already, except some new interpretation of the results.

Experimental

The collection of the surface soils undisturbed since 1945 by both artificial and natural forces was conducted with an extreme care. A relatively flat and dry surface, having no disturbance by the man and a washout by rainfall or covered by large trees in 1945, was selected for the representative sampling site. The hilly feature with a considerable urbanization in Japan, it was one of the most difficult task and sampling was conducted in winter time to avoid poisonous snakes and insects. After removing dead trees and branches, the ground depth 0.0 cm was defined by placing a plywood, 40 cm x 40 cm with a square hole of 20 cm x 20 cm, and pressing a weight of a man (70 kg). The surface soils of 0.0 - 4.0 cm were collected from the square hole (volume was 1600 cm³). The sampling was conducted mainly two areas: 1) the

eastern side of the hypocentre (between 2.2 - 13.2 km) and about 100 km east side from the hypocentre. Two samples from west side of the hypocentre (1.5 - 3.0 km) were also collected.

Four sediment core samples were collected from the bottom of the reservoir using professional divers. A coring tube, made of an acrylic polymer with an inner diameter of 81 mm, was pushed into the sediments. The divers then carefully removed the core from the sediments and covered the top and bottom of the tube with caps. The collected cores were brought to the laboratory and sectioned into predetermined layers of 3.0 cm.

All soil and sediment samples were dried at 110° C for 48 hours. The dried samples were then sieved with a 2 mm mesh screen to remove pebbles and coarse sands. Organic materials such as roots and leaves were re-mixed with samples. The dried samples were then grounded to make more homogeneous form. The dried and grounded samples were ashed at 300°C for 48 hours for ¹³⁷Cs analysis using a gamma energy spectrometer. After the gamma ray analysis, the ashed samples were heated at 600° C for plutonium analysis. All organic materials must be decomposed in the aching process in order to recover a high plutonium yield during the chemical separation of plutonium. The chemical separation procedures were similar to those used in USA, Japan and Germany. As an internal standard for plutonium to quantify the yield of the chemical separation ²³⁶Pu produced and certified at Harwell, United Kingdom was used. Further more, IAEA standard soil samples (SD-N-1 and Soil-6) were routinely analyzed to calibrate the analytical results.

For the laboratory experiment of the interaction between plutonium and sulfate reducing bacteria, a series of batch studies was conducted using an autoclave to produce living and dead bacteria. In this study, anaerobic bacteria, including sulfate reducing bacteria, was originated from pulp and paper anaerobic waste treatment. In order to change pH a diluted solution of HCl or NaOH was used to adjust desired condition. The separation between bacteria, both living and dead, was conducted using 0.22 μ m pore size membrane filter. The analysis of plutonium was same as above.

Results and Discussion

The plutonium deposited a relatively confined area, 2-18 km east from the hypocentre,

Fig. 2. The highest concentration of the surface soils was found to be 64.5 mBq/g at 2.8 km east, not at ground zero. There was hardly any pronounced plutonium deposition west side of the hypocentre. The reason of the confirmed deposition east from the hypocentre was considered to be due to movement of the "black rain" cloud with a velocity of 3.06 m/sec. This cloud movement along with the height of the cloud (considered to be about 8-10 km above sea level) was visually recorded at Unzen mountain meteorological station.

The highest concentration of $^{239+240}\text{Pu}$ determined was 64.5 mBq/g (or 181 mBq/cm²) in the surface soils collected at the Nishiyama district marked as 1 in **Fig. 1**. The concentration decreased rapidly in both directions (east and west) from that point of 2.8 km from hypocenter, **Fig. 2**. At 2.6 km from the hypocentre, the concentration was 55.5 mBq/g (155 mBq/cm²), at 2.2 km it was 30.0 mBq/g (84 mBq/cm²) and at 1.5 km 2.30 mBq/g (6.4 mBq/cm²). The concentration decreased with increasing distance from the 2.8 km point. At 5 km from the hypocentre, there was less than 10.4 mBq/g (29.0 mBq/cm²) and over 10 km there was less than 2.12 mBq/g (5.94 mBq/cm²). The $^{239+240}\text{Pu}$ concentration reaches a background level at 18 km east from the hypocentre, **Fig. 2**. An interesting observation was that papers (office papers, books, newspapers, etc.), which were vacuumed from the ground level (within 1 km from hypocentre) during the mushroom cloud formation, were not deposited with the "black rain" as shown by 2 in **Fig. 1**. The plutonium concentration in the "paper deposited area" was not as high as in the "black rain" region. The concentrations of $^{239+240}\text{Pu}$ deposited in the surface soils west of the hypocentre were low. The values were 0.98 mBq/g (2.7 mBq/cm²) at 1.5 km and 0.75 mBq/g (2.1 mBq/cm²) at 3.0 km, indicating that a lesser amount of $^{239+240}\text{Pu}$ deposited on the west side of the hypocentre.

In order to confirm the measured result of limited local fallout deposition within 18 km east, 19 surface soil samples were collected at approximately 100 km east from the hypocentre, **Fig. 1**. The concentration of $^{239+240}\text{Pu}$ ranged from 0.04 mBq/g (0.11 mBq/cm²) to 1.02 mBq/g (2.86 mBq/cm²), with an average of 0.152 mBq/g (0.43 mBq/cm²). A comparison of $^{239+240}\text{Pu}$ concentration between this average (0.152 mBq/g) at 100 km and the highest (64.5 mBq/g) at 2.8 km produced a factor of 424. The global fallout for this sampling area (32° 45' latitude and 129° 52' longitude) was 0.67 mBq/g (5.9 mBq/cm²).

The radioactivity of ^{137}Cs in collected surface soils was also measured and ranged from 3.3 to 188 mBq/g (or 9.2 to 526 mBq/cm²) within 2-5 km east of the hypocentre, **Fig. 3**. Between 5 and 13.2 km, it ranged from 2.22 to 67.6 mBq/g (6.2 to 81.8 mBq/cm²). Again, high concentrations of ^{137}Cs were found in the region where a high $^{239+240}\text{Pu}$ concentrations were detected. However, there was a difference in the range of concentrations between $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs . The range of ^{137}Cs was from 7.5 to 188 mBq/g (or 25 fold difference) at the highest region, 2-5 km east of hypocentre, while the difference of $^{239+240}\text{Pu}$ was 424 folds. In other words, the concentration of ^{137}Cs did not show as pronounced peak as $^{239+240}\text{Pu}$ at 2.8 km east from the hypocentre. This suggests that ^{137}Cs did not deposited as intensively as $^{239+240}\text{Pu}$ at the 2.8 km. The global fallout of ^{137}Cs at this sampling area was considered to be about 20 mBq/g (or 151 mBq/cm²), which amounts to 11 % of the maximum concentration of ^{137}Cs detected at the point., while those of $^{239+240}\text{Pu}$ was 3.2%. In conclusion, the concentration of Nagasaki A-Bomb in ^{137}Cs deposition as local fallout was considerably small compared with that of $^{239+240}\text{Pu}$.

The amount of plutonium deposited, 37.5 g (0.0095×10^{13} Bq) as the local fallout was calculated, while that of ^{137}Cs was 0.0287 mg (or 6.79×10^8 Bq). The radioactivity ratio ($^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$) of the amounts deposited as local fallout of was 139 folds which is extremely high considering an average ratio for the northern hemisphere was 2.39% (as of 1990). This meant that a small amount of ^{137}Cs was deposited as local fallout at Nagasaki. One of the possible explanation of this ^{137}Cs deficiency involves the time at which the "black rain" was formed. The production of ^{137}Cs was the result of a series of decay reactions where ^{137}Xe (β^- -decay, 231 seconds half-life) included. Definitely, the behavior of ^{137}Xe was quite different from unfissioned $^{239+240}\text{Pu}$. In other words, more ^{137}Cs must be released as global fallout compared to $^{239+240}\text{Pu}$.

One of the interesting observations during Nagasaki plutonium investigation was the fact that plutonium was found in the sediment layers of 1920s and 1930s when no man knows even the word of element "plutonium", **Fig. 4**. Furthermore, no ^{137}Cs was found in the sediment layers below 1945 when A-bomb was detonated at Nagasaki. The sediment cores were collected from an artificial freshwater reservoir which located about 80 m above sea level and shown in **Fig. 1**. Why was plutonium found in the layers prior to the detonation, even though the plutonium

peak in the 1945 sediment layer was high and sharp? A plausible explanation was that there was a mobile plutonium in the sediments, which moved down plutonium with a ground water flow. The amount of mobile plutonium was about 10% contained in the sediments cores.

The mass balance of plutonium was obtained after quantifying the amount of local fallout from the Nagasaki A-Bomb. The amount of local fallout for plutonium was calculated as 37.5 g or 0.25%, if it was 15 kg bomb, integrating an area of 264 km² exposed to the "black rain" and the average concentrations for 13 divided areas. The atomic ratio of ²³⁹Pu was assumed as 95.5% and the rest was ²⁴⁰Pu, using Hansen and Paxton's data. Since the energy released from Nagasaki detonation was 21 kt TNT, the amount for fission was 1.2 kg (or 8.0%) and thus the amount released to the global fallout must be 13.8 kg (or 92%), if it was a 15 kg bomb. As described above, the amount of ¹³⁷Cs produced after the fission reaction was 23.4 g (or 7.44 x 10¹³ Bq as of 1945) based on data obtained in this investigation. The amount of local fallout (0.0287 mg as of 1945) was 0.00012% and almost 100% was released to the global fallout. There was already a difference in the amounts (or ratio) of local fallout between ²³⁹⁺²⁴⁰Pu and ¹³⁷Cs. This difference could be verified some way in the future.

2. b. Plutonium Released by the Nagasaki A-Bomb: Mobility in the Environment

Experimental

Sampling methods

Soil and sediment cores.

Two points with the highest surface concentration of $^{239+240}\text{Pu}$ were chosen for sampling 30-cm dia soil cores (Fig. 5). The soil cores were 225 and 450cm long. To prevent cross contamination, the cores were carefully excavated by hand from the center of a 50-cm dia soil pedestal. Sample soil cores with a 30-cm dia were carefully cut with a sharp knife from the 50-cm dia pedestal. This prevented soil at the bottom of the excavated holes from being contaminated by surface soil which contained the highest concentration of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs . Soil cores were sectioned from top to bottom. All samples were dried at 110°C for 48 h. The dried samples were then sieved with a 2-mm mesh screen to remove plant roots, pebbles and coarse sands. Finally, the dried samples were pulverized with a hammer mill.

To collect the reservoir sediment cores, a coring tube made of acrylic polymer with an i.d. of 81 mm was pushed into the sediment by divers and the top of the tube was capped tightly with a rubber stopper. The divers then carefully removed the core from the sediment and capped the bottom of the tube. The collected cores were sectioned into pre determined layers of 1-3 cm thick, dried at 110°C for 48 h and pulverized with a ceramic mill after determining the sediment water content.

Tree rings.

The chosen tree was about 20-m tall; the trunk diameter was 55 cm, 1.5 m above the ground. The width of the tree rings ranged from a maximum of 6.8mm in 1941 to a minimum of 0.4mm in 1959. The trunk, without branches, was sliced into 10-cm thick discs (total 108 discs) and sent to a laboratory for tree-ring separation. Three-year tree rings were collected (i.e. 1988-1986, 1985-1983, and so on up to 1919-1917) starting from 1988. The bark sample was prepared separately. The samples were dried at 105°C for 24 h for a dry weight, which ranged from 492 to 1525g. After ashing at 350°C , the ^{40}K and ^{137}Cs concentrations were

measured using a pure Ge gamma-ray spectrometer.

Methods

137Cs

The radioactivity was measured with a high-resolution γ ray spectrometer equipped with a pure Ge detector. A multilayered shield (10 cm Pb) 5 cm pre-war Fe, 1 cm Cu and 1 cm acrylic polymer) surrounded the detector. The minimum detection limit was 0.05 mBq/g for a 30-g soil sample and tree-ring ash sample by counting for a 5×10^5 s lifetime.

239+240Pu

The concentration of 239+240Pu was measured by an α particle spectrometer following chemical separation using 236Pu as a tracer. The chemical separation followed procedures used in the U.S.A., Japan and Germany. The procedure was calibrated using IAEA standard soil samples (SD-N-1/1 and Soil-6), and the α spectrometer was calibrated with 241Am sources standardized by $4\pi - \alpha - \gamma$ anticoincidence counting. The detection limits were 0.05 mBq/g for 10-g soil and sediment samples, and 0.45 mBq/kg for dry wood.

Results and Discussion

Soil

Vertical distribution of 239+240Pu and 137Cs in soil cores.

The distributions of 239+240Pu and 137Cs were observed in the two undisturbed soil cores, A (2.25-m long) and B (4.5-m long). About 90% of total 239+240Pu was found in the top 10 cm of the cores, while 95 and 97% of total 239+240Pu was detected in the 0-20 and 0-30 cm sections respectively. The other 3% of total 239+240Pu had dispersed beyond 30cm to the bottom of the cores where groundwater seeped through the weathered bedrock. The concentration of 239+240Pu in soil at the bottom of cores was approx. 37 mBq/kg dry soil and the concentration of 239+240Pu in the groundwater collected on the bedrock was 0.0244 mBq/L. From this result, a trace of 239+240Pu is probably transported into deeper bedrock by groundwater movement. More than 98% of 239 + 240Pu in the soil at Nishiyama was deposited on the ground surface as local fallout from the nuclear explosion of 9 August 1945.

Consequently, 97% of total $^{239+240}\text{Pu}$ has been stored in the top 30 cm of soil for over 45 years.

Soil at depths to 10, 20 and 30-cm retained 96, 98, and 99% of the total ^{137}Cs content, respectively. No ^{137}Cs was detected beyond 40 cm. The source of ^{137}Cs in soil at Nishiyama was the local fallout in 1945 and the global fallout produced by weapon tests in the 1950s and 1960s. We estimate total ^{137}Cs in soil at Nishiyama consists of 50% local fallout and 50% global fallout.

Migration rates of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in soil.

More than 97% of the total $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs deposited on the ground surface as fallout in the Nishiyama area have been stored in the top 40 cm of soil in an unsaturated silty clayey loam layer for 45 years. In this area, the average annual precipitation and evapotranspiration rates are 2000 and 800 mm, respectively. Consequently, the net annual infiltration rate is 1200 mm; this value is equivalent to 2500 mm of annual soil-water movement calculated by the displacement flow model. This result was confirmed by a soil-water tracer test using Br, and by comparison between the profile of tritium concentrations in soil water extracted from soil cores and monthly variations in tritium concentration in rainwater observed for the past 5 years at Nagasaki.

The migration rates of these radionuclides can be estimated theoretically using the one-dimensional diffusion equation,

$$\delta C / \delta t = (D/R) \delta^2 C / \delta Z^2 - (U/R) \delta C / \delta Z - \lambda C \quad (1)$$

where C is the concentration of radionuclides in the soil water, D is the diffusion coefficient, U is the average velocity of soil water, λ is the decay constant of the radionuclide, Z is the soil depth, t is elapsed time, and R is the retardation factor which is the ratio of the movement of soil water to the movement of radionuclides in soil. The following three assumptions were made to estimate migration of ^{137}Cs : (a) all local fallout and all global fallout were deposited in 1945 and 1963, respectively; (b) the migration of local fallout and global fallout were

independent of each other; and (c) the concentration of ^{137}Cs at the ground surface decreased with time as a result of radioactive decay. For the $^{239+240}\text{Pu}$ migration, we assumed that all $^{239+240}\text{Pu}$ was deposited in 1945, because more than 98% of total $^{239+240}\text{Pu}$ in soil was derived from the local fallout. The migration rates of the radionuclides were estimated by the following solution of equation (2),

$$C = C_0/2 \exp(-\lambda t) [\exp(U'Z/D') \operatorname{erfc}(Z+U't)/(2D'^{0.5}t^{0.5}) + \operatorname{erfc}(Z-U't)/(2D'^{0.5}t^{0.5})] \quad (2)$$

where D' and U' are respectively defined as $D' = D/R$ (the diffusion coefficient of the radionuclide) and as $U' = U/R$ (the movement velocity of the radionuclide in an unsaturated soil layer).

The $^{239+240}\text{Pu}$ retardation factor is estimated to be 2000 by comparison of theoretical curves with the measured $^{239+240}\text{Pu}$ content in the soil. From this result, the mean $^{239+240}\text{Pu}$ migration rate is 1.25 mm/yr. The migration rate of ^{137}Cs was estimated by the following procedures. The vertical distribution of ^{137}Cs in soil cores was calculated in two steps. First, the concentration distributions of local and global fallout were calculated independently in equation (2). Second, the concentration of fallout radionuclides was summed by superposition, which combines the concentration of local and global fallout at the same depth in the calculated concentration profiles. The magnitude of the retardation factor for ^{137}Cs was determined by fitting the superimposed concentration curves to the distribution of radionuclides measured in soil cores. The retardation factor of ^{137}Cs , are estimated conservatively as 2500 and 600, respectively. In other words, the mean ^{137}Cs migration rate is 1 mm/yr.

The magnitude of the in situ distribution coefficients (K_d s) Of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs were calculated to be 960 and 1200 mL/g, respectively based on the estimated in situ retardation factors. Consequently, collection of in situ K_d s in this way might help estimate the long-term effects of a nuclear disaster.

