

JAERI-Research

97-066



分配係数の相互比較実験  
—測定値の変動要因の検討—

1997年10月

高橋知之・武部慎一・木村英雄・松鶴秀夫  
保田浩志・内田滋夫・佐伯明義・馬原保典  
佐々木規行・矢島達哉・芦川信雄

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。  
入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）  
あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター  
(〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内) で複写による実費領布をおこなって  
おります。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research  
Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy  
Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1997

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 個原子力資料サービス

分配係数の相互比較実験  
— 測定値の変動要因の検討 —

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

高橋 知之・武部 慎一・木村 英雄

松鶴 秀夫<sup>+</sup>・保田 浩志<sup>\*1</sup>・内田 滋夫<sup>\*1</sup>

佐伯 明義<sup>\*2</sup>・馬原 保典<sup>\*2</sup>・佐々木規行<sup>\*3</sup>

矢島 達哉<sup>\*4</sup>・芦川 信雄<sup>\*5</sup>

(1997年9月2日受理)

固相と液相の間における物質の分配を示す平衡論的パラメータである分配係数は、環境中における核種の移行を評価するための様々なモデルに用いられており、原子力施設の安全評価上極めて重要なパラメータである。このため、日本原子力研究所に設けられた「環境放射能研究委員会、環境放射能拳動専門部会」の安全評価用パラメータ検討WGでは、分配係数の測定に関する標準的方法（標準的測定法）及び測定値の利用に関する標準的方法（標準的利用法）を提言することを目的に、標準化の方法について現在検討を進めている。

分配係数の標準的測定法を提言するための第1段階として、放射性核種（<sup>60</sup>Co、<sup>137</sup>Cs、<sup>85</sup>Sr及び<sup>54</sup>Mn）の分配係数の相互比較実験を4機関で行い、測定値に与える様々な変動要因の影響について検討を行った。異なった条件による実験が5回実施され、RI溶液の液性、容器の形状及び振とう方法の差異が、分配係数の測定値に大きな影響を与えることが明らかとなつた。

---

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

+ 企画室

\*1 放射線医学総合研究所

\*2 電力中央研究所

\*3 日本原燃株式会社

\*4 三菱マテリアル株式会社

\*5 九州環境管理協会

Intercomparison of Measurements of Distribution Coefficient  
- Investigation of Factors Affecting Variability of Measured Values -

Tomoyuki TAKAHASHI, Shinichi TAKEBE, Hideo KIMURA  
Hideo MATSUZURU\*, Hiroshi YASUDA\*<sup>1</sup>, Shigeo UCHIDA\*<sup>1</sup>  
Akiyoshi SAEKI\*<sup>2</sup>, Yasunori MAHARA\*<sup>2</sup>, Noriyuki SASAKI\*<sup>3</sup>  
Tatsuya YAJIMA\*<sup>4</sup> and Nobuo ASHIKAWA\*<sup>5</sup>

Department of Environmental Safety Research  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received September 2, 1997)

The distribution coefficient(*Kd*), which is defined as partitioning of solute between a solid and liquid phases, is used for various models which describe the migration behavior of nuclides in the environment. Therefore it is a very important parameter for safety assessment of nuclear facilities. Aiming at the recommendation of standard methodologies for measurement and application of *Kd*, we have discussed a procedure of standardization in "WG on Parameters for Safety Assessment" of "Technical Committee on Behavior of Environmental Radioactivity" which belongs to "Research Committee on Environmental Radioactivity" organized by Japan Atomic Energy Research Institute.

As a first step for recommendation of a standard methodology for measurement, intercomparisons on measurement of *Kd* for radionuclides (<sup>60</sup>Co, <sup>137</sup>Cs,

**Keywords:** Intercomparison, Distribution Coefficient, Radionuclide, Safety Assessment, Parameter, Standard Methodology, Variability

---

\* Office of Planning

\*1 National Institute of Radiological Science

\*2 Central Research Institute of Electric Power Industry

\*3 Japan Nuclear Fuel Limited

\*4 Mitsubishi Materials Corporation

\*5 Kyushu Environmental Evaluation Association

<sup>85</sup>Sr and <sup>54</sup>Mn) were carried out by four groups to evaluate the cause of variability in measured Kds. As a result of five different experiments under various conditions, it was found that the difference of chemical property of radionuclide solution, form of vessels and method of shaking have strong influence on the measured values of Kd.

## 目 次

1. 序 論 .....	1
2. 第1回実験 一 予備実験 一 .....	3
2.1 実験方法 .....	3
2.2 実験結果及び考察 .....	3
3. 第2回実験 一 本実験 一 .....	10
3.1 実験方法 .....	10
3.2 実験結果及び考察 .....	15
4. 第3回実験 一 土壌試料の不均一性に関する評価 一 .....	21
4.1 実験方法 .....	21
4.2 実験結果及び考察 .....	21
5. 第4回実験 一 実験機材の差異に関する評価 一 .....	21
5.1 実験方法 .....	21
5.2 実験結果及び考察 .....	21
6. 第5回実験 一 変動要因の詳細な検討 一 .....	26
6.1 容器の差異の影響 .....	26
6.2 振とう方法の影響 .....	29
6.3 容器への付着の影響 .....	29
7. 結 論 .....	33
7.1 本研究の成果 .....	33
7.2 今後の課題 .....	33
参考文献 .....	34

## Contents

1. Introduction .....	1
2. First Experiment -Preliminary Experiment- .....	3
2.1 Experimental Methods .....	3
2.2 Results and Discussion .....	3
3. Second Experiment -Main Experiment- .....	10
3.1 Experimental Methods .....	10
3.2 Results and Discussion .....	15
4. Third Experiment -Evaluation on Heterogeneity of Soil Samples- .....	21
4.1 Experimental Methods .....	21
4.2 Results and Discussion .....	21
5. Fourth Experiment -Evaluation on Difference of Experimental Materials- .....	21
5.1 Experimental Methods .....	21
5.2 Results and Discussion .....	21
6. Fifth Experiment -Detailed Discussion on Cause of Variability- .....	26
6.1 Effect of Difference of Vessels .....	26
6.2 Effect of Method of Shaking .....	29
6.3 Effect of Adhesion to Vessels .....	29
7. Conclusion .....	33
7.1 Results in This Study .....	33
7.2 Subjects in Future .....	33
References .....	34