Sediments

Historical record of fallout deposition in sediments.

The profiles of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs and excess ^{210}Pb in the sediment column are shown in Fig. 6. We determined the sedimentation rate in the reservoir using the ^{210}Pb geochronological method (Krish-naswami et al., 1971, 1980). Each layer in the reservoir sediment cores contained different amounts of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs as shown in Fig. 7. In samples from sites A, B and C, the major peaks in $^{239+240}\text{Pu}$ were found at 48-51 cm (6.74 mBq/g), 29-32cm (8.96 mBq/g) and 24-26 cm (71.3 mBq/g), respectively.

These layers of sediment correspond to 1945 as determined by the excess ^{210}Pb measurement method. For example, in sample A, the height of the $^{239+240}\text{Pu}$ peak was about 3.5 times higher than the average concentration of all the layers above this historical peak. The peak of sample A contained 47.2 mBq/cm^2 which is 8.8 times higher than that of global fallout ($5.9 \pm 2 \text{ mBq/cm}^2$) for the Nishiyama reservoir ($32^\circ 46'$ latitude and $129^\circ 52'$ longitude) (Hardy, 1975). In the same way, the peak of sample B contained 57.7 mBq/cm^2 which is 9.8 times higher than that of global fallout. The peak of sample C contained 167.2 mBq/cm^2 which is 28.3 times higher than that of global fallout. This indicates that the sediment in deeper water (site C) contained more Pu than the sediment from the shallower areas (sites A and B). This was probably caused by size separation of sediment particles (because deeper-water sediment is finer than that in shallow water).

The concentration profile for ^{137}Cs also had a major peak at the same depth as the $^{239+240}\text{Pu}$ peak of 48-51 cm corresponding to 1945 in the 90-cm core of sample A. The radioactivity in this peak was 53.6 mBq/g , and was sharper than the $^{239+240}\text{Pu}$ peak. The quantity of Cs in the peak was 5.5 times higher than the average concentration of all the layers above the peak. While some $^{239+240}\text{Pu}$ was found below the 1945 peak, there was no detectable ^{137}Cs below the area of the peak formed by deposition of local fallout.

Mobile $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ in sediments.

$^{239} + ^{240}\text{Pu}$ was found in all lower (pre explosion) layers of sediments from sites A, B, and

C in the Nishiyama reservoir. However, ^{137}Cs was not detected below 57 cm at site A, below 36 cm at site B, and below 30 cm at site C (Fig. 6). The mobility of ^{137}Cs in freshwater sediments is generally the same as or less than that of $^{239+240}\text{Pu}$. From this background knowledge, we conclude that some of the ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$ found in sediments deposited before 1945 was transported by the particle-mixing phenomena at the reservoir bottom. The magnitudes of the particle-mixing coefficients De are estimated to be $De = 0.12$ (site A), 0.08 (site B) and 0.078 (site C) cm^2/y using Crank's method,

$$\sigma^2 = 2Det \quad (3)$$

where De is the particle-mixing coefficient, or is the dispersion of fallout ^{137}Cs (cm), and t is time (yr). The estimated particle-mixing coefficient is comparable with $De = 0.03\text{-}0.4$ cm^2/yr measured on the ocean floor in the central Pacific Ocean. Particle-mixing effects are small at such great depths because currents are negligibly small at the bottom of deep ocean. Consequently, we believe that ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$ found in sediments (site A, B and C) from 1935 to 1945 were caused by particle-mixing based on simulation using the particle-mixing coefficient. However, we discovered unexpectedly that the $^{239+240}\text{Pu}$ concentration in sample A was as high as 1.60 and 1.98 mBq/g in layers corresponding to the years 1930 and 1925, respectively (Fig. 6). We estimated the dispersion of $^{239+240}\text{Pu}$ from the peak of 1945 by simulating the deposition of sediments using the sedimentation rate and the particle-mixing coefficients. The results indicate that the 1930 and 1925 peaks are outside of the region affected by particle mixing at the reservoir bottom. Consequently, we conclude that the $^{239+240}\text{Pu}$ in these peaks was not transported by the particle-mixing phenomena, but rather it is mobile. If these $^{239+240}\text{Pu}$ peaks were caused by laboratory cross-contamination or benthic activities of macro- and microorganisms, ^{137}Cs should also have been detected at the same location, but it was not.

Tree rings.

The concentrations of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in the tree rings collected at Nishiyama are

shown in Fig. 7 as a function of time (tree growth). The results clearly indicate that $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ is immobile while ^{137}Cs is mobile within the tree rings, $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ was hardly detected in the tree rings for the 1910s, 1920s and 1930s, but ^{137}Cs concentrations were fairly constant throughout these decades.

The concentration of $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ increased gradually from 4.7 ± 0.5 mBq/kg (dry wood) in the 1988-1986 sample to a peak of 30.0 ± 1.5 mBq/kg in the 1967-1965 tree rings. After the peak, it fell to 4.0 ± 0.4 mBq/kg in the 1961-1959 sample and had a smaller peak of 8.3 ± 0.7 mBq/kg in the 1958-1956 sample. The $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ concentration peak appeared as 2.9 ± 0.4 mBq/kg in the 1946-1944 sample dropping below the detection limit of 0.45 mBq/kg for the 1940-1938 sample. Although there were two measurable $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ concentrations in both the 1934-1932 and the 1928-1926 samples (0.63 ± 0.16 and 0.81 ± 0.20 mBq/kg, respectively), the other six early samples were below the detection limit.

$^{239} + ^{240}\text{Pu}$ from the 1945 explosion produced only a minor peak in the $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ 1946-1944 sample compared to 30.0 ± 1.5 mBq/kg in the 1967-1965 sample. The largest peak of $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ in 1967-1965 might partly correspond to the peak in atmospheric weapons testing of 1963. However, there is some delay between the observed $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ peak and the 1963 peak of global fallout. This suggests that $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ with different chemical forms other than fallout $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ can be absorbed directly through leaves, branches and trunks in 1963.

When we replotted the $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs profiles in sediments (site A) against that in tree rings using the same time scale, we found that $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ has very similar concentration profiles in sediments and tree rings but ^{137}Cs had very different concentration profiles. This indicates that $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ is immobile in plant tissue and ^{137}Cs is very mobile. Interestingly, we found two small $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ peaks in both sediments and tree rings in the same period of pre-1945. Consequently, we conclude that a small part of $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ is mobile in tree rings, because we have already concluded that two small $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ peaks in sediments are caused by mobile $^{239} + ^{240}\text{Pu}$. The origin of mobile $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ in tree rings might be due to highly bio-available $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ produced by the chemical weathering including decomposition of plant roots and the activities of micro-organisms in surface soil,

because the activities over decades of microorganisms in the surface soils produced the bio-available Pu to be absorbed by the roots of tree and the decomposed materials of roots enhanced the Pu uptake to plants.

Fig. 1. Location of Nagasaki A-bomb hypocentre and surface soils and other environmental sampling area. (Shaded area is considered to experienced "black rain" after 20-30 minutes after the detonation.)

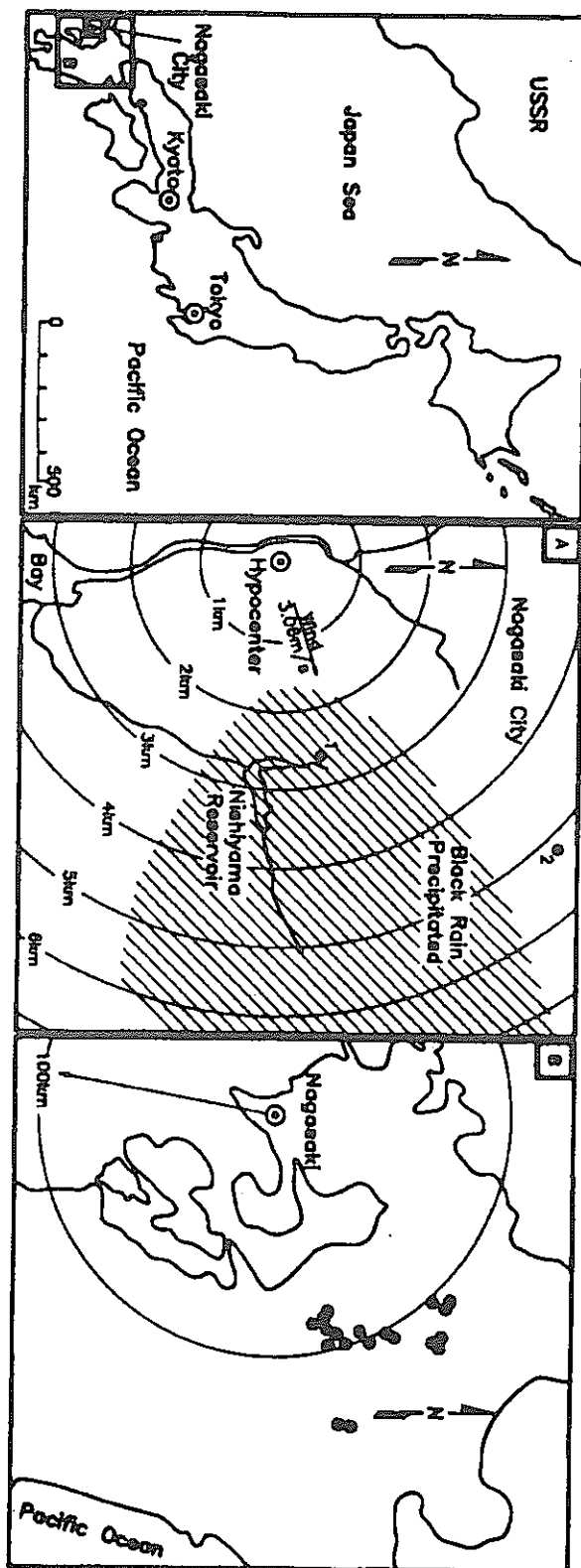


Fig. 2. Geographical Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ Concentrations, East and West of the Hypocentre.

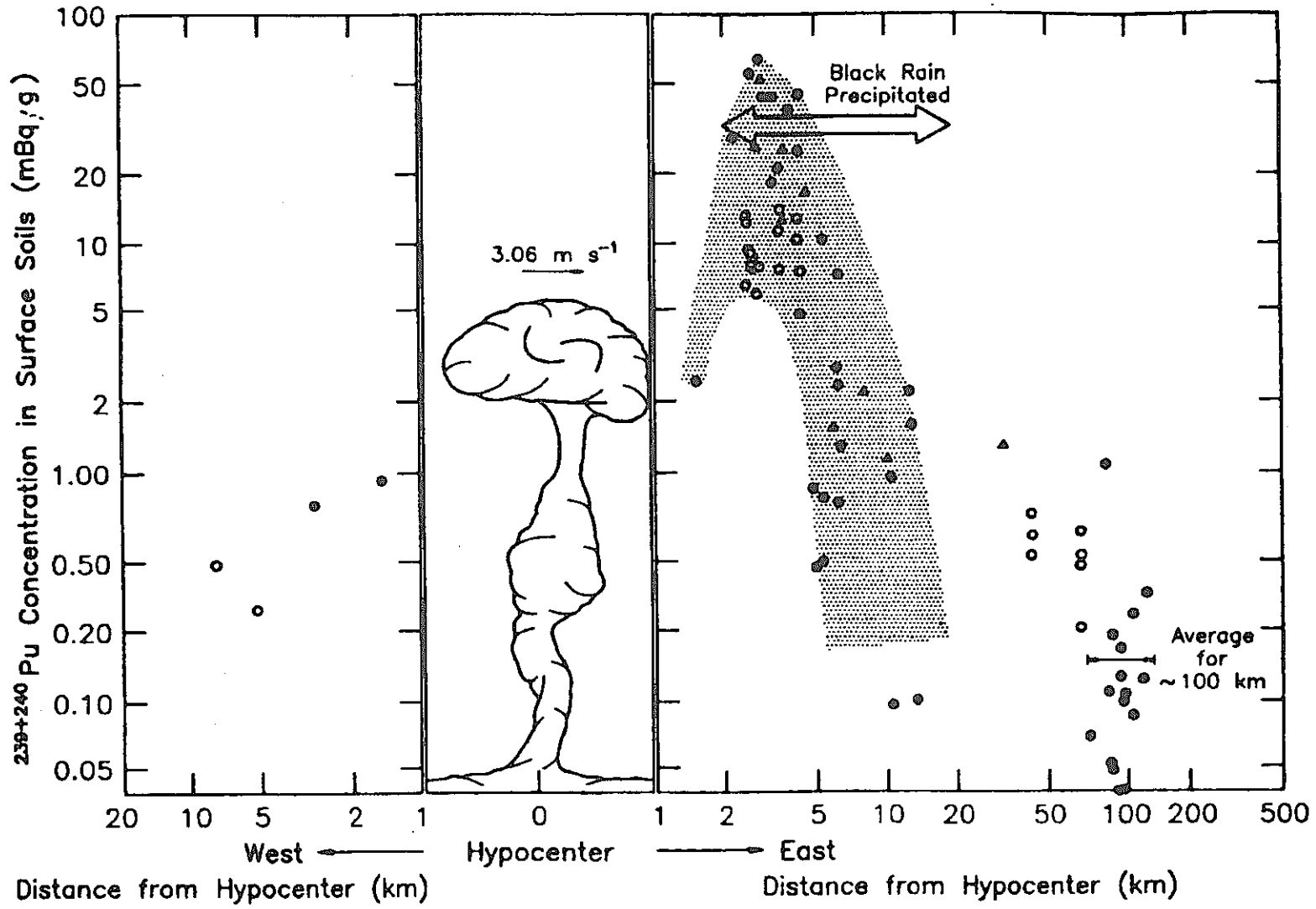


Fig. 3. Geographical Distribution of ^{137}Cs Concentrations, East and west of the Hypocentre.

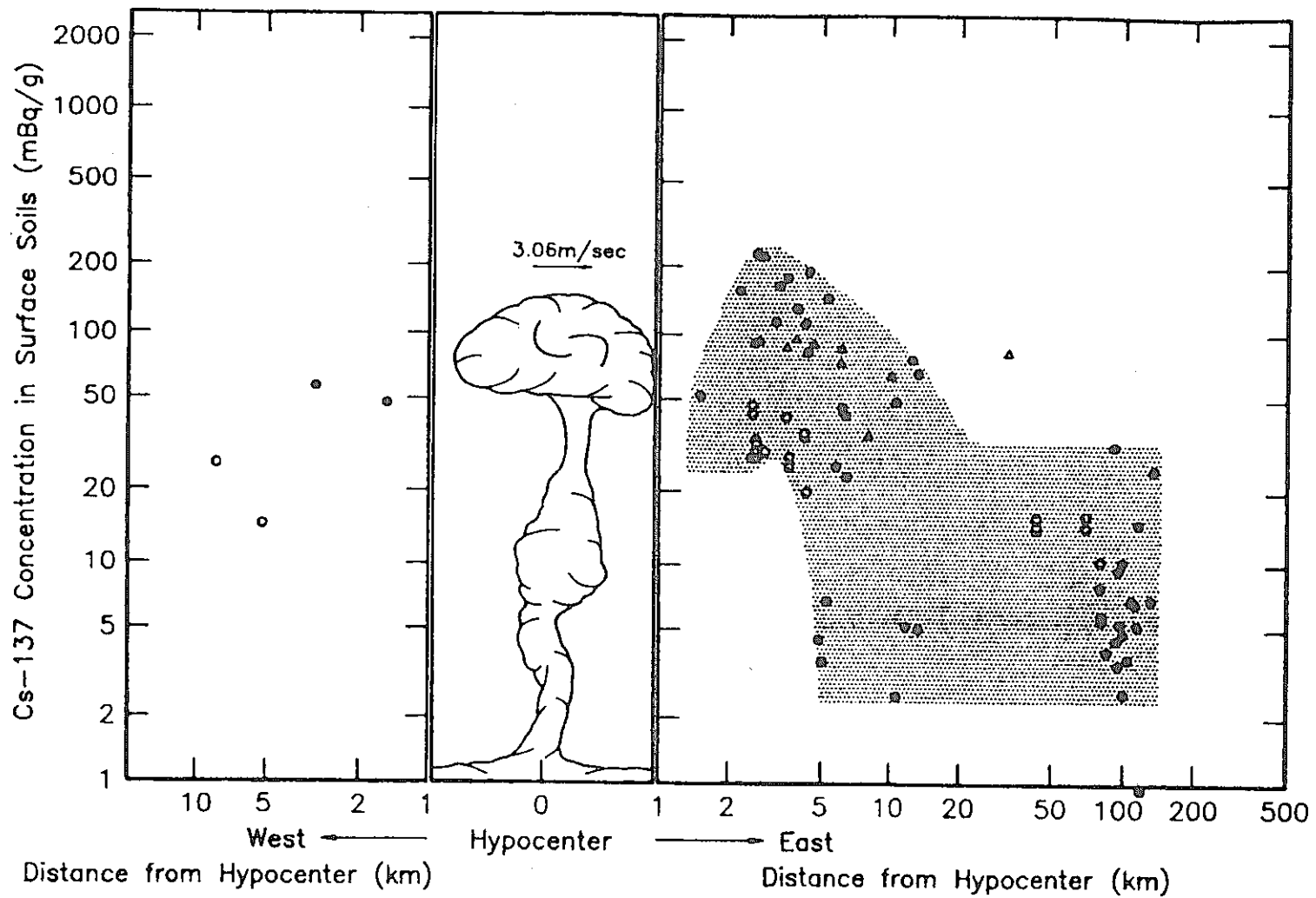


Fig. 4. Concentrations of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs within the sediment cores collected from freshwater reservoir at Nagasaki.

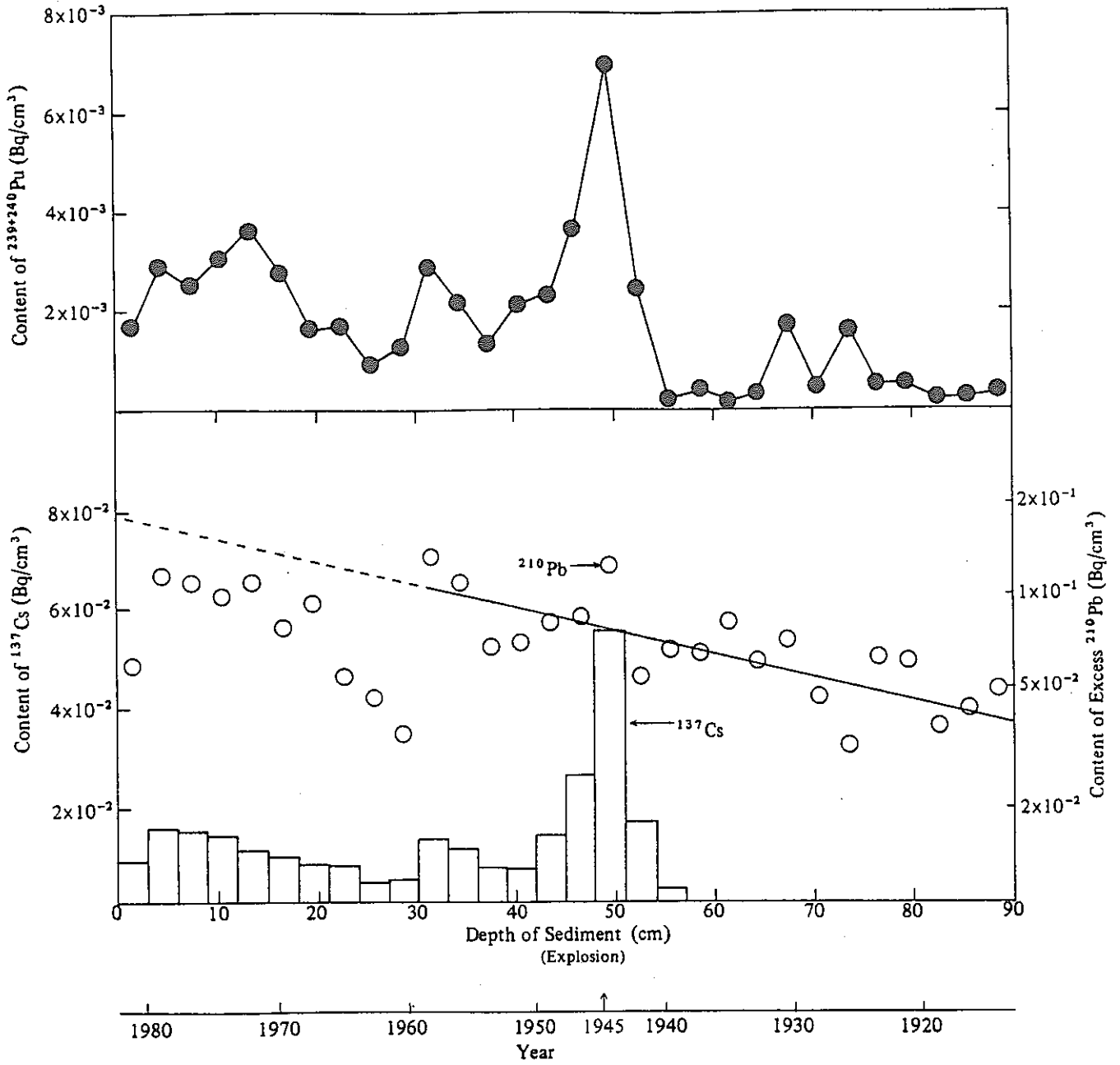


Fig. 5. The location of study area in Nagasaki and the sampling sites for soil cores, sediment cores, and the tree ring.

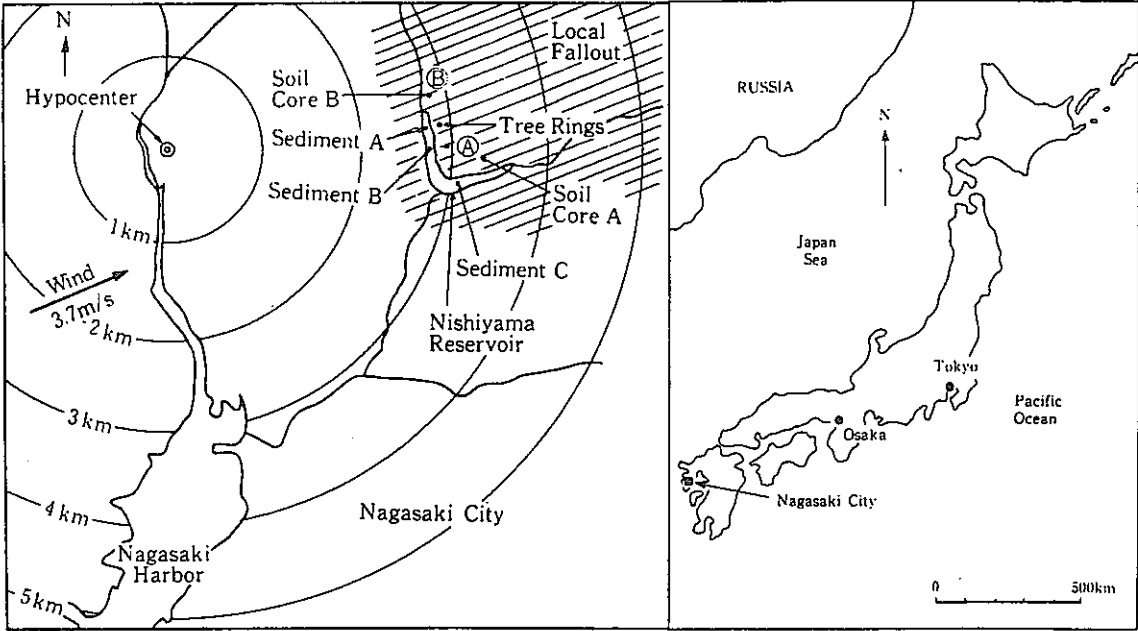


Fig. 6. Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs and excess ^{210}Pb in sediment cores collected from Nishiyama reservoir.

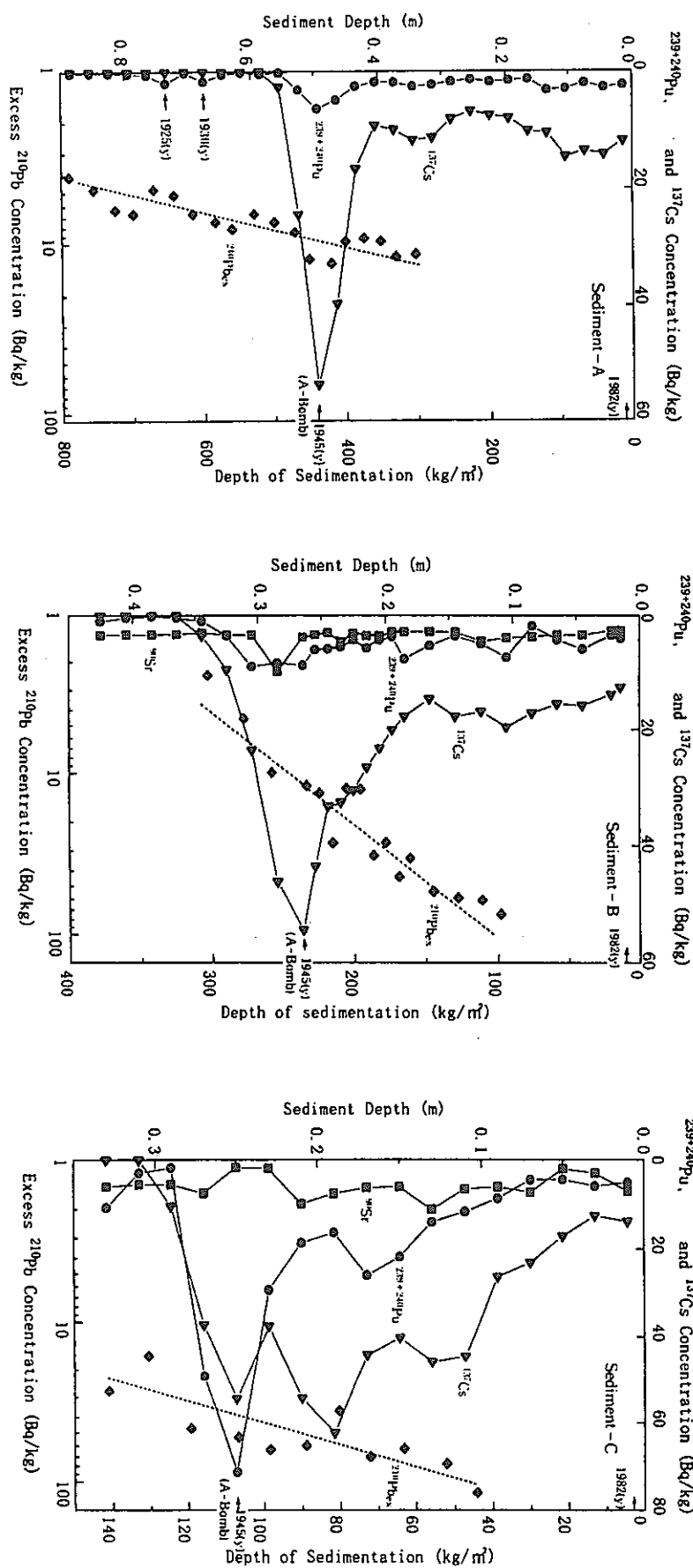


Fig. 7. Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in sediment cores and tree rings.

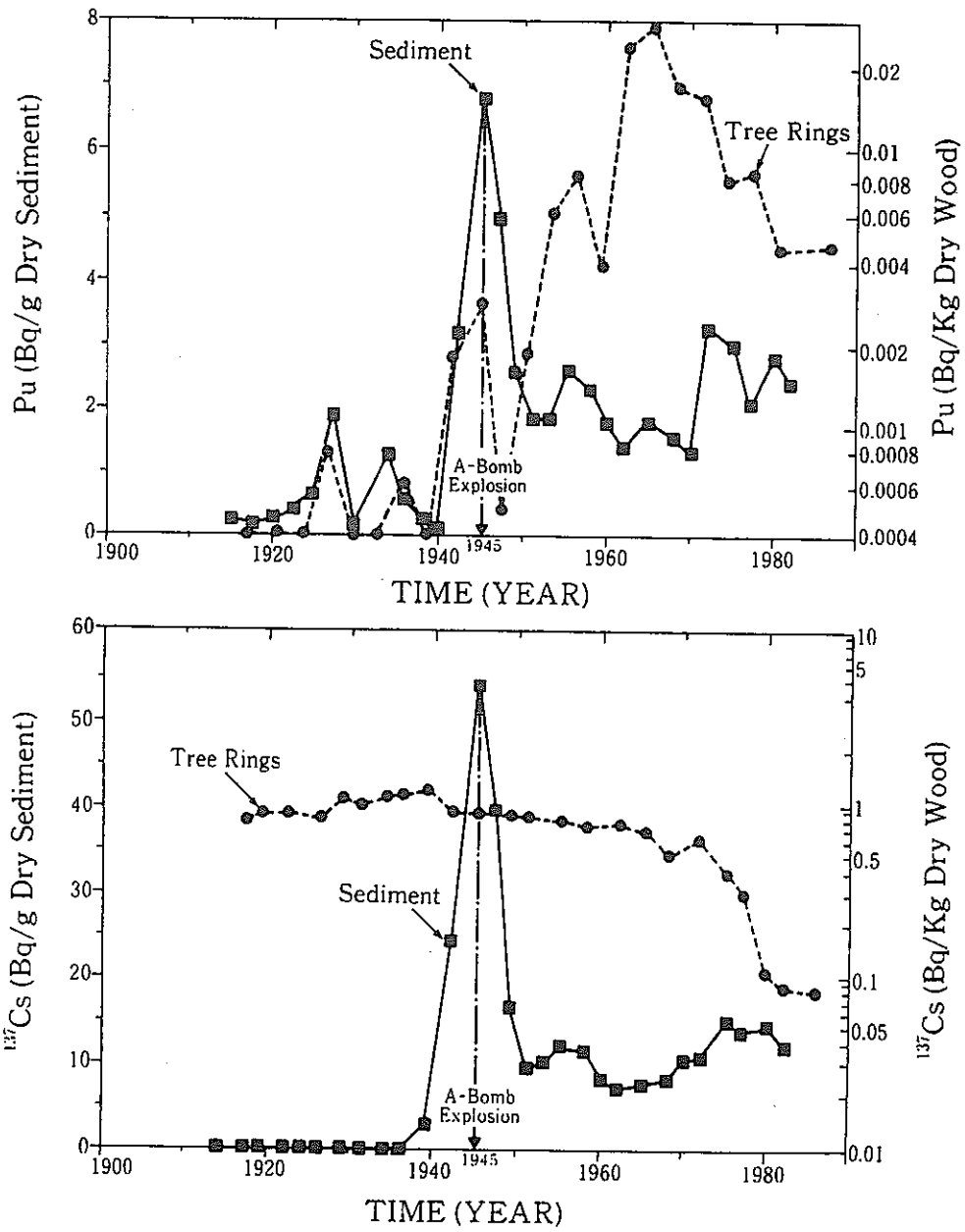
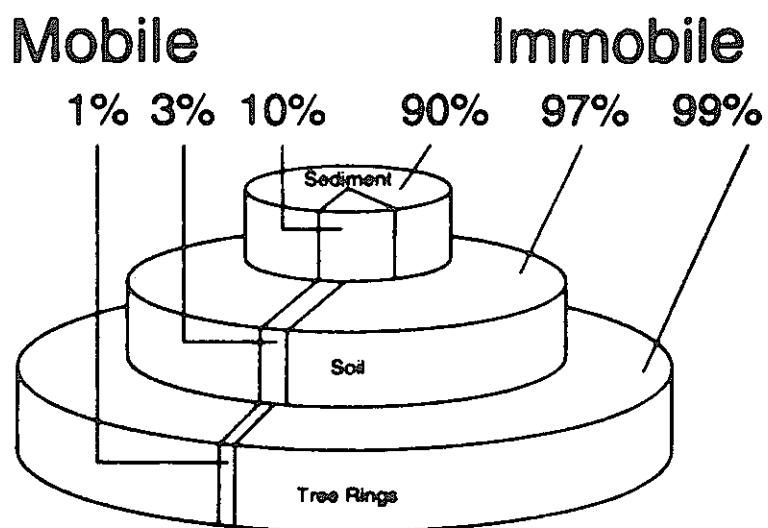


Fig. 8. Mobility of Pu in the environment (soil, sediments and tree rings).