## 1. 序論

環境中における核種の移行挙動を評価するため、様々なモデルが提案されており、これらのモデルには多くのパラメータが用いられている。これらのパラメータの内、吸着移行に関するパラメータとして、固相と液相の間における物質の分配を示す平衡論的パラメータである分配係数 ( $K_d$ ) がある。この  $K_d$  は、放射性廃棄物処分施設からの核種漏洩、地層における核種の移行挙動、生態圈における核種の動態解析など、様々なモデルにおいて用いられており、安全評価上極めて重要なパラメータである<sup>1,2)</sup>。したがって、安全評価の信頼性を確保するためには、評価に用いる  $K_d$  値を適切に測定し、かつ利用することが必要とされる。

$K_d$  の実験室内における測定法はバッチ法とカラム法の 2 種類に大別されるが、同一の測定手法であっても様々な要因により測定値が変動することが知られている。この変動要因としては、土壤の粒度、接触時間等の物理的変動要因や、EC、pH などの化学的変動要因が指摘されており、また、これらの変動要因以外に、各実験室で用いられている装置類及び実験操作における慣習、ならびに実験者の差異に起因する誤差も含まれている。このため、同一の土壤試料であっても、これらの変動要因の複合的な影響により、測定値にはばらつきが生じ、その差異は数桁に及ぶ場合もある。よって、 $K_d$  値を測定して評価に用いる際には、 $K_d$  を測定する際の実験条件や、測定値のモデルへの適用方法について十分に検討しなければならない。しかし、これらについて一般的ないしは客観的に検討する方法論は必ずしも確立していないため、専門家の判断に基づいて各評価体系に応じて個別に検討し、測定法、利用法を決定しているのが現状である。

このため、 $K_d$  の測定に関する標準的方法（標準的測定法）及び測定値の利用に関する標準的方法（標準的利用法）を作成することにより、評価体系に固有の条件を客観的に反映した  $K_d$  の測定及び利用が可能になると考えられる。また、標準的測定法を基準とし、実験条件等の変動要因が測定値に与える影響を定量的に把握することにより、異なった測定方法によって得られた  $K_d$  値間の比較が可能となる。

このような標準的測定法は、測定された値の信頼性を確保することが重要である。すなわち、実験手順にしたがって実験を行えば、安定した測定値が得られることを検証しなければならない。そのためには、測定値に大きな影響を与える実験条件を抽出し、様々な変動要因について、その影響を分別して定量化することが必要不可欠である。

そこで本研究では、標準的測定法を作成するための第 1 段階として、実験条件を詳細に設定した上で複数の機関による  $K_d$  の比較測定実験を行い、測定値に与える様々な変動要因の影響について検討を行った。

環境試料の  $K_d$  値を測定して安全評価に用いる際には、一般に複数の試料について測定が行われている。特に、巨視的には不均一性が見られる地層を対象に核種の移行挙動を評価する場合は、 $K_d$  値の分布の状況を把握する必要があるため、評価対象領域から採取された多数の試料について測定が行われている。また、 $K_d$  値を測定する際の実験条件は、各実験室の放射性核種の利用に係る認可の状況、各実験室で使用している実験機材等によって制約を受ける。これらのことから、標準的測定法は、実験が簡便かつ容易である必要がある。また、実験者の技術の程度に依存するような複雑な操作や、実験者の判断が必要とされる操作が実験手順の中に含まれていると、実験者の差異が測定値に大きく影響を及ぼす可能性が生じる。このため、本研究において実験条件及び実験手順を決めるにあたっては、以下の点を重視した。

- (1) 実験の実施・反復が容易で、短期間で行えること。
- (2) 実験者の判断が必要とされる手順を含まないこと。
- (3) 可能であれば同一の試料を用いること。
- (4) 変動原因について考察できること。

本研究では、予備実験（第1回実験）、本実験（第2回実験）、各要因に関する確認実験（第3回～第5回実験）の順に実験を実施した。各実験における主な実験条件を表1.1にまとめて示す。実験には放射線医学総合研究所、九州環境管理協会、三菱マテリアル、日本原子力研究所の4機関が参加した。以下それぞれ機関A～機関Dと記述する。

表1.1 各実験における主な実験条件

(■は各実験の特徴となる条件)

実験条件	第1回実験	第2回実験	第3回実験	第4回実験	第5回実験
参加機関	4機関	4機関	4機関	4機関	1機関
核種	$^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ $^{85}\text{Sr}$ , $^{54}\text{Mn}$ (混合)	$^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ (単独)	$^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ (単独)	$^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ (単独)	$^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ (単独)
土壤	豊浦砂 黒ボク土	豊浦砂 黒ボク土	豊浦砂 黒ボク土 (配布試料 のクロス チェック)	豊浦砂 黒ボク土	黒ボク土
溶媒	$10^{-3}\text{mol/l}$ $\text{CaCl}_2$ 溶液	$10^{-3}\text{mol/l}$ $\text{CaCl}_2$ 溶液 (配布)	$10^{-3}\text{mol/l}$ $\text{CaCl}_2$ 溶液 (配布)	$10^{-3}\text{mol/l}$ $\text{CaCl}_2$ 溶液 (配布)	$10^{-3}\text{mol/l}$ $\text{CaCl}_2$ 溶液
容器材質	ポリプロピレン	ポリプロピレン	ポリプロピレン	ポリプロピレン	各種材質
容器形状	瓶・遠沈管	瓶・遠沈管	瓶・遠沈管	遠沈管 (実験機材 の統一)	瓶・遠沈管 (容器のク ロスチェック)
RI初期濃度	$100\text{Bq/ml}$ $1000\text{Bq/ml}$	$100\text{Bq/ml}$	$100\text{Bq/ml}$	$100\text{Bq/ml}$	$100\text{Bq/ml}$
温度	$15^{\circ}\text{C}$ $25^{\circ}\text{C}$	$15^{\circ}\text{C}$	$15^{\circ}\text{C}$	$15^{\circ}\text{C}$	$15^{\circ}\text{C}$
固液接触	往復振とう	往復振とう 静置	往復振とう	往復振とう	往復振とう
固液分離	遠心分離	2時間静置 遠心分離	2時間静置	2時間静置	2時間静置
ろ過操作	ろ過あり ろ過なし	ろ過あり	ろ過あり	ろ過あり	ろ過あり