3. Verification of the assessment research about migration of radioactive element (Japanese)

わが国のファーフールドにおける放射性核種移行研究の到達点と 今後の課題

Contents

1	はじめに	2
1.1	地層処分研究開発第2次取りまとめ	2
1.2	本論説の観点 - genericな安全評価研究からsite-specificな安全評価研究への移行に求められるもの	3
2	環境中放射能移行予測モデル	4
2.1	地層処分の環境安全評価に係わるモデルの役割	4
2.2	モデルの分類	5
2.3	「放射能移行予測モデル」の国際プロジェクトの教訓	7
2.4	「放射能移行予測モデル」における予測の不確実性	8
2.5	モデル構造の・数式に係わる不確実性への対策	10
2.6	モデルへの入力データ・パラメータに係わる誤りの低減化の対策	13
2.7	モデル化の限界	17
2.8	モデルの不確実性解析の手順	17
2.9	実データによるモデルの検証段階における不確実性の評価方法	21
2.10	モデルにおける「保守的」仮定の落とし穴	23
3	「第2次とりまとめ」の到達点と今後への提案	24
3.1	地層処分の環境安全評価におけるモデルの適用手順	24
3.2	「第2次とりまとめ」におけるファーフールド放射能移行評価の到達点	26
3.3	今後の研究への提案	26
3.3.1	研究資源の最適化のために - ファーフールド・生態圏における不確実性解析	26
3.3.2	環境放射能移行モデルの検証 - 説得性の向上策	29

1 はじめに

1.1 地層処分研究開発第2次取りまとめ

わが国においては、「原子力の研究、開発及び利用に関する長期計画」^[6]に従い、21世紀における高レベル放射性廃棄物地層処分場の操業をめざし、核燃料サイクル開発機構（以下、「サイクル機構」と略称）を中核推進機関として、研究開発が進められている。その成果は、1999年に、「地層処分研究開発第2次取りまとめ」（以下「第2次取りまとめ」と呼ぶ）として核燃料サイクル開発機構から公表されたところである。

上記の「第2次取りまとめ」は、以下の目標：

1) わが国における地層処分の技術的信頼性を示す、

- (1) 地層処分場の設置に適した、長期にわたって安定な地質環境がわが国にも存在することを示す^[6]
- (2) 現在の工学技術で、技術的・経済的に無理なく、地層処分場が建設可能であることを示す^[6]
- (3) 地層処分システムの性能を、ニアフィールドの性能を中心に、十分な信頼性を持って評価する^[7]

2) 処分予定地の選定ならびに安全基準の策定に資する技術的拠り所（判断材料）を示す、

を主眼に行われた^[4]。

サイトを特定することなく、いわゆる generic かつ科学的な検討を実施することにより、地層処分の概念の成立に係わる技術的信頼性と判断材料が、提供可能である、というのが、「第2次取りまとめ」の立脚点である。そのため、処分する地層についても、未固結岩等の明らかに適性の劣るものは別として、岩石の種類を特定せず、幅広い地質環境を対象とした調査検討が行われている^[6]。

そして、上述の目標設定からも明らかなように、「第2次取りまとめ」では、天然バリア（ファーフールド）の性能評価についても議論は行われているものの^[7]、表向き、ニアフィールドのバリア性能評価が看板とされている。これは、ひとつには、わ

が国の高レベル放射性廃棄物地層処分においては、処分する地層の岩石について天然バリアとしての機能を過度に期待せず、人工バリアの性能に余裕をもたせることで、地層処分システムの安全性を担保する「ニアフィールドアプローチ」をとっているためである（原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会¹⁰⁾。さらに、処分サイトが定まっていない現段階では、いわゆる generic な環境アセスメントを行わざるをえないが、現実には存在しない「generic な自然環境」を対象とした評価には限界があるためでもある。実際、処分サイトの環境に関する詳細な情報なしで、環境中放射能移行の精度良い予測を行うことは困難である。

1.2 本論説の観点 - generic な安全評価研究から site-specific な安全評価研究への移行に求められるもの

処分場が未選定であるため、「第2次取りまとめ」においては、処分場の岩盤—地下水系および地表生態圏環境についても、generic な検討を行わざるをえなかった。ただし、現実には、generic な環境というものは存在しない。自然環境は、ある程度の因果律を保ちつつも、微妙な条件の違いや、人間の活動の影響をうけ、多様な姿を有している。例を挙げれば、「寒冷な高地には一般に温帯広葉樹林ではなく、針葉樹林が発達するが、交通量の多い林道が通れば森林が枯れ、風食が激しければ森林ではなく草原を形成する、火山噴火があれば植生が全滅する」のであって、特に、地表生態圏は、複雑である。なお、自然界を構成する三圏（地圏・気圏・水圏）のうち、最もモデルによる物質移行予測の困難な圏は、BIOMOVSII の経験によれば、地圏である¹⁴⁴⁾。これは、地圏に特有の不可視性（観測困難性）と空間的不均質性のためである。当然ながら、サイトを選定しえない現段階で、「安全基準策定に資する」ような放射能移行予測を実施することには、大きな限界がある。

それでは、サイト選定後の天然バリアならびに地表生態圏における放射能移行評価と、その帰結としての公衆の被曝評価を合理的に進めるために、現時点では、どのような研究を推進する必要があるのだろうか。あるいは、サイト選定後に、残された具体的な研究に着手すれば、事足りるのであるだろうか。本論説は、以上の疑問に対処するために、主に天然バリア（i.e. ファーフィールド）および地表生態圏における放射能移行評価研究の現状を、移行モデルを中心として検討し、今後、地層処分の環境安全評

価に関連して進めるべき研究の方向についていくつかの提案を行うものである。

2 環境中放射能移行予測モデル

2.1 地層処分の環境安全評価に係わるモデルの役割

地層処分の環境安全評価とは、

- a) 「決定集団の被曝線量」のモデルによる予測、
- b) 予測結果に対する放射線防護上のリスク評価^[10]、

である。この被曝線量の予測に至るには、放射能の漏出および移行シナリオ、地層処分場からの漏出放射能が環境中を移行する経路、シナリオに依存する決定集団の定義、という無数の「仮定」と「過程」の積み重ねが存在する。

環境アセスメント一般において、モデルの役割は、非常に重要であるが、地層処分におけるモデルの役割は、従来にない特殊で困難なものである。このモデルには、無数の「仮定と過程」を数式で表した上で、数百年—数万年単位の遠未来の被曝線量について、正確ではなくとも、少なくとも安全側の予測を行うことが求められている。残念ながら、遠未来の予測についてのモデルの性能を、データに基づいて直接的に検証することは、不可能である。にもかかわらず、このモデルによる予測に係わる個々の過程は、国民の目から見て説得的でなければならない。このような目的に用いられるモデルを、本論説では「予測モデル(predictive model)」^[9]と呼ぶことにする。

幸い、地層処分に関する限り、あらゆる種類の放射能の移行に係る環境中のあらゆる素過程を物理的・化学的・生物学的に徹底して研究することは、不要である。「決定集団」の被曝の鍵を握る決定経路と決定核種、シナリオを同定し、研究の必要な素過程をしばりこむことができる^[47]。それはまた、地層処分に必要な技術開発の人的・経済的資源の有効な節約にもなる。このようなしばり込みもまた、モデルにより行われるが、本論説では、この目的に用いられるモデルを、「スクリーニング・モデル(screening model)」^[72]と呼ぶことにする。

既に、地層処分に係わる多くの性能評価の結果から、比較的限られた数の核種しか最終的な被ばく線量に寄与しないことがわかっている^[119]。興味深いことに、予測値

の変動が、限られた数のパラメータの変動によって主として支配される、という結果が、他の環境システムモデルにおいても観察されている^[62]。なお、第2次取りまとめにおいては、被曝線量の予測値への寄与の大きい核種として、Cs-135, Se-79, Np-237, Th-229等が挙げられている^[7]。

「スクリーニング・モデル」および「予測モデル」を構成するにあたっては、モデラーが環境中における個々の放射能移行過程について、基本的な理解を有している必要がある。この理解を助けるモデルを、ここでは「説明モデル(explanatory model)」と呼ぶ。実際、多くの環境現象、そのうちでも特に環境移動現象においては、視察により直観的に全ての因果関係が理解できることは稀である。現象を説明・理解するために、数理モデルの構成とシミュレーション、実データとの比較が不可欠ことが多い。また、後にも述べるが、一見「保守的」に見える仮定(例・核種の地質媒体への収着分配係数が低い)が、モデルの構造^[118]やシナリオの設定^{[18][55]}によっては、危険側の評価を生むことがある。モデラーが「説明モデル」の助けを借りて、基本的現象を理解しておくことは、安全側の予測値を導くためのモデル化上の「保守的」仮定をどうおくべきか、を知る上でも重要である。

まとめると、地層処分に係わる放射能移行のモデルには、(1)将来予測、(2)環境というシステムの挙動評価、(3)個々の環境現象の理解、の3つの目的があることになる。それぞれの目的に係わるモデルを、ここでは「予測モデル」、「スクリーニング・モデル」、「説明モデル」と呼ぶことにし、次節でこれらを定義する。なお、異なる目的に資するモデルが、実際に同一のものであることも、起こりうる。

2.2 モデルの分類

本論説では、数理モデルを、目的、特性、構造により以下のように分類して呼ぶ。

本論説における各種の数理モデルの呼称

目的別分類 説明的モデル(explanatory model)、スクリーニング・モデル(screening model)、
予測モデル(predicive model)

特性別分類 理論モデル(theoretical model)、経験論的モデル(empirical model)

構造別分類 数学モデル(mathematical model)、数値モデル(numerical model)

例えば、分子拡散を表わす Fick の拡散方程式は理論モデル、対するに大気拡散に関するサットンの式^[15]は経験モデル、と分類できる。後出する移流分散方程式 (1) は、数学モデルであり、それを離散化^[4]すれば、数値モデルができる。「スクリーニング・モデル」「説明モデル」「予測モデル」については以下に述べる。

「スクリーニング・モデル」^[72]は、潜在的に重要な被ばく経路・核種・パラメータを同定し、重要でない過程を除外するためのものである。このモデルは、簡単な構造とするために、関連するパラメータを「集積」させて表し (例: 人工バリアからの放出率、生態圏内輸送率)、モデルの構造を単純化した上で、パラメータ感度解析等により、決定経路同定等に使うことが多い^{[71] [90]}。感度解析時のパラメータの変動範囲は、現実的に可能な限り大きくする。標準のパラメータの組を決めておき、一度にひとつだけのパラメータを動かすアプローチが一般的であるが、実際には、パラメータ感度解析は、パラメータ同士に相互関連がある場合があることを考慮して実施することが必要である (随伴感度解析)。さらに、標準のパラメータ値が異なると、同程度のパラメータ値の変動であっても、モデルのパラメータへの応答が異なる場合もありうる。パラメータ数が多い場合、パラメータの変動範囲を限定した不確実性解析に比べて、感度解析の方が多くの計算機資源を使うことも少なくない。そのため、スクリーニング・モデルの段階から、パラメータ不確実性解析が実施される場合もある。不確実性解析においては、Latin hypercube 法、importance sampling 法等により、パラメータの乱数発生を行い、モンテカルロ・シミュレーションを実行する方法が、よくとられる^[79]。近年、ニューラル・ネットワークのアルゴリズムを用いて、感度解析・不確実性解析を効率化しようとする試みもある^[95]。

「説明モデル」は、可能な限り簡単な構造と最小限のパラメータ数を有するもので、既存のデータを一定の精度でもって説明できることが望ましい^[93]。パラメータ数をいわずらに増やせば、パラメータの特異性が失われ、ひとつの現象を説明するのに、複数のパラメータの組み合わせが可能である、という事態が発生しうる。そうなると、実現象を説明する、というモデル化の目的から外れることになる^[85]。なお、「説明モデル」を予測 (すなわち外挿) に用いると、しばしば、予測の不確実性を過少評価することにつながる^[28]。

「予測モデル」は、モデルの目的に応じ、通常の条件（シナリオ）下では発現しえない状況にも対応して、時として「説明モデル」であれば必ずしも必要ないパラメータやモデル構造も含む(overparameterizedである)必要がある^[85]。例えば、生態系に大きな攪乱が発生した場合のモデル^[91]は、それが起こらない場合のモデルとは、構造からして異なることが求められる。ただし、このような「予測モデル」は往々にして、定常的な条件下での予測精度は、「説明的モデル」に比べ悪いことがありえる^[28]。しかし、モデルによる予測の目的が、例えば最悪のシナリオ下での核種移行を予測することであれば、多少、予測精度を犠牲にすることも、やむをえないことになる。概して余分のパラメータを多く含む「予測モデル」は、parameter uniquenessが低く、パラメータ値の変動に対して鈍感で、言いようによれば、パラメータ値の変動によって予測能力が左右されず安定している、とも言える。

2.3 「放射能移行予測モデル」の国際プロジェクトの教訓

地層処分における放射能移行予測モデルが、予測と評価という初期の目的を果たすためには、当該モデルが使用に堪える予測性能を有することが、証明されなければならない。従来から、環境アセスメントモデルの予測性能を評価するための国際協力プロジェクトが、種々、行われてきた（例えば、BIOMOVS (The Biospheric Model Validation Study^[108]), VAMP (Validation of Model Predictions^[73]), BIOMOVSII (The Biospheric Model Validation Study - Phase II^[44]、BIOMASS (Biosphere Modelling and Assessment Methods^[68]))。以上のプロジェクトは、もっぱら放射能の環境中挙動の予測により核燃料サイクル施設の環境影響評価のためのモデルを複数の機関が独自に開発し、モデルの予測結果を相互に、また実測データと、比較するものである。これらのプロジェクトを通じ、得られた成果は、次のように整理することができる。

放射能移行予測モデル: 国際プロジェクトの教訓

- 1) アセスメントのためのシナリオと概念モデルの構築においては標準生物圏モデル手法を用い、以下の事項に注意する (BIOMOVSI^[44])。
 - (1) モデル化の目的を考慮する、
 - (2) 環境条件および人間の挙動のモデル化に際し、措く仮定を明確化する、
 - (3) モデルにとりいれるべきFEP (Features, Events and Processes) を明確化する、
 - (4) シナリオを厳密に定義する。
- 2) より詳細なモデルを構築することが、予測精度の向上につながるとは限らないが (BIOMOVSI^[48])、各サイト固有の状況に対応できるように、モデルに柔軟性を持たせることは重要である (VAMP^[68])。
- 3) パラメータ値として generic な値を使うより、site-specific な値を使う方が、より良い予測値がえられる^[44]。
- 4) モデラー・解析者の訓練と経験は、数値コード化の誤りをさけ、またシナリオやモデル化の対象の定義が未確定な場合や入力データが不完全な場合でもモデルの予測性能をある程度発揮させることができる^{[68] [81]}。
- 5) 結果の信頼性が重要なアセスメントについては、必ず複数のグループが独立に評価に係わった上で、評価の最終結果について、グループ間の評価結果に乖離がなくなるまで、相互の討論をする^[68]。
- 6) モデルは多様なサイトと多様な条件下で試験する必要がある。

2.4 「放射能移行予測モデル」における予測の不確実性

一般に環境に係わるモデルの予測あるいはシミュレーション性能の低下に係わる誤差を、「不確実性」とよぶ。環境現象について、モデルによる予測を行う際に発生する不確実性の種別と発生の機構をまとめると、次のようになる。

モデルによる予測の不確実性と発生機構

イ モデルの構造・数式に係わる誤り [30] [32]

- (1) モデル要素間の関係の表現が、現実界と食い違っている、あるいはモデル要素のまとめかたが不適切であるためにおこるもの [48] [85] [104] [97]
- (2) モデルに係わる時間的・空間的 [88]・概念的境界 [92] の選択の誤りによるもの [85]
- (3) モデルを行う人間の側における理解不足や誤解によるモデルの誤り、もしくはモデル化の最終目的と構築されたモデルとの不整合によるもの [81]
- (4) ヒューマン・エラーによるモデルの数式の誤り、モデル・コードの誤り、数値解法に依存する数値誤差
- (5) 未知の事象（予測不能の未来の事象等）によるもの

ロ 入力データ・パラメータ・シナリオに係わる誤り [89] [107]

- (1) 実データによる検証不十分なパラメータ使用に伴うもの [82]
- (2) 入力データ・パラメータが、シナリオに依存しない、環境事象に固有の空間的・時間的変動に伴い、確率論的に変動することによるもの [51] [23] [104] [110]
- (3) パラメータの非特異性によるもの [64]
- (4) シナリオに連動して、適切にパラメータが設定されていないことによるもの [46] [47]
- (5) 未知の要因・事象（シナリオ依存性）によるもの（例： 汚染源の規模・放出発生時期が不明である [105] ）

ハ モデル化の限界

- (1) 計算機資源の制約で関係する現象全てを計算コード化することができない（例：乱流現象）

上記に示す不確実性を 2. 8 節に述べる「不確実性解析」により評価し、低減化策を見いだし、「予測モデル」の性能向上をはかることが、地層処分の安全性評価の確立につながる。なお、上記の不確実性に関する議論の大部分は、実現象を理解するため

の「説明モデル」にもあてはまる。基礎となる現象の理解が不十分な分野に関しては、まず現象の理解に向けたとりくみと「説明モデル」構築が必要であることは言うまでもない。

2.5 モデル構造の・数式に係わる不確実性への対策

モデル構造の選択に係わる不確実性の評価・低減化対策は、入力パラメータの不確実性による誤りを検出することに比べ、一般に難しい^[80]。従って、この誤りは、複数のモデラーが、同一の問題に独自の観点から取り組み、その結果を相互比較する中で、はじめて明らかになることが多い。このような複数のモデラーによる取り組みは、BIOMOVSIIにおいても、VAMPにおいても、強く推奨されている。

特に、イ(1)に掲げた「モデル要素間の関係の表現が、現実界と異なっている」ことにより生じる誤り、あるいは、イ(2)に示した「モデルに係わる概念的境界の選択の誤り」を避けるには、一種の「思想革命」(注-1)を要する。これは、現象を定式化するにあたり、全く異なる切り口からのアプローチを必要とするからである。この場合、今まで「パラメータ」として定式化していた対象が、異なる観点から解釈すれば、存在しない、ということもありえる。このような場合、複数のモデラーによる評価と同時に、実データを用いてモデルを評価することが不可欠である。

イ(3)に掲げたモデルを行う人間の側の理解不足・誤解と、イ(4)に掲げたモデル・コードおよび数式の誤りは、それぞれシナリオ・モデル化の目的・必要なデータを十分に定義すること、およびモデラーに対し適切な訓練を与えることで、回避されうる^[81]。この種の誤りにより発生する不確実性は、意外に大きい。実際、BIOMOVSIIおよびBIOMOVSIの経験から、シナリオの定義不足により、モデラーの間にシナリオについての解釈の違いが発生した結果、生じた予測の不確実性は大きく(図1)^[81]、モデルの構造・数式・モデルパラメータによる予測の不確実性を凌駕する場合もあることがわかっている。また、モデラーは、よく状況のわかったサイトについてシミュレーション・モデルを構築する方が、より予測性能の優れたモデルを構築できる、と言われる^{[63][68]}。VAMPプロジェクトにおいて、サイトの状況に関する情報、チェルノブイリからの放射能汚染の到着状況、および水・大気・土壌中の放射能初期値をモデラーに与え、食物連鎖における放射能の移行・分布とヒトの被曝線量の経時変化を予測し

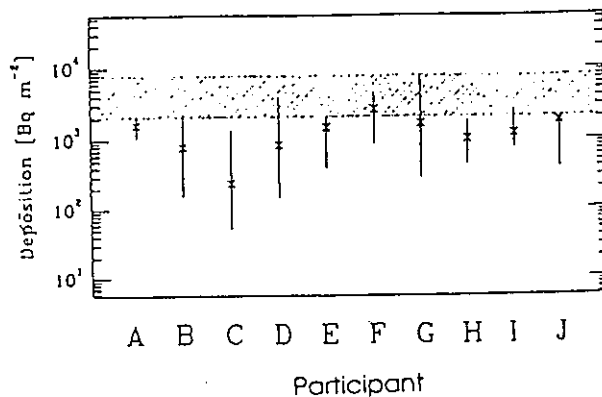


Figure 1: ユーザーの解釈の差により生じたモデルの予測値の差 (Kirchner et al.,1999)

た例では、予測値が実データの2-10倍以内、という非常に高精度の結果がえられている(図2)^{[68][74]}。これは、経験を積んだモデラーが、実データの観測に係わる不完全性や核種移行のメカニズム・パラメータに係わる情報を、いわゆる *expert judgment* で補ったことも関係していると推定される。モデラーへの十分な情報提供のみならず、モデラーの経験が重要なことの証左と言えよう。

イ(5)の人間にとって未知の事象によるモデル構造の誤りは、イ(1)のモデル要素のまとめかたあるいはイ(2)のモデル境界の選択の問題とならび、しばしば *lack of identifiability of model parameters* (モデルパラメータの同定不能性)とも形容される^{[27][28][29][32][77]}。この現象は、モデルの予測あるいはシミュレーション性能の検証をする際に使用する実データが、狭い範囲の事象にしか対応していないために、生じることも多い。多様な状況下でえられた検証用実データの使用が重要な所以である。また、ベイズ法の導入により、モデル構造の誤りが予測に与える影響を、一定程度抑制することも可能である^{注-2}。

(注-1) **モデルの概念的境界の選択** モデルの概念的境界の選択が任意である場合の典型的な例として、第2次取りまとめにおいても解析パラメータの対象になっている「分散係数(巨視的分散長)」(核燃料サイクル開発機構、1999、p. V-63^[7])について解説する。
地下水-地質媒体中における溶質の移流分散現象は、Euler的な観点に立ち、分散係数

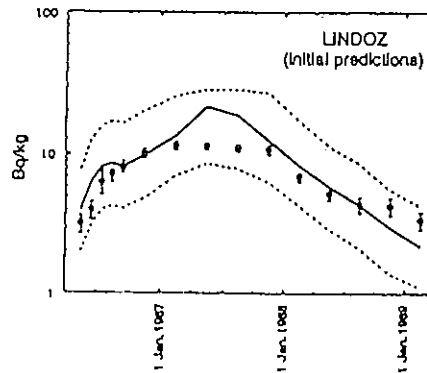


Figure 2: 十分な情報を与えられたユーザーが行ったモデルによる予測と実測値の比較 (Hoffman and Thiessen, 1995)

をパラメータとして用いた以下の移流分散方程式

$$\frac{\partial \theta(x)C(x,t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left((D(x) + D_m(x)) \frac{\partial \theta(x)C(x,t)}{\partial x} \right) - u(x) \frac{\partial \theta(x)C(x,t)}{\partial x} \quad (1)$$

で表現することができる。ここに、 $C(x)$ は位置 x における物質濃度 [M/L^3]、 D [L^2/T] および D_m [L^2/T] は、溶質の分散係数および分子拡散係数マトリクス、 u [L/T] は、溶質の移流速度マトリクス、である。

一方、地下水中を移動する溶質粒子の移流分散現象は、Lagrange 的な観点に立って、その位置を表す不規則過程

$$z(t_i) = z(t_{i-1}) + p(z, t_{i-1}) \quad (2)$$

と見なすこともできる^[19]。上式では、 $z(t_i)$ は、時刻 t_{i-1} における「溶質粒子」の位置であって、この位置は $p(z, t_{i-1})$ は、溶質位置への摂動を表わす不規則過程である。

式 (2) 中の $p(z, t_{i-1})$ が、ある非負の定数（すなわち流速）と白色雑音の和である場合、多数の溶質粒子について式 (2) をシミュレートすれば、式 (1) で D 、 D_m 、 u が定数ベクトルである場合と、ほぼ同様の物質輸送過程を表わすことになる。しかし、 $p(z, t_{i-1})$ ないしは D 、 D_m 、 u の特性によっては、式 (1) と式 (2) は、相異なる特性の移流分散現象を表わすことになる。式 (1) と式 (2) いずれの数学モデルを用いるのが適切なかの、

は、説明しようとする現象に応じて、すなわち、実データとの比較結果に応じて、選択することになる。

注-2 **ベイズ法** ベイズ法で算定したパラメータを使ったモデルの使用により、それ以外のモデルを使用した場合に比べ、モデルにおいて陽に考慮されなかったパラメータ値（未知の要因）が発現して予測結果に影響する場合においても、予測の誤差を小さくできる場合がある^[93]。このベイズ法^{[31] [61]}では、モデルのパラメータ自体が確率変数である、と仮定してモデルのパラメータ推定を行うものである。更に、主観的な判断を加味できる、という特性のために、確率論的なリスク評価に広く使われている（Siu and Kelly^[103]による解説を参照）。実際、「予測モデル」は、通常でないシナリオ（大地震、気候変動等）下でも性能を発揮することを求められるのであり、現時点での科学知識を超える要因（陽に考慮されないパラメータ）が現象を左右することは十分考えられる。パラメータを点推定もしくは区間推定する場合に比べ、ベイズ法の計算の手間は大きいとは言え、このようなアプローチは意義があると考えられる。

なお、ベイズ法がその特性を発揮するには、各パラメータの確率分布の初期値が現実的なものであることが重要であり、site specificなパラメータ群を収集して、初期分布値として使用することが理想的である。Bayesの手法では、この初期パラメータを使って、予測モデルで複数の検証データにより順次、パラメータの確率分布を最適化して使用することになる。

2.6 モデルへの入力データ・パラメータに係わる誤りの低減化の対策

モデルへの入力データ・パラメータにより生じる不確実性は、最もよく不確実性解析の対象となる部分である^{[89] [107]}。この種の問題は、モデルの構造に係わる不確実性に比べて、より発見しやすく、より取り扱いやすい。

先にあげたロ(1)の「実データによる検証不十分なパラメータ使用に係わる不確実性」の低減のためには、放射性核種と環境の特性に依存する各種のパラメータを実データに基づいて検証し、改善していくことが必要である。いわゆるリスク評価モデルには、必ずkey parameterを算定するためのサブモデルをセットで開発することが、必須であると言われている^[82]。このような、実データによるフィッティングで得られたパラメータの使用が、モデルの予測性能を向上させることは、周知の事実である^[114]。たとえば、Håkansonら^[63]は、VAMP^[73]において、湖における放射性セシウムの生態系

Table 1: パラメータ数の多寡とモデルの予測性能の指標値PP (Predictive Power: 高いほど予測性能良好) (Håkanson et al., 1995)

	Model variables		Lake specific variables		n = n ₁ + n ₂	R ²	CV	Slope,		PP
	n ₁	n ₂	n ₁	n ₂				MV	1.1 - α	
Mixed model	6	5			11	0.65	0.427	1.12	0.21	7.42
VAMP model	21	13			34	0.65	0.428	0.85	0.25	6.12
Generic model	27	9			36	0.56	0.602	1.15	0.23	3.99
Empl versus Emp2						0.59	0.603	0.59	0.51	1.93

内の動的分布を複数のモデルを用いてモデル化し、モデルパラメータをフィッティングした上で、最も重要な経路だけを記述した、パラメータ数の少ないモデルを使うことで、より複雑なモデルを使用するよりも、良いシミュレーション精度を得られたことを報告している (表1)。ただし、Håkanson らの言う、最も重要な経路だけを記述した、パラメータ数の少ないモデル、とは、「説明モデル」に属すると考えられる。ともあれ、個々の現象についてのシミュレーション性能の優れた「説明モデル」を積み上げ、シナリオに応じて改変して用いることで、より優れた「予測モデル」の体系を作っていくことが、全体として望ましい。

口(2)の「入力データ、パラメータの確率論的変動」は、環境事象に特有な、本質的なものであるから、低減化を行うというより、観測値に基づいて、データ・パラメータの統計的変動範囲を把握すること、およびその結果として生じるモデルによる予測値の変動を把握すること、が対策の中心になる。

このようなパラメータの本質的な (i. e. シナリオに依存しない) 確率論的変動に関して、大きな問題になるのは、地圏における各種のパラメータの空間的不均質性と考えられる。実際、BIOMOVSIIでの評価においても、汚染物質の大気圏・水圏への放出を想定した場合の予測の不確実性に比べて、地圏への放出を想定した場合の予測の不確実性は大きい、と言われており^[44]、その原因のひとつとして、地圏におけるパラメータの空間的変動が寄与していると考えられる。地圏に特有の不可視性のため、地質媒体の性質を表す各種の物性値 (間隙率、割れ目の開口幅、割れ目の頻度) やパラメータ (透水量係数、拡散係数、分散係数、物質の収着係数等) が空間的に変動する

ことはわかっているものの、その空間的分布を精密に求めることは、事実上、不可能である。必然的に、地質媒体の空間的不均質性により生じる各種のパラメータの不均質性を数学的に説明・推定・モデル化し、地質媒体系における物質輸送現象をシミュレート・予測するため、多数の研究が行われてきている [19] [21]。例えば、離散的な幾つかの点について明らかになったパラメータ・物性値の観測データに基づいて、解析対象領域の各点におけるパラメータ・物性値を推定する手法として、kriging 法 [45] [78]、条件付確率場発生法 [42] [43]等が地質媒体に適用されてきた。さらに地質媒体中の割れ目の分布、マトリクス空隙率、透水係数、流速、収着係数等の分布が確率論的に変動すると仮定し、モンテカルロ法 [104] [105] [106]、摂動法 [23] [109] 等によるシミュレーションが実施されてきた。

これらの研究の成果を応用することにより、処分サイトが定まれば、地質パラメータの空間的変動に由来する不確実性は一定程度、掌握可能であると言えよう。ただし、Smith ら [105]の指摘しているところによれば、地質媒体中物質輸送モデルのシミュレーション結果においては、ソース・タームの不確実性（シナリオ依存性の不確実性）がパラメータの空間的変動（シナリオに依存しない不確実性）の影響を凌駕する可能性がある。

パラメータの不確実性は、先に指摘した、「イ モデルの構造に係わる誤り」の結果として、生じる場合もある注-3)。この場合、モデルの構造の検討に立ち返ることが必要になる。ロ(3)に係わる「パラメータの非特異性」による予測の不確実性は、パラメータの同定可能性に欠陥がある（モデル構造の問題）か、パラメータ値の範囲に実は制約条件があるため、であることが多い [85]。ただし、このような「非特異性」を示すパラメータが、重要度の低いものならば、大きな問題ではない。また、見方によれば、パラメータ値の変動によってモデルの予測性能が大きな影響をうけない（モデルの予測性能が安定している）ということである、とも解釈できる。

ロ(4)に掲げた「シナリオに連動して、適切にパラメータが設定されていない」ことによる不確実性は、一種のヒューマン・エラーである。モデラーには、パラメータ値は変動しないほど良い、という先入観があることが多い。光速やプランク定数等、科学の根本原理を表すいわゆる物理定数は、一定であるから、である。しかし、環境移動現象のパラメータに変動はつきものであり、先に述べた「分散係数」のように、そ

の存在すら実は疑わしいパラメータも少なくない。

注-3) 「モデルの構造に係わる誤り」によるパラメータ不確実性 例えば、廃棄物処分の安全性評価における重要なパラメータのひとつである、地下水流れ場における物質輸送の巨視的分散係数については、観測スケールが大きいほど大きい分散係数値が得られる、というスケール依存性 [117] [36] [37] [41] [110] [60] が指摘され、数十年にわたり研究されてきている。なお、第2次取りまとめにおいては、Gelharら^[60]のアプローチを参考に、分散係数は、観測スケール(100m)の10分の1であると仮定して、岩盤割れ目系におけるシミュレーションを実施するとともに、分散係数は、観測スケール(100m)の1倍である場合についても、感度解析として位置付け、計算を実行している^[7]。

このスケール依存性は、(1)トレーサ実験実施時に、強制的に流れ場を乱してしまったために生じる実験誤差、(2)分散係数は、地質媒体の基礎的物性値ではなく、空間的に不均質な地質媒体でのトレーサ試験で得られた破過曲線を移流分散方程式型の数学モデル(式(1))もしくは対応する数値モデルにより解析して得られた経験論的なフィッティング・パラメータである、という2つの理由により生じている。

すなわち、上記(2)の観点によれば、分散係数は、lumped parameter もしくは aggregated parameter の1種である。実際、ミクロなスケールで見れば、物質の移流速度の平均値に対する摂動(すなわち巨視的分散)はさほど大きくないが、地質媒体の不均質性が大きいほど、またトレーサの放出地点から観測地点までの距離が長いほど、物質がうける摂動は移流速度の平均値に比して大きくなり、結果として、観測地点における物質の破過曲線をフィッティングするのに大きい分散係数値を必要とする、ということになる^[2]。従って、解析領域において、Lagrange 的な観点に立ち、式(2)の $p(z, t_{i-1})$ に空間的変動構造を仮定してシミュレーションを行なうならば、「観測スケールが大きいほど、分散係数が高い」というスケール依存性を仮定することなく、観測結果をシミュレートできることになる。

なお、解析領域全域で、スケール依存性の分散係数を定数値として適用した移流分散型モデルでは、目標とする観測地点において、物質の破過曲線はシミュレートできても、解析領域における物質の空間的分布については、シミュレートできていない可能性がある。なぜなら、分散係数にスケール依存性を仮定するならば、移流分散方程式の分散係数は、汚染源からの距離により変化しなければならぬはずだからである

これ以外にも、岩盤割れ目系における透水量係数にも、分散係数の場合と同様に、スケール依存性^{[34] [35] [38] [59]}が観測されている。環境中物質移行挙動に係わるパラメータには、人間の作り出した「一面の解釈」による経験論的なパラメータにすぎないものが少なからずある、ということは、注意すべきである。

2.7 モデル化の限界

数学モデル (Navier-Stokes の式^[3]) が提案されているにも係わらず、既存の計算機科学では完全にシミュレートしきれない乱流現象のように、科学・工学の限界は、常に存在する。とはいえ、デジタル計算機の飛躍的進歩により、廃棄物地層処分に関する限り、決定的に重要なプロセスについて、「数学モデルがあまりに複雑なために、対応する数値モデルの解法がなく」安全評価が壁に突き当たる、ことは、既になくなった。

ただし、地層処分の安全評価において、大容量の計算領域を要する大型の数値モデル群が林立し、パラメータ感度解析や不確実性解析の実施上、計算機資源を圧迫することは、ままあることである^[66]。パラメータの乱数発生において、Latin hypercube 法等を併用して効率化をはかる^[79]、ニューラル・ネットワーク法等のアルゴリズムによるパラメータ組み合わせの最適化^[96]等により、ある程度問題は解決できる。

2.8 モデルの不確実性解析の手順

不確実性解析とは、先に述べた様々なレベルの不確実性が、モデルの予測性能にどのような影響を与えているかを、定量的に明らかにすることである。不確実性解析では、いわゆるパラメータ感度解析とは異なり、パラメータ値に現実的な変動幅を想定して、多数のパラメータ値の組み合わせについて、シミュレーションを実施し、その結果として生じる予測値の変動を評価する^{[98] [99] [22] [70] citeIAEA1989}。その最終目的は、モデルの出力値の統計的信頼限界を算定することである。

パラメータについて不確実性解析を行えば、逆に、どの入力パラメータに係わる測定を強化すれば、予測の不確実性をより抑制できるか、を明らかにすることができる^[114]。例えば、Yucca Mountain における Np について構成した反応性物質輸送モデルの解析から、処分場由来の熱がファーフールドにおけるネプツニウムの挙動に及ぼす影響は小さく、むしろ地下水の水質 (pH, Ca および Na 濃度) が、Np の地質媒体へ

の収着・遅延に大きな影響を与え、重要であるという報告がある^[113]。このようなモデルによる解析を通じた重要要素のしぼりこみは、わが国の地層処分の安全評価においても、さらに追求されて良い。