## 2. 第1回実験 一予備実験一

## 2.1 実験方法

第1回実験の実験条件・手順を以下に示す。また、実験手順のフローチャートを図2.1に示す。

## ・基本条件

核種	: $^{60}\text{Co}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{85}\text{Sr}$ 、 $^{54}\text{Mn}$ (可能であれば指定された同一ロットのRIを購入し使用する)
土壤	: 豊浦砂、黒ボク土 (1機関が購入し、各機関に配布する)
溶媒	: $10^{-3}$ mol/l $\text{CaCl}_2$ 溶液
容器容量	: 50ml
容器材質	: 任意
容器形状	: そのまま遠心分離可能なもの
・固液接触	
接觸方法	: バッチ法
固液比	: 1:10 (風乾土壤 3g、溶液 30ml)
添加方法	: 土壤と溶媒を混合し1時間以内にRIを添加する。RIは全核種を混合して用い、pH調整、希釀等の操作は行わない。
RI 初期濃度	: 各核種 100Bq/ml と 1000Bq/ml の2種類
温度	: 15°C と 25°C の2種類
サンプル数	: 1条件につき3サンプル以上
・振とう	
振とう方法	: 往復振とう
振とう強度	: 50 往復/分
振とう時間	: 7日間 (168時間)
・RI 強度等測定	
遠心分離	: 3500rpm、10分
測定試料量	: 5ml
測定機器	: マルチチャネル波高分析器付 Ge 半導体検出器
測定時間	: 原則として1時間とし、カウント数に応じて適宜判断する
その他の測定	: 上澄み液のpH、ECを測定する

## ・実験結果の整理

定められた様式の整理票にしたがう。実験方法を変更した場合 (RI測定時間を1時間以上とした場合等) は、特記事項の欄に記載する。

## 2.2 実験結果及び考察

各機関で設定した実験条件を表2.1に示す。機関Bは実験室の都合によりRI初期濃度が1000Bq/mlの実験は実施しなかった。また、マンガンに関する実験は機関A及び機関Cの2機関のみが行った。なお、機関A、機関C、機関Dは、指定された同一ロットのRIを購入して使用した。

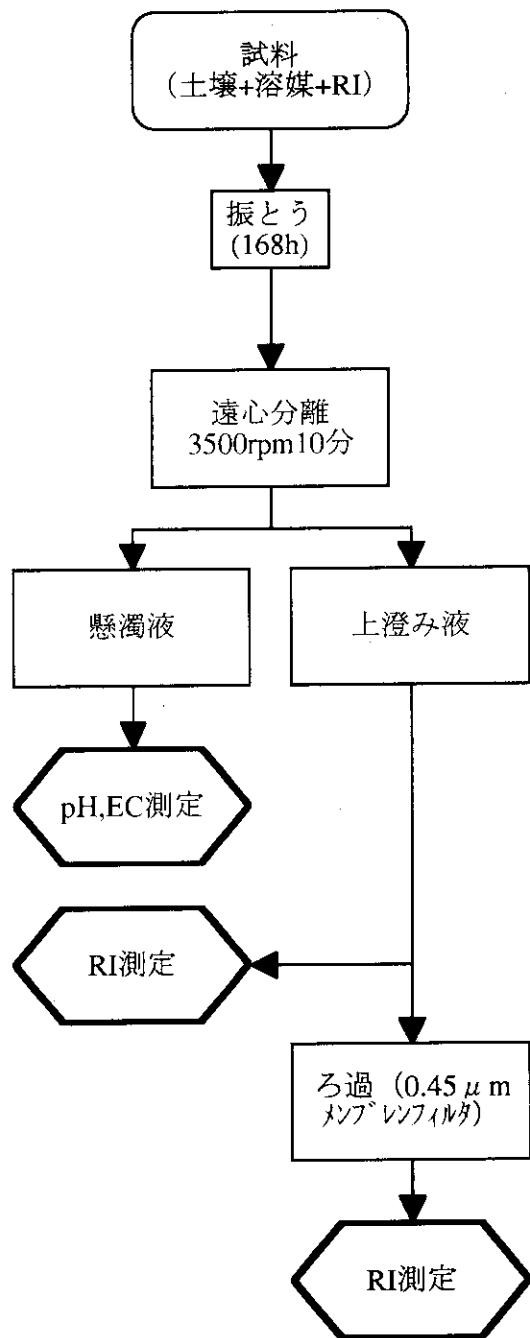


図2.1 第1回実験手順のフローチャート

表2.1 各機関で設定した実験条件

機関		A	B	C	D
核種	<sup>60</sup> Co	同一ロット	別途	同一ロット	同一ロット
	<sup>137</sup> Cs	同一ロット	別途	同一ロット	同一ロット
	<sup>85</sup> Sr	同一ロット	別途 ( <sup>90</sup> Sr)	同一ロット	同一ロット
	<sup>54</sup> Mn	同一ロット	実験せず	同一ロット	実験せず
容器材質		ポリプロピレン	ポリプロピレン	ポリプロピレン	ポリプロピレン
容器形状		円筒細口瓶	円筒瓶	円筒瓶	円筒遠沈管
RI初期濃度		100Bq/ml 1000Bq/ml	100Bq/ml	100Bq/ml 1000Bq/ml	100Bq/ml 1000Bq/ml
サンプル数		3サンプル	3サンプル	3サンプル	5サンプル

得られたKd測定値を核種、土壤毎に図2.2～図2.9に示す。それぞれの核種－土壤の組み合せについて考察した内容を以下に示す。

### (1) コバルト

豊浦砂：RI初期濃度の影響は、RIを多く加えた方が測定値が小さくなる傾向が機関Aで見られたが、機関C、機関Dは初期濃度の影響は見られなかった。温度の影響は機関D以外で観察されており、15°Cよりも25°Cの方が測定値が若干大きくなる傾向にある。RI初期濃度が100Bq/mlの場合の全体のばらつきはファクタ5の範囲にある。