シナリオの不確実性解析については、近年、種々の研究が行われている^{[24] [65] [66] [47]}。Draperら^[47]は、Bayesの手法により異なるシナリオを合成した場合のリスク評価を行い、シナリオの影響を考慮することで、標準ケースと比して被ばく線量が3けた程度、増加した、と報告している(図3)。Helton^[66]は、WIPP (Waste Isolation Pilot Plant: 米国DOEによるTRU廃棄物処分場)の性能評価のため、異なるシナリオ下で、モンテカルロ法によるパラメータ感度解析・パラメータ不確実性解析を実施し、処分場からの著しい核種放出に寄与するニア・フィールドでのパラメータの同定を行っている。

放射性廃棄物の地中処分に係わる予測モデルの不確実性解析の手順は、ほぼ、以下のようにまとめることができる^{[72][28]}。なお、ここでは、いわゆる「シナリオ」の不確実性の影響は、対応するモデルの構造やパラメータに反映されるものである、という見地から、予測モデルの不確実性解析と一体である、として考察している。

不確実性解析の手順

イ) 解析目的・仮定・知識の整理

- 1) アセスメントの目的（意思決定）と、必要とする回答の明確化
- 2) 解析対象の環境の特性と各特性に係わる不確実性の検討

ロ) 問題の範囲を限定する

- 1) スクリーニング用モデル（主要なモデル構成要素を集積し、簡単化したものが薦められている^[72]）の構成
- 2) スクリーニング用モデルによるパラメータ（随伴）感度解析、パラメータ不確実性解析の実施
- 3) 決定核種・被曝経路の同定あるいは重要でない核種・被曝経路の選定
- 4) 不確実性が大きく、今後、重点的に検討すべきパラメータ・モデル領域の同定

ハ) 説明モデルの検証 (Model validation)

- 1) スクリーニング段階で選定した、アセスメントの目的の上で重要な領域について、検証用モデルを構成し、パラメータ値・初期および境界条件の初期値を設定 (a priori parameter and state estimation ^[28])。
- 2) モデルの検証用データ（実測値）の収集（検証用モデル構成に使用したのとは別のデータであること）。
- 3) モデルの予測結果と実データの一貫性について、統計的仮説検定を実施し、モデル出力の信頼限界（モデルの予測の不確実性）を算出する。
- 4) モデルの予測結果と実データの一貫性の良いモデル・パラメータ・初期および境界条件を、最小2乗法 ^{[12] [14]}、荷重平均最小2乗法^{[102] [49]}、最尤推定法 ^[11]、ベイズ法^[20]等により導出する (a posteriori parameter and state estimation ^[28])。

ニ) パラメータおよびシナリオの不確実性解析

- 1) 予測の不確実性に寄与するパラメータおよびシナリオを選定
- 2) パラメータおよびシナリオの確率分布を算定する

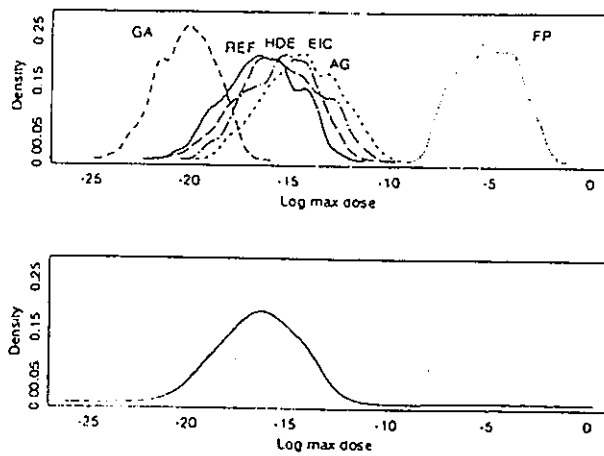


Figure 3: シナリオの違いにより生じる放射性廃棄物処分場由来のリスク。上： シナリオ別のリスク、 下：上図の結果を複合した時のリスク (Draper et al., 1999)

3) パラメータおよびシナリオの不確実性の影響を、解析的手法 (予測値の変動を確率密度関数あるいはそのモーメントとして解析的に表現する)^{[67][101]}もしくは数値的手法 (不確実なパラメータ等を一様乱数もしくは任意分布の乱数として発生し^{[13][76][19]}、モンテカルロシミュレーションにより、予測値の変動を評価する)により解析する (誤差伝播解析: error propagation analysis)。

4) 不確実性解析の結果を評価する。

ホ) 説明モデルの立証 (Model verification)

1) 相異なる構造のモデル間での予測結果を比較 ^{[112] [63]}

2) 解析解と数値解の比較、異なる数値解析手法を用いたモデル間での予測結果の比較による数値コードの誤差判定 ^[69]

へ) モデルを、大きな状況変化もありうる「将来」への予測に適用し、意思決定を行う。

上記に示した、モデルの予測性能の評価手順において、異なる種類の不確実性が様々な段階のモデルの出力に影響をおよぼしていることがわかる。スクリーニングモデル段階、検証段階、予測段階の全てにおいて「不確実性」が存在する。

2.9 実データによるモデルの検証段階における不確実性の評価方法

ハ) -3)における「不確実性」は、「モデルの予測値」に対して、「真値」(実測値)があると仮定し、「真値(実測値)と予測値のずれ」を「不確実性」と称している。この「不確実性」の発生機構は、2-2節に述べたごとく様々であるが、この不確実性の評価は、モデルの検証と表裏一体の関係にある。この段階の不確実性の評価と低減化は、より良い予測モデルの構築に向けて重要であるので、特にここで言及することにする。

なお、本論説でも指摘してきたところではあるが、モデルの出力を実データと比較対照して最適化しても、モデルの構造や数式に伴う不確実性の程度や有り無しは必ずしも明らかにはできない。ただ、モデルの出力と実データの差を、モデルのパラメータ不確実性解析によるモデル出力の変動と比較対照することで、モデル構造の妥当性を検討できる、という報告は存在する^[84]。

実測値に対しモデルの予測値を比較し、モデルの性能を定量的に評価した報告は多数ある。例えば、農産物の生産高、湖におけるプランクトン発生等の生態系における時間的に非定常な問題については、例えば以下のような予測値と実測値の対数値の最小2乗平均値^{[89][115][116][40]}：

$$\sqrt{\sum_{i=1}^{i=n} \frac{(\ln M_i - \ln O_i)^2}{n}} \quad (3)$$

あるいは予測値および実測値の対数値の相関係数^[39]等がモデルの予測性能の指標値としてよく用いられる(Reckhow and Chapraによる解説^[96]参照)。ここで、 M_i および O_i は、それぞれ実測値および予測値、 n は、データの個数である。実データには、観測に伴う各種の誤差が含まれるが、その影響を修正するための方法なども考案されている^[89]。なお、ここで実測値および予測値の対数をとるのは、これらの値が、同じサイトであっても、時間により数オーダーにわたって大きく変動する影響を抑制するためである。

一方、地質媒体中物質輸送のように、(時間的に)非定常であって三次元空間分布を有する問題の場合、(3)式のような式によりモデルの「予測能力」を評価するのではなく、物質の空間的分布のモーメント値、あるいは任意の点における物質の移行時間を、予測値・実測値双方について算出し、相互比較するアプローチが多く試みられるようになってきている^{注-4}。例えば、ゼロ次、一次および二次の物質の空間分布のモー

メント M_0 、 M_1 、 M_2 は、以下の式：^[25]

$$M_0(t) = \int_{\Omega} \theta C(\mathbf{x}, t) d\mathbf{x} \quad (4)$$

$$M_1(t) = \int_{\Omega} \theta \mathbf{x} C(\mathbf{x}, t) d\mathbf{x} \quad (5)$$

$$M_2(t) = \int_{\Omega} \theta \mathbf{x}^2 C(\mathbf{x}, t) d\mathbf{x} \quad (6)$$

で与えられ、それぞれ、三次元空間におけるトレーサの全量、トレーサのプルームの平均位置、トレーサのプルームの空間的分散を表す。なお、ここに、 Ω はトレーサの分布領域、 \mathbf{x} はトレーサ注入位置を原点とするカーテシアン座標、 θ は地質媒体の間隙率、 $C(\mathbf{x}, t)$ は位置 \mathbf{x} 、時刻 t におけるトレーサ濃度である。式(1)の移流分散モデルを数学的もしくは数値的に解いて得られるモデルの予測値から算定した空間モーメント $M_0(t)$ 、 $M_1(t)$ 、 $M_2(t)$ と実測値から推定した $M_0(t)$ 、 $M_1(t)$ 、 $M_2(t)$ を比較することで、トレーサ試験における地下水流れ場の流速変動（すなわち分散）を逆算することができる。 n 次のトレーサの流達時間モーメント $\nu_n(\tau)$

$$\nu_n(\tau) = \int_0^{\infty} t^n C(\tau, t) dt \quad (7)$$

を定義し、式(2)のLagrange型の移流分散モデルによる予測と実測を比較するアプローチも存在する^[100]。ここに、 τ は、トレーサ注入点で注入された物質粒子が、流線上にある距離 L の地点に到達する時間である。

注-4 **実証研究の背景** 地質媒体中物質輸送モデルの実証研究の背景としては、Borden (カナダ・オンタリオ)^[87]、Cape Cod (米国・マサチューセッツ)^[83]、Columbus Air Force Base (米国・オハイオ)^[33]等において、トレーサを地層中に注入した大規模（数百メートル以上）・長期間（例えば500日以上^[50]）の実験が行われ、三次元的なトレーサの空間分布の実測データが得られて、不均質な地質媒体中の物質輸送研究の発展に大きく貢献していることがあげられる。これらの研究により、地質媒体における透水係数の不均質性の解明^{[52] [58] [94]}、フィールドスケールでの三次元物質輸送モデルの予測能力の検証^[50]が、初めて制御された条件下で得られた実データに即して行われたことになる。

ただし、注意すべきことは、これらのフィールドでのトレーサ試験が、地質媒体との反応性の低い（移行速度の大きい）トレーサを対象としている、という点である。この分野での長年にわたる研究にも係わらず、制御された条件下で、地質媒体との反応性の高い

物質の三次元的な移行挙動の実測データを数百メートル以上のフィールドスケールでとらえ、モデルを検証した研究はほとんどない。実際に、そのような試験を行うには、数十年以上の年月と莫大な人手が必要になろう。従って、フィールドスケールの地質媒体中での反応性（高収着性）物質の輸送に関する移流分散型モデルの性能は、実は証明されたことがないと言って良い。

2.10 モデルにおける「保守的」仮定の落とし穴

複雑なモデルの構成にあたっては、しばしば、そこにモデラー本人にしかわからない（あるいはモデラー本人にも意識されない）モデル構成上の前提条件がしのびこむ。その「隠れた」前提条件のために、安全側の予測を行ったつもりが、却って危険側の予測になる例がある^[118]。また、一般に、保守的仮定（地質媒体への収着係数が低い核種ほど、地層処分システムにおいて危険である）とされるものが、ケースによりそうならない場合がある^[55]。

Waters ら^[118]は、地質媒体中放射能移行評価において、計算を簡単化し、かつ保守的な評価を行うために、崩壊系列内の親核種が娘核種中と同一速度で移動する、という前提条件をおいた例を報告している。この前提条件をおいたことにより、親核種と娘核種が、生態圏に同時に到達し、ために被ばく線量は両核種の和となり、両核種が異なる速度で移行するとした場合に比べ過大評価（保守的評価）になるはずであった。しかし、よく検討すると、核種によって、以下のような場合に、被ばく線量の過小評価が生じることがわかった。

- 1) 親核種の半減期 > 娘核種の半減期、かつ親核種の K_d が小さいため、娘核種（例： ^{235}U ）が放射平衡に到達する前に、両核種が生態圏に到達（例。 ^{230}Th , ^{233}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{244}Pu , ^{245}Cm , ^{247}Cm ）：娘核種のビルドアップにより、計算上用いた「生態圏到達時刻」より遅い時間に、娘核種による被ばく線量が最大値に到達する。
- 2) 親核種の半減期 < 娘核種の半減期、かつ親核種の収着係数 >> 親核種の収着係数（例。 ^{238}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{243}Cm , ^{244}Cm , ^{249}Cf , ^{250}Cf ）、前提条件に従えば、親核種の高い遅延係数のために、娘核種も地層内にとどまり被ばく線量が低くな

るが、より現実的には、移行速度が大きく放射線防護上重要な娘核種のため、より高い被ばく線量となる。

Fujikawaら^[55]は、地質媒体への収着係数の高い核種ほど、処分システムが安全であるとは限らない例を報告している。これは、放射性廃棄物処分場から放出された放射性核種が、二重空隙率を有する地質媒体（岩石割れ目系等）内に滞留しており、処分システムの安全性がサイトでの井戸の掘削により支配される侵入シナリオを想定した例である。一般に流動水—不動水領域（二重空隙率）を有する多孔質媒体においては、地質媒体への収着係数が高いほど、核種のマトリクス間隙（不動水領域）への拡散速度が遅延を受けるため、流動水領域の核種濃度の減少は遅くなる^[53]。上記の想定シナリオの場合、「侵入」の発生する時期が早いと、収着係数が高い核種では、マトリクス拡散速度に律速されて、流動水領域での核種濃度が十分に低下しきらない。この場合、収着係数は低いものの、マトリクス拡散速度も速いために、速やかに収着平衡に到達した核種のほうが、流動水領域における核種濃度が低く、却って放射線安全上の影響が小さくなる、というものである。

これらは、いずれも、モデラーがモデル化の対象となる現象について、突っ込んで検討しなければ、見逃されてしまう事象である。「説明モデル」は現象を理解する助けるモデルである、と2. 1節でも述べた。本論説では、地層処分の環境安全評価において、Beck^[28]や、IAEA^[72]の観点に従い、実データと対照するための「説明モデル」開発を主張している（2. 3節）が、説明モデルを構築する意義は、「モデラーの頭脳を刺激する」こと、と言っても良いかもしれない。

3 「第2次とりまとめ」の到達点と今後への提案

3.1 地層処分の環境安全評価におけるモデルの適用手順

以上述べてきたところにより、筆者は、Beck^[28]およびIAEA^[72]の報告も参考にして、放射性廃棄物深地層処分の環境安全評価におけるモデルの適用手順は、おおよそ以下のようにまとめるのが適切と考える。

環境安全評価におけるモデルの適用手順

- 1) 「スクリーニング用モデル」(シナリオを含む)を構築し、その結果解析を通じて、重点的に研究を必要とする領域をしばりこむ、
- 2) 重点的な研究を必要とする領域について、以下の手続きをふむことによって、現象の理解をすすめる、その結果を「予測モデル」構築に反映する：
 - a) 「説明モデル」開発、
 - b) 検証用の実データの取得とそれを用いたモデルの「説明(予測)」性能評価、
 - c) モデルの最適パラメータ値の収集、
 - d) モデルの構造の検討とモデルの立証
- 3) 「予測モデル」開発と不確実性解析、「予測モデル」による予測値とその信頼限界算出

実際の研究開発では上記の1) - 3)を繰り返すことになる。上記1)は、地層処分に要する研究開発を無駄なく実施するために、特に重要な過程である。上記2)により、予測モデル構築に不可欠な実現象の把握とモデル化を行なうとともに、検証データに基づいて様々なサイトにおけるsite-specificなパラメータ値を収集することになる。このようにして収集したパラメータ群は、3)でモデルの「不確実性解析」に用いられることになる。

上記2)の実施において、特に困難が予想されるのは、放射能の環境におけるマクロな移行挙動に係わる検証データの整備である。放射線安全上、危機的状況が発現した例は日本では比較的少ないので、日本の風土条件を反映した検証データの取得は、事実上、困難と考えられる。非放射性物質による危機的状況(例えば過去の公害事件)等を基にして、モデルの検証を行なう他にないと予想される。

上記2)で収集したパラメータ群は、予測モデルの不確実性解析に使用する。「説明モデル」のパラメータが同定可能^[28]であれば、パラメータの点推定もしくは区間推定により^[11]、特定のサイトにおける特定時期下において、実データをフィッティングできる良いパラメータが得られる。このようなパラメータ推定を複数組のデータにより繰り返し、得られたパラメータ群を3)で予測モデルの不確実性解析(特にパラメータ誤差伝播解析)に使用することになる。

3.2 「第2次とりまとめ」におけるファーフールド放射能移行評価の到達点

第2次取りまとめは、現在までに、ファーフールドにおける放射能移行評価に関し、

1. スクリーニング用モデルの開発、
2. 重要核種選定 (Cs-135, Se-79, Th-229, Np-237)、
3. 重要でないFEP (Features, Events and Processes) の screening out、
4. パラメータおよびシナリオについての簡易的な感度解析、

を実施した、と総括できる。3.1節に示した **環境安全評価におけるモデルの適用手順** と言えば、1)の途中、2.8節に示した **不確実性解析の手順** と言えば、ロ) 問題の範囲を限定するの中途に到達している、と言えよう。また、各パラメータについては、実験値(文献値)を収集して用いているが、各パラメータ値に付随する不確実性の解析はまだこれからの段階である。そのため、予測の不確実性に対する寄与が大きいために集中的な研究を行うべき分野の決定には、まだ至っていない。処分サイトが定まらない関係で、決定集団・決定核種・決定経路が選定できるのも、まだ先になると考えられる。

3.3 今後の研究への提案

3.3.1 研究資源の最適化のためにファーフールド・生態圏における不確実性解析

「第2次取りまとめ」において行われたファーフールドにおける核種移行の感度解析の結果⁷⁾から、シナリオ等に依存して変動する固液間収着分配係数値(K_d 値と略称)もしくはおよび地下水流速を支配する透水量係数値の変動が、最終的なリスク評価に大きな影響をもつことがわかっている。また、「第2次とりまとめ」の生態圏の感度解析においても、最もリスク評価に影響を及ぼしたのは、 K_d 値であったと報告されている。

放射性廃棄物の地層処分において問題になるのは、放射能の「移行」と「減衰」であり、ファーフールドにおいては、放射能移行過程は、移流、分(拡)散、収着のわずか3つの現象に支配されている(先ほど以来の議論で言えば、流れ方向の分散は、移流速度の変動に含まれるので、移流、拡散、収着とまとめることもできる)。もちろ

ん、収着や移流拡散現象は、地質媒体の特性とともに、放射性核種の物理・化学的存在形態やその動的変化に左右される現象である。さらに遡れば、様々な物理・化学・生物学的過程がその根底にある。しかし、最表面に現れる現象は、あくまで移流、分（拡）散、収着にすぎない。従って、分配係数値および透水量係数値の影響が地層処分の安全評価において深甚なのは、極く自然なことである。

また、「第2次とりまとめ」でも議論されている粒子状物質（コロイド）の輸送現象について、近年、実測値とモデルの比較により行われた研究から、粒子状物質の移行挙動は、移流・分（拡）散とともに速度論的な収脱着反応の存在を示唆している^[86] ^[26]。この種の速度論的収脱着反応が加わると、溶質（コロイド）破過曲線の tailing を招き、これはまた実測データでも確認できている。ところが、上記の研究からコロイドの輸送現象に特徴的と考えられている速度論的収脱着反応は、二重空隙率媒体での物質輸送におけるマトリクス拡散の多寡と数学的にほぼ同義であることが、破過曲線の数学的な解についてモーメント法による解析を行った結果から、明らかになっている^[54]。すなわち、コロイドによる輸送現象も、岩石割れ目系等の二重空隙率媒体における K_d の小さい溶質の輸送現象と、根本的には大差がなく、結局、 K_d 値の大小の問題に帰着する可能性がある。

ところで、単純に見える放射能の収着係数 K_d の算定方法ひとつをとっても、確定的な方法がないことは、すでに指摘されてきたところである^[16]。例えば、バッチ収着実験により得られた K_d とカラム法で得られた K_d 値が異なること^[17]、放射性セシウムについての同じ岩石カラム実験の値を、Henry 型（線形）収着・非線形（Freundlich 型）収着の異なる 2 つの K_d でフィッティングできること（図 4）^[56] ^[57]等が知られている。地下水流れ場における分散・拡散現象についても、多数の研究が長年にわたり続けられてきたことは、本論説でも既に述べた通りである。

K_d をめぐる議論において、今後、必要なのは、逆に、地層処分の安全評価の目的に照らして、どの程度 K_d 値の算定を精密化すれば十分なのかを明らかにすることであろう。そのためには、シナリオ毎に、関係するパラメータ値を乱数発生させ、モンテカルロ法を用いた地層処分システムモデルの全体の不確実性解析を行い、単位量の K_d 値の変化に対する、予測被ばく線量の（おそらくは非線形な）応答を様々なケースにつ

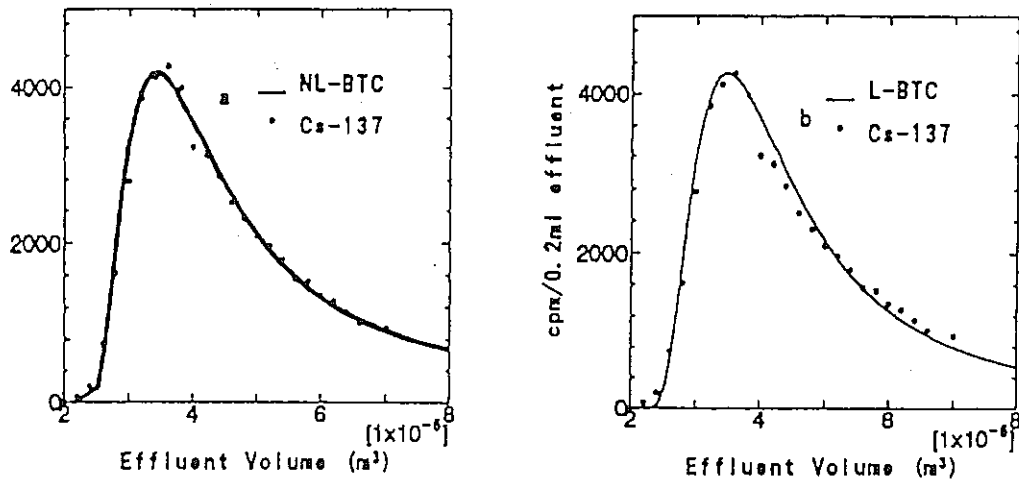


Figure 4: 図4. 岩石割れ目系からの放射性セシウム破過曲線を、左図:マトリクス収着係数について非線形 Freundlich 型収着でフィッティングした例 (Fujikawa and Fukui,1995)、右図:マトリクス収着係数について線形 Henry 型収着でフィッティングした例 (Fujikawa et al., 1993)

いて明らかにすることが必要である。また「第2次とりまとめ」において重要核種と目されている Cs-135 については、従来から地質媒体への非線形 Freundlich 型収着に従うことが知られているので^[11]、非線形計算に伴う計算機資源は大きくはあるが、線形 K_d モデルで代替してよいかどうか、についても基礎的な検討は必要と考えられる。透水量係数の議論についても、同様のことが必要である、と考えられる。更に、空間的に不均質な K_d や透水量係数の分布が最終的な被ばく線量に与える影響についても、見積もる必要がある。このような見積もりが、処分の安全評価モデルの側から提示されることにより、実験的研究で解明されるべき事象も明確化できる。これは、本論説で以前にも指摘した「地層処分に必要な技術開発の人的・経済的資源の有効な節約」につながる、という点で、モデルに課された重要な役割である。

このようにファーストフィールド・生態圏の移行モデルの不確実性解析に期待される役割は、パラメータ変動による予測の不確実性を許容可能な程度に抑制するために、個々の現象を実験的にどの程度正確に把握するべきか、という指標を与えることである。なお、「第二次とりまとめ」において検討された生態圏モデルは、ごく簡易的なものであ

ることから、生態圏移行においては、 K_d 以外にも、重要なパラメータが存在する可能性がある。今後の検討が必要と考えられる。

3.3.2 環境放射能移行モデルの検証—説得性の向上策

筆者の案は、3.1節に示したごとく、「スクリーニング・モデル」の開発・適用が終了し、重要核種・被ばく経路・追加検討事項が明確化した時点で、「説明モデル」を開発して、そのモデルを実データで検証するとともに説明モデルの予測（シミュレーション）性能を統計的に明らかにすること、である。この実データによる検証には、可能な限り、日本で、野外条件下で観測されたデータを用いることが望ましいと考える。その根拠は、次の2つである。

1. 実験室でとられた種々のパラメータをモデルに代入すれば、野外条件下での核種移行予測に適用できる、という保証は、ほとんどない。野外条件下での核種移行をシミュレートできるためのモデルは、構造的に、実験室スケールのモデルと違えなければならぬ可能性もある。この点を検討するには、野外条件下でのとられた検証用の実測データとの比較が不可欠である。
2. わが国の野外条件下でとられたデータと一致する結果を出すモデルの開発・適用により、国民の目にも、モデルによる安全評価の予測に対して信頼感が向上する。

特に、わが国特有の風土条件の影響をうけやすいと考えられる生態圏移行モデルは、「第二次とりまとめ」では、いまだ「絵に描いた餅」の段階にとどまっている。上記の議論でわが国の野外条件下と特に強調したのは、その点を考慮したものである。なお、生態圏における物質移行については、地質媒体中のそれと比して、実データの採取がより容易であり、放射能にこだわらなければ、例えば過去の日本での重金属汚染による公害病事件（水俣病、イタイイタイ病）のデータを使ってモデルの検証を行うことも可能である。一方、地質媒体中の核種移行については、野外条件下でのデータ採取は生態圏に比べて困難があるが、地質媒体との反応性の低いトレーサを用いた野外試験は、少なくとも必要であることを指摘しておく。

最後に、2節の議論でも繰り返し触れたことであるが、モデルを作るのはモデラーすなわち人間であること、数理モデルも、突き詰めれば人間の思考を表すものである

ことを、あらためて強調したい。シナリオの解釈、パラメータの設定、モデル構造およびモデル化の仮定、モデルの運用、全ては人間のなせるわざであり、そこには間違い・誤解・解釈の差・経験の差の全てが入ってくる。今後の地層処分の安全評価において、モデルの果たす役割は大きい。モデル開発と運用において、複数機関・複数のモデラーが、ある段階までは独自のモデル開発を行い、結果を相互に比較する、という組織的取り組みを、日本国内でさらに展開していく必要がある。

References

- [1] 伊藤剛 (編)、数値解析の基礎と応用、アテネ出版、1971.
- [2] 井上頼輝、古市徹、黒羽 (藤川) 陽子、流下距離に依存する移流分散方程式の数値シミュレーション、京都大学環境衛生工学研究会シンポジウム講演論文集、5, 236-243, 1983.
- [3] 岩佐義朗、水理学、朝倉書店、東京、268 頁、1977.
- [4] 核燃料サイクル開発機構、地層処分研究開発第 2 次取りまとめ 総論レポート JNC TN1400 99-020 1999a.
- [5] 核燃料サイクル開発機構、地層処分研究開発第 2 次取りまとめ 分冊 1 地質環境条件の調査研究 JNC TN1400 99-021 1999b.
- [6] 核燃料サイクル開発機構、地層処分研究開発第 2 次取りまとめ 分冊 2 地層処分の工学技術 JNC TN1400 99-022 1999c.
- [7] 核燃料サイクル開発機構、地層処分研究開発第 2 次取りまとめ 分冊 3 地層処分システムの安全評価、JNC TN1400 99-023 1999d.
- [8] 原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会、「放射性廃棄物処理処分方策について (中間報告)」 1984.
- [9] 原子力委員会「原子力の研究、開発及び利用に関する長期計画」1994.
- [10] 国際放射線防護委員会、放射性固体廃棄物処分に関する放射線防護の諸原則、ICRP Publication 46、日本アイソトープ協会、東京、49 頁、1985.
- [11] 瀧保夫、茅陽一、宮川洋、関根泰次、確率統計現象、岩波書店、東京、273 頁、1978.
- [12] 竹内啓、統計的予測論、培風館、東京、168 頁、1975.
- [13] 津田孝夫、モンテカルロ法とシミュレーション、培風館、245 頁、1981.

- [14] 中川徹、小柳義夫、最小2乗法による実験データ解析 プログラムSALS、東京大学出版会、東京、206頁、1989.
- [15] 平岡正勝、田中幹也、移動現象論、朝倉書店、東京、234頁、1971.
- [16] 福井正美、放射性廃棄物処分の環境影響評価における分配係数の変動要因、原子力学会誌、32, 142-148, 1990.
- [17] 福井正美、天然バリアのKd. 京大炉専門研究会報告、印刷中、2000.
- [18] 藤川陽子、岩石-地下水系における放射性コバルトおよびセシウムの移行とモデル化に関する研究、京都大学工学部博士学位論文、1992.
- [19] 古市徹、環境移流拡散現象の解析手法と数値シミュレーションに関する研究 - 有限要素法を軸として -、京都大学工学部博士学位論文、1984.
- [20] 宮沢光一、情報・決定理論序説、岩波書店、東京、637頁、1971.
- [21] 米田稔、河川周辺不圧地下水の挙動と水質特性に関する研究、京都大学工学部博士学位論文、1995.
- [22] Aggarwal, P. K., Uncertainties in Crop, Soil and Weather Inputs Used in Growth Models: Implications for Simulated Outputs and Their Applications. Agric. Syst. 48, 361-384, 1995.
- [23] Andersson, J. and Shapiro, A. M., Stochastic Analysis of One-Dimensional Steady State Unsaturated Flow: A Comparison of Monte Carlo and Perturbation Methods. Water Resour. Res., 19, 121-133, 1983.
- [24] Apostollakis, G., The Concept of Probability in Safety Assessments of Technological Systems. Science 250, 1359-1364, 1990.
- [25] Aris, R., On the Dispersion of a Solute in a Fluid Flowing through a Tube. Proc. Royal Soc. London A, 235, 67-78, 1956.

- [26] Bales, R. C., Li, S., Yeh T.-C. Jim, Lenczewski, M. E. and Gerba, C. P., Bacteriophage and Microsphere Transport in Saturated Porous Media: Forced-Gradient Experiment at Borden, Ontario. *Water Resour. Res.*, 33, 639-648, 1997.
- [27] Beck, M., Uncertainty, System Identification and the Prediction of Water Quality. In: Beck, M. B. and van Straten, G. (Eds.), *Uncertainty and Forecasting of Water Quality*. pp. 3-68, Springer Verlag, New York, 1983.
- [28] Beck, M., Water Quality Modeling: A Review of the Analysis of Uncertainty. *Water Resour. Res.*, 23, 1393-1442, 1987.
- [29] Beck, M. B. and Halfon, E., Uncertainty, Identifiability and the Propagation of Prediction Errors: A Case Study of Lake Ontario. *J. of Forecasting*, 10, 135-161, 1991.
- [30] Beck, M. B., Barnwell, T. O., Mulkey, L. A. and Ravetz, J. R., Model Validation for Predictive Exposure Assessment. *International Environmental Conference Proceedings*, pp. 973-980, 1995.
- [31] Bernardo, J., Smith, A., *Bayesian Theory*. Wiley, Chichester, 1994.
- [32] Beven, K., Prophecy, Reality and Uncertainty in Distributed Hydrological Modeling. *Advances in Water Resources*, 16, 41-51, 1993.
- [33] Boggs, J. M. and Adams, E. E., Field Study of Dispersion in a Heterogeneous Aquifer 1. Overview and Site Description. *Water Resour. Res.*, 28, 3281-3291, 1992.
- [34] Brace, W. F., Permeability of Crystalline and Argillaceous Rocks. *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, 17, 241-251, 1980.
- [35] Brace, W. F., Permeability of Crystalline Rocks: New In-Situ Measurements. *J. Geophys. Res.*, 89, 4327-4330, 1984.

- [36] Bredehoeft, J. D., Counts, H. B., Robson, S. G. and Robertson, J. B., Solute Transport in Groundwater Systems. In: Rodda, J. C. (Ed.), Facets of Hydrology, Wiley, New York, 1976.
- [37] Cherry, J. A., Gillham, R. W. and Pickens, J. F., Contaminant Hydrogeology, I. Physical Processes. Geosci. Can., 2, 76 pp.
- [38] Clauser, C., Permeability of Crystalline Rocks, EOS Trans. AGU, 73(21), 233, 237-238, 1992.
- [39] Cohen, K. J. and Cyert, R. M., Computer Models in Dynamic Economics. Q. J. Econ., 75, 112-127, 1961
- [40] Colson, J., Wallach, D., Denis, J. B., Jones, J. W. and Bouniols, A., The Mean Squared Error of Yield Prediction by SOYGRO. Agron. J., 87, 397-402, 1995.
- [41] Cushman, J. H., On Measurement, Scale and Scaling. Water Resour. Res., 22, 129-134, 1986.
- [42] Dagan, G., Stochastic Modeling of Groundwater Flow by Unconditional and Conditional Probabilities 1. Conditional Simulation and the Direct Problem. Water Resour. Res., 18, 813-833, 1982.
- [43] Dagan, G., Stochastic Modeling of Groundwater Flow by Unconditional and Conditional Probabilities 2. The Inverse Problem. Water Resour. Res., 21, 65-73, 1985.
- [44] Davis, P. A., Avadhanula, M. R., Cancio, D., Carboneras, P., Coughtrey, P., Johansson, G., Little, R. H., Smith, G. M. and Watkins, B. M., BIOMOVs II: An international test of the performance of environmental transfer models. J. Environ. Radioactivity, 42, 117-130, 1999.
- [45] Delhomme, J. P., Kriging in the Hydrosiences. Adv. Water Resour., 1, 251-266, 1978.