黒ボク土：豊浦砂に比して、各機関の測定値が再現性よく得られている。RI初期濃度の影響は認められないが、すべての機関で温度の影響が見られ、15°Cよりも25°Cの方が測定値が若干大きくなる傾向が見られる。この傾向は、特に機関Cで顕著である。15°Cでは機関Aと機関B、機関Cと機関Dでの測定値が同程度であり、2つのグループを形成している。

### (2) セシウム

豊浦砂：コバルトと同様に、RI初期濃度の影響が機関Aでのみ明確に認められた。温度の影響は機関Cで顕著に現れており、15°Cよりも25°Cの方が測定値が大きくなっているが、他の機関では温度の影響は見られない。全体のばらつきはコバルトより大きく、1桁を超えている。

黒ボク土：各機関の測定値は安定しており、RI初期濃度の影響は認められない。温度の影響は機関Cでのみ明確に認められるが他機関では見られない。また、コバルトと同様に、機関Aと機関B、機関Cと機関Dで2つのグループを形成している。

### (3) ストロンチウム

豊浦砂：RI初期濃度が高いと測定値が若干小さくなる傾向が認められる。温度の影響は明確ではない。機関Aや機関Dで値のばらつきが目立つのは、核種の吸着量が小さいため液相中核種濃度の変化が少なく、γ線強度の計測誤差の影響が大きく現れたため

Kd測定値 (ml/g)

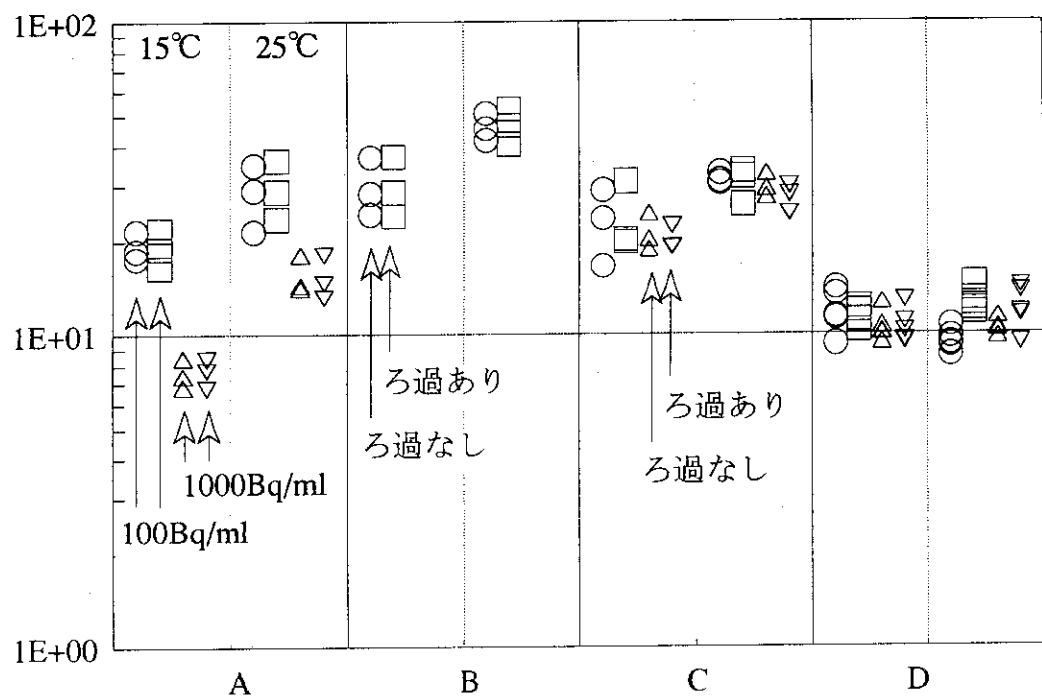


図2.2 第1回実験におけるKd測定値 (コバルト、豊浦砂)

Kd測定値 (ml/g)

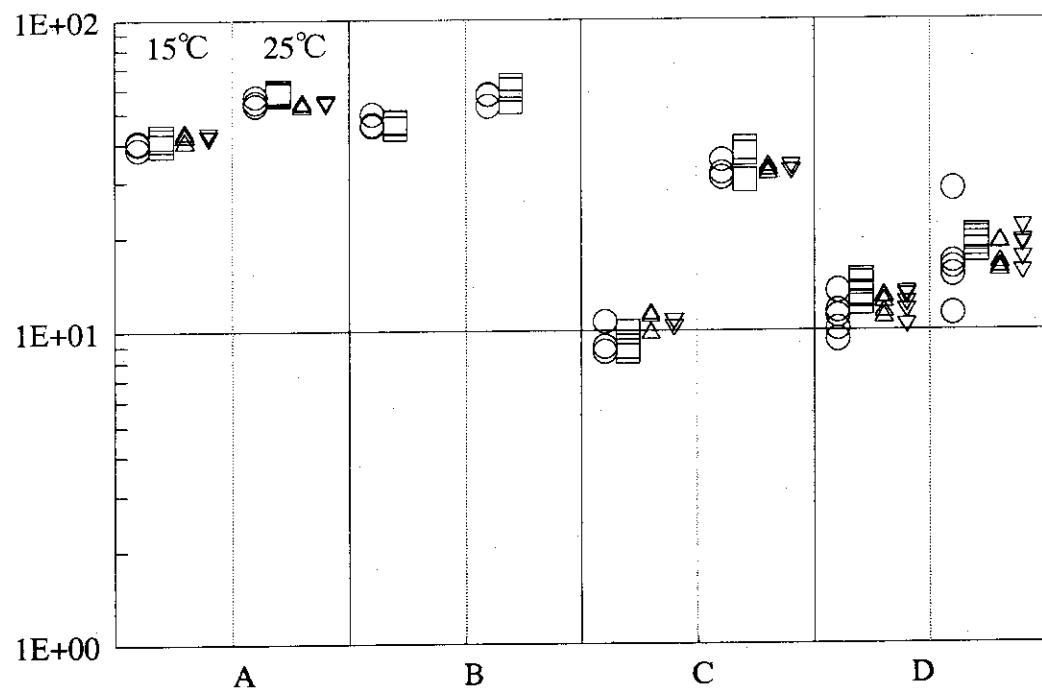


図2.3 第1回実験におけるKd測定値 (コバルト、黒ボク土)

Kd測定値(ml/g)

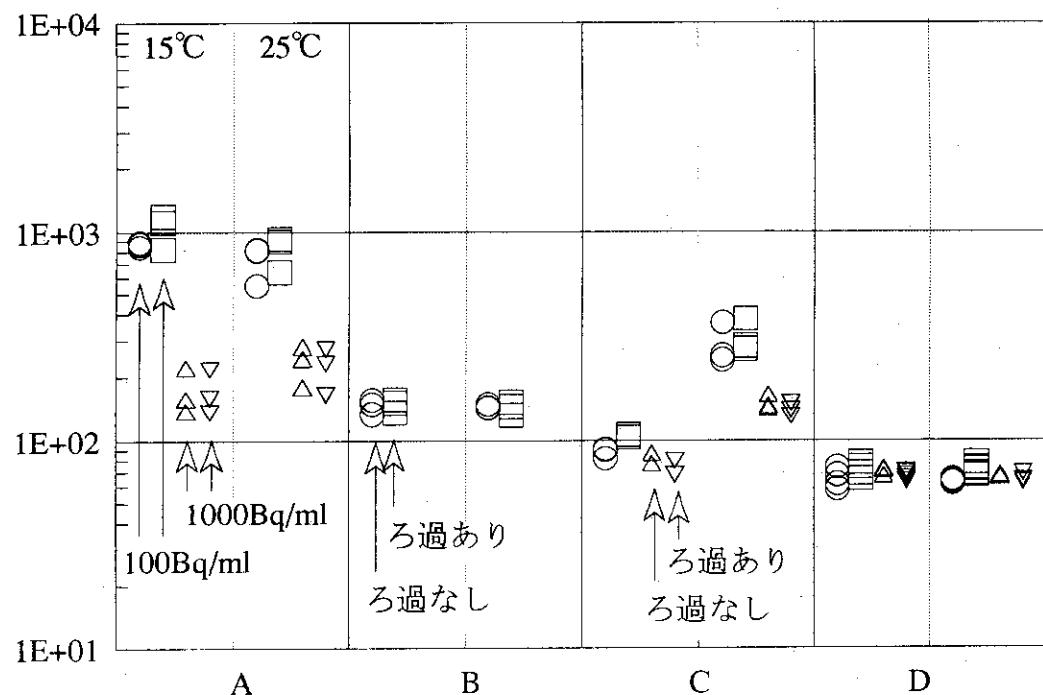


図2.4 第1回実験におけるKd測定値（セシウム、豊浦砂）

Kd測定値 (ml/g)

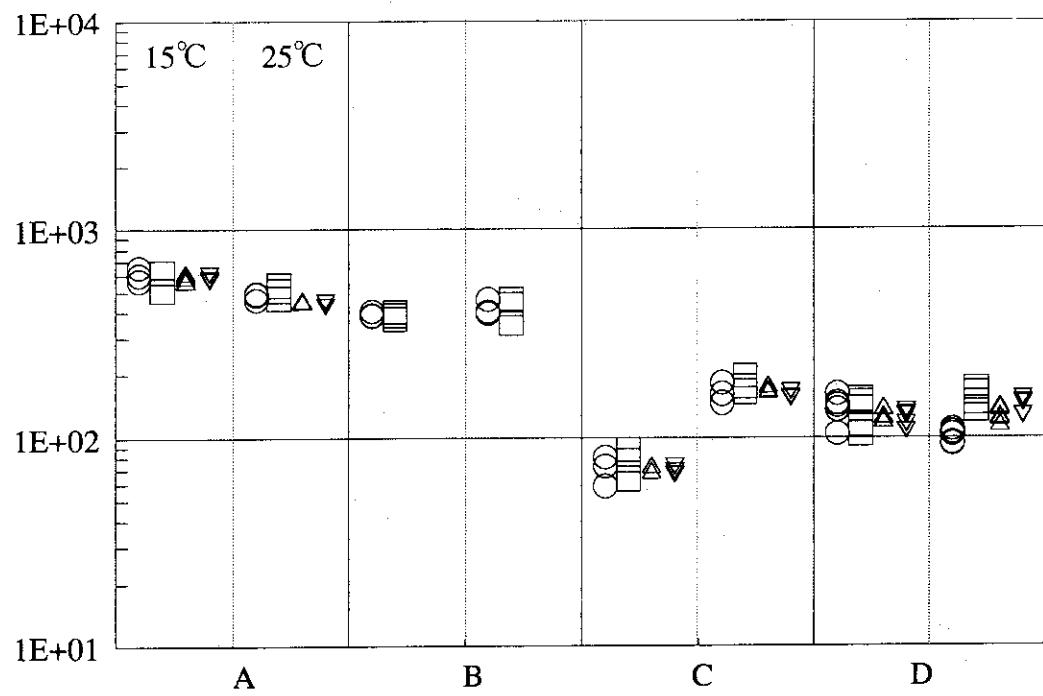


図2.5 第1回実験におけるKd測定値（セシウム、黒ボク土）

Kd測定値 (ml/g)