- [46] Draper, D., Model Uncertainty in "Stochastic" and "Deterministic" Systems. In: Proc. 12th Int. Workshop on Statistical Modeling, Vienna, Schriftenreihe der Österreichischen Statistischen Gesellschaft. Vol. 5, pp. 43-59, 1997.
- [47] Draper, D., Pereira, A., Prado, P., Saltelli, A., Cheal, R., Eguilior, S., Mendes, B. and Tarantola, S., Scenario and Parametric Uncertainty in GESAMAC: A Methodological Study in Nuclear Waste Disposal Risk Assessment. *Comput. Phys. Commun.*, 117, 142-155, 1999.
- [48] Elert, M., Butler, A., Chen, J., Dovlete, C., Konoplev, A., Golubenkov, A., Sheppard, M., Togawa, O. and Zeevaert, T., Effects of Model Complexity on Uncertainty Estimates. *J. Environ. Radioactivity*, 42: 255-270, 1999.
- [49] Eykhoff, P., *System Identification - Parameter and State Estimation*. John Wiley, New York, 1974.
- [50] Ezzedine, S. and Rubin, Y., Analysis of Cape Cod Tracer Data. *Water Resour. Res.*, 33, 1-11, 1997.
- [51] Fitts, C. R., Uncertainty in Deterministic Groundwater Transport Models Due to the Assumption of Macrodispersive Mixing: Evidence from the Cape Cod (Massachusetts U. S. A.) and Borden (Ontario, Canada) Tracer Tests. *J. Contaminant Hydrol.*, 23, 69-84, 1996.
- [52] Fryberg, D. L., A Natural Gradient Experiment on Solute Transport in a Sand Aquifer 2. Spatial Moments and the Advection and Dispersion of Nonreactive Tracer. *Water Resour. Res.*, 22, 2031-2046, 1986.
- [53] Fujikawa, Y. and Fukui, M., Analysis of radioactive cesium and cobalt adsorption to rocks using the two-site kinetic model equations, *Journal of Contaminant Hydrology*, 8, 43-69, 1991.
- [54] Fujikawa, Y. and Fukui, M., Application of a Simple Model for Assessment of Underground Radionuclide Migration. Part I. Validity of first-order kinetic model approximation. *Journal of Hydrology*, 145, 125-145, 1993.

- [55] Fujikawa, Y. and Fukui, M., Application of a Simple Model for Assessment of Underground Radionuclide Migration. Part II. Assessment in Rock-Fracture Systems. *Journal of Hydrology*, 145, 147-164, 1993.
- [56] Fujikawa, Y., Fukui, M., Vandergraaf, T., T., Analysis of the Migration of Instantaneously Injected Cesium in Artificial Fractures of Lac du Bonnet granite, Manitoba, Canada. *Journal of Contam. Hydrol.*, 14, 207-232, 1993.
- [57] Fujikawa, Y. and Fuki, M., Numerical Simulation of Solute Transport Instantaneously Injected in a Single Rock Fracture System: Inclusion of a Nonlinear Sorption Term. *Material Research Society Symposium Proceedings*, 353, 371-378, 1995.
- [58] Garabedian, S. P., LeBlanc, D. R., Gelhar, L. W. and Celia, M. A., Large-Scale Natural Gradient Tracer Test in Sand and Gravel, Cape Cod, Massachusetts 2. Analysis of Spatial Moments for a Nonreactive Tracer. *Water Resour. Res.*, 27, 911-924, 1991.
- [59] Gavrilenko, P. and Gueguen, Y., Flow in Fractured Media: A Modified Renormalization Method. *Water Resour. Res.*, 34, 177-191, 1998.
- [60] Gelhar, L. W., Welty, C. and Rehfeldt, K. R., A Critical Review of Data on Field-Scale Dispersion in Aquifers. *Water Resour. Res.*, 28, 1955-1974, 1992.
- [61] Gelman, A., Carlin, J., Stern, H. and Rubin, D., *Bayesian Data Analysis*. Chapman and Hall, London, 1995.
- [62] Guan, B. T., Gertner, G. Z. and Parysow, P., A Framework for Uncertainty Assessment of Mechanistic Forest Growth Models: A Neural Network Example. *Ecol. Modelling*, 98: 47-58, 1997.
- [63] Håkanson, L., Brittain, J., Monte, L., Heling, R., Bergström, U., Suolonen, V. and Sjoebloom, K. L., Modelling of Radiocesium in Lakes. Results from VAMP

Project. In: Environmental Impact of Radioactive Releases. IAEA/SM/339, pp. 337-353, 1995.

- [64] Halfon, E., On the Parameter Structure of Large-Scale Ecological Model. In: G. P. Patil and M. L. Rosenzweig (Editors), Contemporary Quantitative Ecology and Related Econometrics. International Cooperative Publishing House, Burtonsville, MD, pp. 279-293, 1979.
- [65] Helton, J. C. and Burmaster, D. E., Guest Editorial: Treatment of Aleatory and Epistemic Uncertainty in Performance Assessments for Complex Systems. Reliability Eng. & System Safety, 54, 91-94, 1996.
- [66] Helton, J. C., Uncertainty and Sensitivity Analysis in Performance Assessment for the Waste Isolation Pilot Plant. Comp. Phys. Commun., 117, 156-180, 1999.
- [67] Hoffman, F. O., Gardener, R. H. Evaluation of Uncertainties in Environmental Radiological Assessment Models. In: Till, J. E. and Meyer, H. R. (Eds.), Radiological Assessment: A Textbook on Environmental Dose Assessment, NUREG/CR-3332, ORNL-5968, United States Nuclear Regulatory Commission, Washington DC, pp. 11-1 - 11-55, 1983.
- [68] Hoffman, F. O. and Thiessen, K. M., Use of Chernobyl Data to Test Predictions and Uncertainty Estimates from Exposure Assessment Models. In: Environmental Impact of Radioactive Releases. IAEA-SM-339, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1995.
- [69] Swedish Nuclear Power Inspectorate, HYDROCOIN Progress Reports No. 1-2, Stockholm, 1985.
- [70] IAEA, Safety Assessment for the Underground Disposal of Radioactive Wastes. Safety Series No. 56, International Atomic Energy Agency, Vienna, 46 pp., 1981.
- [71] IAEA, Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Releases: Exposure of Critical Groups. Safety Series No. 57, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1982.

- [72] IAEA, Evaluating the Reliability of Predictions Made Using Environmental Transfer Models. Safety Series No. 100, International Atomic Energy Agency, Vienna, 106 pp., 1989.
- [73] IAEA, Validation of Environmental Model Predictions. International Atomic Energy Agency, STI/PUB/932, Vienna, Austria, 1993.
- [74] IAEA, Validation of Models Using Chernobyl Fallout Data from Central Bohemia Region of the Czech Republic - Scenario CB, First Report of the VAMP Multiple Pathways Assessment Working Group. IAEA-TECDOC-795, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1996.
- [75] IAEA, Validation of Models Using Chernobyl Fallout Data from Southern Finland - Scenario S, Second Report of the VAMP Multiple Pathways Assessment Working Group. IAEA-TECDOC-904, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1996.
- [76] Jaffe, P. R. and Ferrara, R. A., Modeling Sediment and Water Column Investigation for Hydrophobic Pollutants: Parameter Discrimination and Model Response to Input Uncertainty. *Water Res.*, 18, 1169-1174, 1984.
- [77] Jakeman, A. J. and Hornberger, G. M., How Much Complexity is Warranted in a Rainfall-Runoff Model ?. *Water Resour. Res.*, 29, 2637-2649, 1993.
- [78] Journel, A. G. and Huijbregts, C. T., *Miming Geostatistics*, Academic, Orlando, 1978.
- [79] Kalos, M. H. and Whitlock, P. A., *Monte Carlo Methods*. John Wiley, New York, 1986.
- [80] Kaluzny, S. and Swartzman, G., Simulation Experiments Comparing Alternative Process Formulation Using a Factorial Design. *Ecol. Modelling*, 28, 181-200, 1985.
- [81] Kirchner, G., Peterson, S. R., Bergstrom, U., Bushell, S., Davis, P., Filistovic, V., Hinton, T. G., Krajewski, P., Riesen, T. and de Haag, P. J., Effect of User In-

- terpretation on Uncertainty Estimates: Examples from the Air-to-Milk Transfer of Radiocesium. *J. Environ. Radioactivity*, 42, 177-190, 1999.
- [82] Konoplev, A. V., Bulgakov, A. A., Hoffman, F. O., Kanyar, B., Lyashenko, G., Naie, S. K., Propov, A., Raskov, W., Thiesses, K. M., Watkin, B. and Zheleznyak, M.. Validation of Models of Radionuclide Wash-off from Contaminated Watersheds using Chernobyl Data.. *J. Environ. Radioactivity*, 42, 131-141, 1999.
- [83] LeBlanc, D. R., garabedian, S. P., Hess, K. M., Gelhar, L. W., Quadri, R. D., Stollenwerk, K. G. and Wood, W. W., Large-Scale Natural Gradient Tracer Test in Sand and Gravel, Cape Cod, Massachusetts, 1 Experimental Design and Observed Tracer Movement. *Water Resour. Res.*, 27, 895-910, 1991.
- [84] Lei, J. H. and Schilling, W., Preliminary Uncertainty Analysis- A Prerequisite for Assessing the Predictive Uncertainty of Hydrologic Models. *Wat. Sci. Tech.*, 33, 79-90, 1996.
- [85] Loehle, C., Errors of Construction, Evaluation, and Inference: A Classification of Sources of Error in Ecological Models. *Ecol. Modelling*, 36, 297-314, 1987.
- [86] Lührmann, K., Noseck, U. and Tix, C., Model of Contaminant Transport in Porous Media in the Presence of Colloids Applied to Actinide Migration in Column Experiments. *Water Resour. Res.*, 34, 421-426, 1998.
- [87] Mackay, D. M., Freyberg, D. L., Roberts, P. V. and Cherry, J. A., A Natural Gradient Experiment on Solute Transport in a Sand Aquifer, 1 Approach and Overview of Plume Movement. *Water Resour. Res.*, 22, 2017-2029, 1986.
- [88] McLaughlin, D. B., A Distributed Parameter State Space Approach for Evaluating the Accuracy of Groundwater Predictions. Ph. D. Dissertation, Princeton Univ., 1985.
- [89] Monte, L., Håkanson, L., Bergström, U., Brittain, J. and Heling, R., Uncertainty Analysis and Validation of Environmental Models: The Empirically Based Uncertainty Analysis. *Ecol. Modelling*, 91, 139-152, 1996.

- [90] National Council on Radiation Protection and Measurements, Screening Techniques for Determining Compliance with Environmental Standards. NCRP Commentary No. 3, Washington DC, 1986.
- [91] Noble, I. R. and Slatyer, R. O., The Use of Vital Attributes to Predict Successional Changes in Plant Communities Subject to Recurrent Disturbances. *Vegetatio*, 43, 5-21, 1980.
- [92] O'neill, R. V. and Rust, B., Aggregation Errors in Ecological Models. *Ecol. Modell.*, 7, 91-105, 1979.
- [93] Omlin, M. and Reichert, P., A Comparison of Techniques for the Evaluation of Model Prediction Uncertainty. *Ecol. Modelling*, 115, 45-59, 1999.
- [94] Rajaram, H. and Gelhar, L. W., Three-Dimensional Spatial Moments Analysis of the Borden Tracer Test. *Water Resour. Res.*, 27, 1239-1251, 1991.
- [95] Ricotti, M. E. and Zio, E., Neural Network Approach to Sensitivity and Uncertainty Analysis. *Reliab. Eng. Sys. Safety*, 64, 59-71, 1999.
- [96] Reckhow, K. R. and Chapra, S. C., Confirmation of Water Quality Models. *Ecol. Model.*, 20, 113-133, 1983
- [97] Reichert, P. and Omlin, M., On the Usefulness of Overparametrized Ecological Models. *Ecol. Modelling*, 95, 289-299, 1997.
- [98] Rossing, W. A. H., Daamen, R. A. and Jansen, M. J. W., Uncertainty Analysis Applied to Supervised Control of Aphids and Brown Rust in Winter Wheat. 1. Quantification of Uncertainty in Cost-Benefit Calculations. *Agric. Syst.* 44, 419-448, 1994a.
- [99] Rossing, W. A. H., Daamen, R. A. and Jansen, M. J. W., Uncertainty Analysis Applied to Supervised Control of Aphids and Brown Rust in Winter Wheat. 1. Relative Importance of Different Components of Uncertainty. *Agric. Syst.* 44, 449-460, 1994b.

- [100] Rubin, Y. and Ezzedine, S., The Travel Times of Solutes at the Cape Cod Tracer Experiment: Data Analysis, Modeling, and Structural Parameters Inference. *Water Resour. Res.*, 33, 1537-1547, 1997.
- [101] Russo, D., Stochastic Analysis of Flow and Transport in Unsaturated Heterogeneous Porous Formation: Effects of Variability in Water Saturation. *Water Resour. Res.*, 34, 569-581, 1998.
- [102] Schweppe, F. C., *Uncertain Dynamic Systems*. Prentice-Hall, Englewood Cliffs, N. J., 1973.
- [103] Siu, N. O. and Kelly, D. L., Bayesian Parameter Estimation in Probabilistic Risk Assessment. *Probability Eng. & System Safety*, 62, 89-116, 1998.
- [104] Smith, L. and Schwartz, F. W., Mass Transport I. A Stochastic Analysis of Macroscopic Dispersion. *Water Resour. Res.*, 16, 303-313, 1980.
- [105] Smith, L. and Schwartz, F. W., Mass Transport II. Analysis of Uncertainty in Prediction. *Water Resour. Res.*, 16, 303-313, 1980.
- [106] Schwartz, F. W., Smith, L. and Crowe, A. S., A Stochastic Analysis of Macroscopic Dispersion in Fractured media. *Water Resour. Res.*, 19, 1253-1265, 1983.
- [107] Söderström, T. and Stoica, P., *System Identification*. Prentice Hall, New York, 1989.
- [108] Swedish Radiation Protection Institute, Final Report. BIOMOVS Technical Report 15. Swedish Radiation Protection Institute 171 16 Stockholm, Sweden, 1993.
- [109] Tang, D. H. and Pinder, G. F., Simulation of Groundwater Flow and Mass Transport under Uncertainty. *Adv. Water Resour.*, 1, 25-30, 1977.
- [110] Tang, D. H. et al., Stochastic Modeling of Mass Transport in Random Velocity Field. *Water Resour. Res.*, 18, 231-244, 1982.

- [111] Vandergraaf, T. T. and Arby, D. R. M., Radionuclide Sorption on Drill Core Material from the Canadian Shield. *Nuv. Technol.*, 57, 399-412, 1982.
- [112] Vandja, S., Structural Equivalence of Linear Systems and Compartment Models. *Mathematical Biosciences*, Elsevier North-Holland, Amsterdam, 1981.
- [113] Viswanathan, H. S., Robinson, B. A., Valocchi, A. J. and Triay, I. R., A Reactive Transport Model of Neptunium Migration from the Potential Repository at Yucca Mountain. *J. Hydrol.*, 209, 251-280, 1998.
- [114] Wallach, D. and Genard, M., Effect of Uncertainty in Input and Parameter Values on Model Prediction Error. *Ecol. Modelling*, 105, 337-345, 1998.
- [115] Wallach, D. and Goffinet, B., Mean Squared Error of Prediction in Models for Studying Ecological and Agronomic Systems. *Biometrics*, 43, 561-573, 1987.
- [116] Wallach, D. and Goffinet, B., Mean Squared Error of Prediction as a Criterion for Evaluating and Comparing System Models. *Ecol. Model.*, 44, 299-306, 1989.
- [117] Warren, J. E. and Skiba, F. F., Macroscopic Dispersion. *Soc. Petrol. Eng. J.*, 4, 215-230, 1964.
- [118] Waters, R. D. and Gruebel, M. M., Some Considerations for Modeling Doses from Radionuclides Transported through Groundwater. *Water Resour. Res.*, 34, 1215-1221, 1998.
- [119] Watkins, B. M., Smoth, G. M., Little, R. H., and Kessler, J., A Biosphere Modeling Methodology for Dose Assessments of the Potential Yucca Mountain Deep Geological High Level Radioactive Waste Repository. *Health Phys.*, 76: 355-367, 1999.

4. Conclusion

We have observed the distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs released from the atomic bombing of Nagasaki nearly 50 years ago in various environmental materials (soil, sediments and tree rings). The results indicate that the order of mobility in non-biological materials like soil and sediments is $^{239+240}\text{Pu} > ^{137}\text{Cs}$. The order of mobility in biological materials such as tree rings is $^{137}\text{Cs} \geq ^{239+240}\text{Pu}$. In other words, $^{239+240}\text{Pu}$ is generally immobile compared with the mobility of ^{137}Cs in both non-biological and biological materials. However, we discovered that $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ has two forms: immobile and mobile. The production of mobile $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ depends on environmental conditions including soil or sediment types, chemical conditions of water in environmental materials, climatic conditions such as temperature, humidity and precipitation, biological activity of micro-organisms in soil or sediments, length of interaction period, and initial chemical forms of $^{239+240}\text{Pu}$. Our results suggest that about 9%, 3% and 1% of total $^{239+240}\text{Pu}$ becomes mobile in sediments at the bottom of a reservoir, in unsaturated soil and in tree rings respectively (Fig. 8). Furthermore, $^{239+240}\text{Pu}$ distribution in tree rings suggests that the mobile form originates from absorption of mobile $^{239+240}\text{Pu}$ produced in soil by microorganisms and chemical weathering absorbed through roots rather than mobile $^{239+240}\text{Pu}$ itself produced in the tree rings. Finally, we conclude that a small part of $^{239+240}\text{Pu}$ (approx. 3%) will probably change into the mobile form in the underground environment.

As shown in chapter 3, it is easy to obtain the data about migration in biosphere in comparison with that in geosphere. We can verify the "model" through the heavy metal pollution cases in Japan such as Minamata disease and Itai-itai disease. On the other hand, the investigation for migration in geosphere may need the field experiment by using the tracer element that has the low reactivity with geosphere media. Some uncertainties always exist in the model. Systematic model investigation by multi-organization and -institute should be needed for making a reliable model.