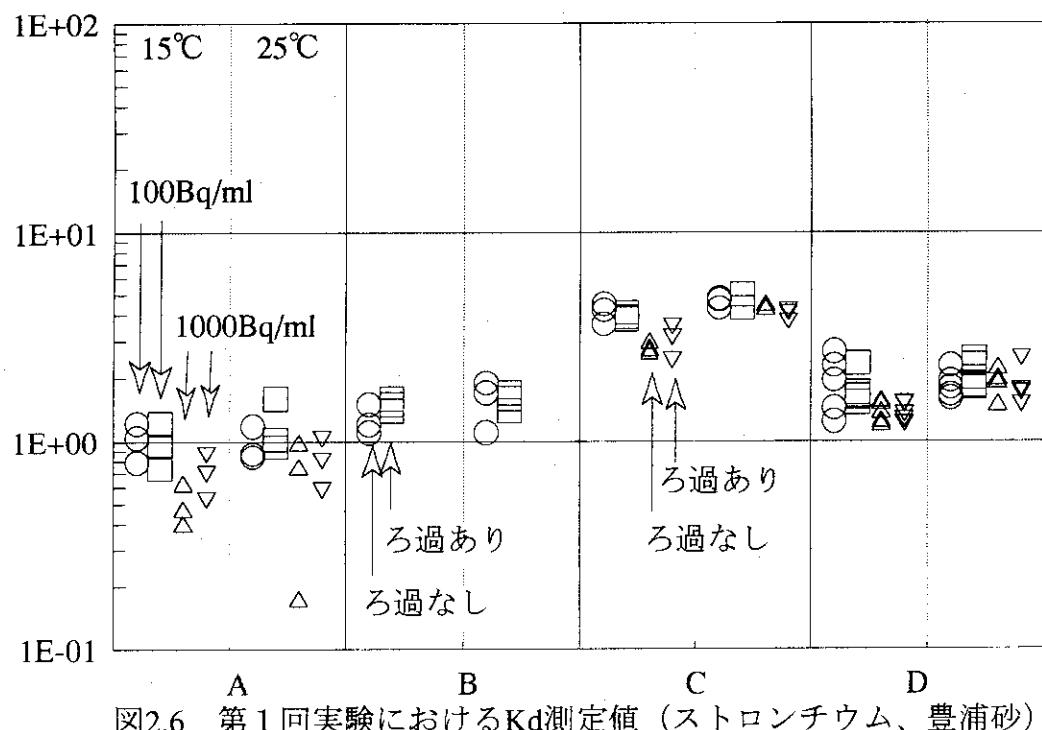


図2.6 第1回実験におけるKd測定値 (ストロンチウム、豊浦砂)

Kd測定値(ml/g)

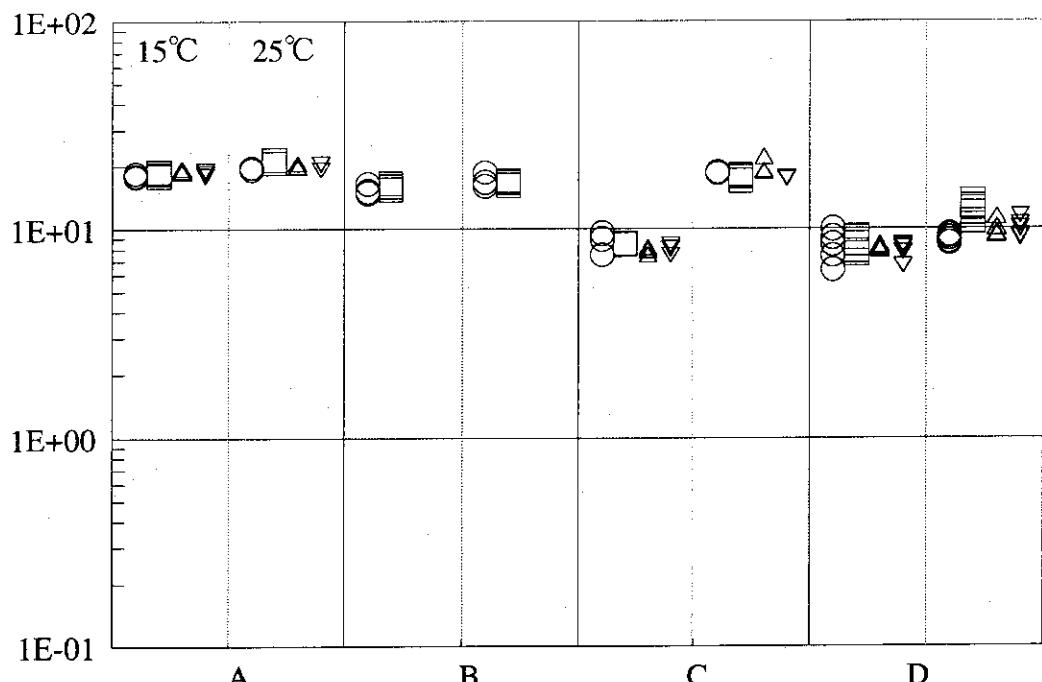


図2.7 第1回実験におけるKd測定値 (ストロンチウム、黒ボク土)

Kd測定値(ml/g)

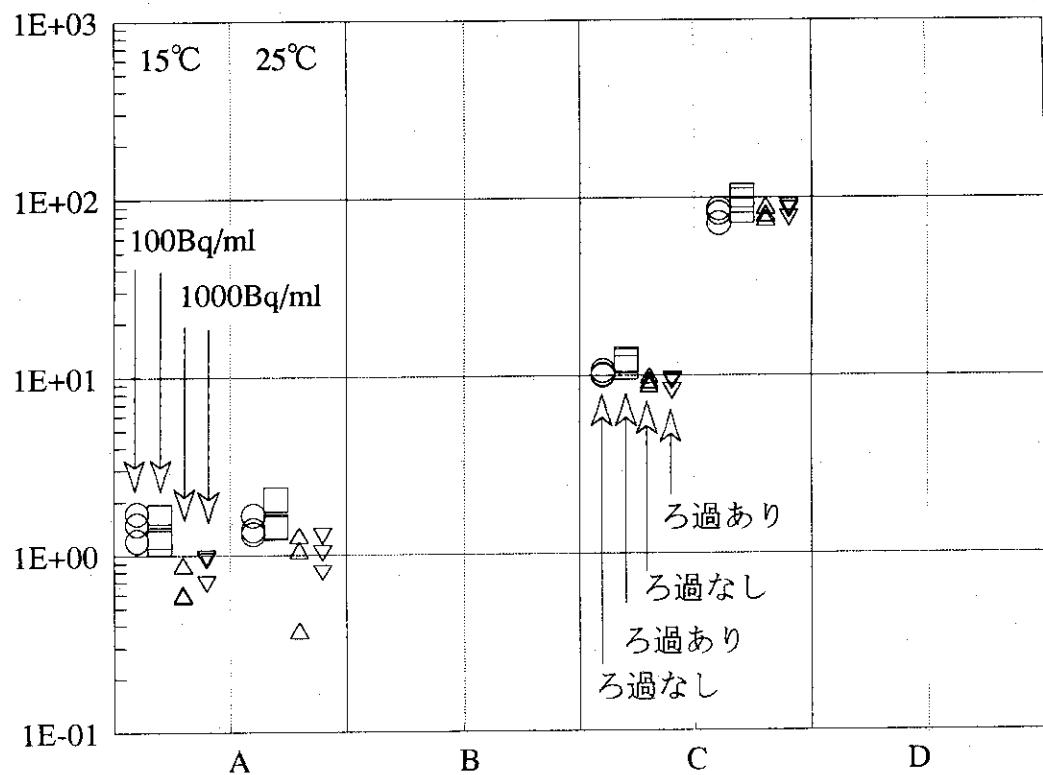


図2.8 第1回実験におけるKd測定値 (マンガン、豊浦砂)

Kd測定値 (ml/g)

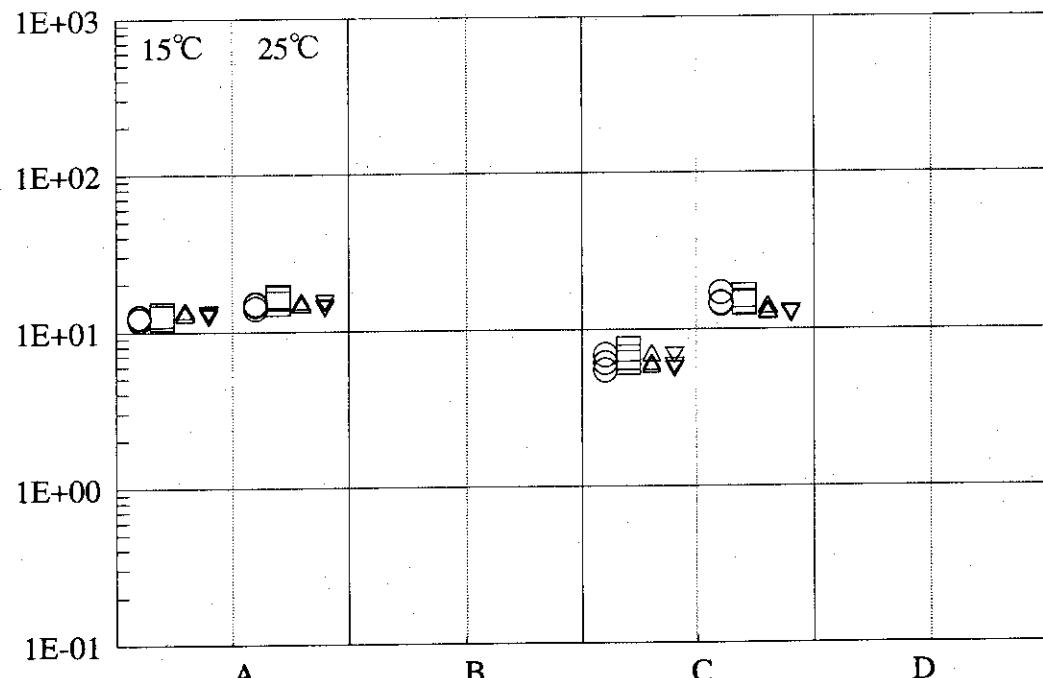


図2.9 第1回実験におけるKd測定値 (マンガン、黒ボク土)

と考えられる。15°Cの場合で見ると、全体のばらつきはファクタ5程度である。黒ボク土：RI初期濃度の影響は見られないが、温度の影響が機関Cでのみ認められる。測定値の全体のばらつきはファクタ3程度であり、他の組み合わせに比して高い安定性が見られる。

#### (4) マンガン（機関A及び機関Cのみ）

豊浦砂：RI初期濃度の影響が機関Aでのみ見られる。温度の影響は機関Aでは認められないが、機関Cでは顕著に現れている。また、両者の測定値の差は大きく、25°Cの場合では2桁に及んでいる。

黒ボク土：機関Cにおいて温度の影響が若干認められるが、どちらの測定値も比較的安定しており、全体のばらつきはファクタ2以下である。

なお、各機関で行った測定の手順及び実験条件について詳細に検討した結果、いくつかの点で相違が確認された。それらの相違点を表2.2にまとめて記す。これらの相違点の内、測定値に影響を及ぼす要因として比較的寄与が大きいと考えられるのは、RI溶液の作成・添加方法である。RI溶液作成において混合した放射性核種の数が各機関で異なっており、機関Aは4核種、機関Bは2核種、機関Dは3核種を混合してRI溶液としていた。機関Cは核種を混合せず、1核種ずつ単独で実験に供した。このため、pH、EC等の液性が各機関で異なり、特に緩衝能が比較的低い豊浦砂において、液性の差異の影響が顕著に現れたと考えられる。

RI初期濃度の影響は機関Aの豊浦砂において顕著に見られるが、これは機関Aが用いたRI原液が酸性溶液(0.1N HCl)であり、かつ4核種を混合しているため、初期濃度が100Bq/mlの場合と1000Bq/mlの場合でpH等の液性が大きく異なったことによると考えられる。他の機関ではRI初期濃度の影響は大きくないこと、及び機関Aにおいても黒ボク土についてはRI初期濃度の影響はほとんど現れていないことから、RI初期濃度の差異そのものの影響は比較的小さいことが推測される。なお、温度の影響は一部の組み合わせで見られるが、その測定値の差異は比較的小さく、本実験程度の温度の差異による影響は、他の変動要因に比して小さいと考えられる。

なお、ろ過操作の有無の影響は、いずれの組み合わせにおいてもほとんど見られなかった。これは今回の実験に使用した土壤の粒径が比較的大きいことによると考えられ、ベントナイトや粘土鉱物等粒径の小さい試料については、ろ過操作の有無の影響が現れる可能性があることに留意する必要がある。

このように、pH、EC等液性の差異は他の変動要因に比してKd測定値に大きな影響を与えているが、本実験における測定値の傾向の全てを液性のみで説明することは極めて困難であるため、実験条件をさらに細分化し、これらの相違点を排除した比較実験を行うこととした。

### 3. 第2回実験 一本実験－

#### 3.1 実験方法

第2回実験では、第1回実験におけるKd測定値の変動要因をより明確にするため、実験条件を変更あるいは詳細化した。核種は<sup>60</sup>Co、<sup>137</sup>Csのみとし、各核種は混合せず単独で実験を行うこととした。なお、第1回実験で比較的影響が小さいと認められた温度やRI初期濃度については、それぞれ1条件のみとした。

また、固液接触における振とうの影響及びろ過前の遠心分離の有無の影響を確認するため、

と考えられる。15°Cの場合で見ると、全体のばらつきはファクタ5程度である。黒ボク土：RI初期濃度の影響は見られないが、温度の影響が機関Cでのみ認められる。測定値の全体のばらつきはファクタ3程度であり、他の組み合わせに比して高い安定性が見られる。

#### (4) マンガン（機関A及び機関Cのみ）

豊浦砂：RI初期濃度の影響が機関Aでのみ見られる。温度の影響は機関Aでは認められないが、機関Cでは顕著に現れている。また、両者の測定値の差は大きく、25°Cの場合では2桁に及んでいる。

黒ボク土：機関Cにおいて温度の影響が若干認められるが、どちらの測定値も比較的安定しており、全体のばらつきはファクタ2以下である。

なお、各機関で行った測定の手順及び実験条件について詳細に検討した結果、いくつかの点で相違が確認された。それらの相違点を表2.2にまとめて記す。これらの相違点の内、測定値に影響を及ぼす要因として比較的寄与が大きいと考えられるのは、RI溶液の作成・添加方法である。RI溶液作成において混合した放射性核種の数が各機関で異なっており、機関Aは4核種、機関Bは2核種、機関Dは3核種を混合してRI溶液としていた。機関Cは核種を混合せず、1核種ずつ単独で実験に供した。このため、pH、EC等の液性が各機関で異なり、特に緩衝能が比較的低い豊浦砂において、液性の差異の影響が顕著に現れたと考えられる。

RI初期濃度の影響は機関Aの豊浦砂において顕著に見られるが、これは機関Aが用いたRI原液が酸性溶液(0.1N HCl)であり、かつ4核種を混合しているため、初期濃度が100Bq/mlの場合と1000Bq/mlの場合でpH等の液性が大きく異なったことによると考えられる。他の機関ではRI初期濃度の影響は大きくないこと、及び機関Aにおいても黒ボク土についてはRI初期濃度の影響はほとんど現れていないことから、RI初期濃度の差異そのものの影響は比較的小さいことが推測される。なお、温度の影響は一部の組み合わせで見られるが、その測定値の差異は比較的小さく、本実験程度の温度の差異による影響は、他の変動要因に比して小さいと考えられる。

なお、ろ過操作の有無の影響は、いずれの組み合わせにおいてもほとんど見られなかった。これは今回の実験に使用した土壤の粒径が比較的大きいことによると考えられ、ペントナイトや粘土鉱物等粒径の小さい試料については、ろ過操作の有無の影響が現れる可能性があることに留意する必要がある。

このように、pH、EC等液性の差異は他の変動要因に比してKd測定値に大きな影響を与えているが、本実験における測定値の傾向の全てを液性のみで説明することは極めて困難であるため、実験条件をさらに細分化し、これらの相違点を排除した比較実験を行うこととした。

### 3. 第2回実験 一本実験

#### 3.1 実験方法

第2回実験では、第1回実験におけるKd測定値の変動要因をより明確にするため、実験条件を変更あるいは詳細化した。核種は<sup>60</sup>Co、<sup>137</sup>Csのみとし、各核種は混合せず単独で実験を行うこととした。なお、第1回実験で比較的影響が小さいと認められた温度やRI初期濃度については、それぞれ1条件のみとした。

また、固液接触における振とうの影響及びろ過前の遠心分離の有無の影響を確認するため、

表2.2 実験方法に相違が生じた箇所

機関	A	B	C	D
核種混合 ( $^{60}\text{Co}$ , $^{85}\text{Sr}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{54}\text{Mn}$ )	4核種混合 ( $^{60}\text{Co}$ , $^{85}\text{Sr}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{54}\text{Mn}$ )	2核種混合 ( $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ ) 1核種単独 ( $^{90}\text{Sr}$ )	全核種単独	3核種混合 ( $^{60}\text{Co}$ , $^{85}\text{Sr}$ , $^{137}\text{Cs}$ )
溶液添加	100Bq/ml : 原液を10倍希釈して0.03ml添加 1000Bq/ml : 原液0.03ml添加	脱イオン水で希釈した溶液から100Bq/ml相当(0.6ml)トーダルで30mlとなるように添加	標準溶液を50kBq/mlに希釈必要量を30mlに添加	100Bq/ml : 原液を10倍希釈して0.03ml添加 1000Bq/ml : 原液0.03ml添加
温度の維持	恒温器	15°C : 恒温器 25°C : 室温による実験	恒温器	恒温器 1週間程度前から試料の温度管理
遠心分離中の温度維持	維持	維持せず	維持せず	維持せずにしているが正確な温度維持は確認していない、
pH,EC測定	EC測定 (上澄み) pH測定 (懸濁)	後 測定用サンプルを別途準備 pH測定後EC測定	測定順不明	EC測定後 (上澄み) pH測定 (上澄み)

固液接触時に振とうを行わず静置するサンプル及びろ過前に遠心分離を行うサンプルをそれぞれ1サンプル作成し、測定値を比較することとした。第2回実験の実験条件・手順を以下に示す。また、実験手順のフローチャートを図3.1に、各機関に配布した実験結果整理票を図3.2に示す。

・基本条件

核種	: $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ (第1回実験と同じRIを使用する)
土壤	: 豊浦砂、黒ボク土 (第1回実験と同じ土壤を使用する)
土壤調整	: 風乾を行わず、そのまま使用する
溶媒	: $10^{-3}$ mol/l $\text{CaCl}_2$ 溶液 (1機関より配布する)
容器容量	: 50ml
容器材質	: ポリプロピレン
容器形状	: そのまま遠心分離可能なもの
RI調整	: 1MBq/ml の原液をイオン交換水で 50kBq/ml (20倍) に希釈する

・固液接触

接触方法	: バッヂ法
固液比	: 1 : 10 (土壤 3g : 溶液 30ml)
添加方法	: 土壤3gと溶媒30mlを混合し、1時間以内に各RIを混合せず別々に添加する
RI 初期濃度	: 100Bq/ml (RI溶液 0.06ml)
温度	: 15°C
試料温度調整	: 実験開始の24時間以上前から、土壤及び溶媒の温度調整を行う
サンプル数	: 1核種1土壤あたり5サンプルを用意し、4サンプルは振とうさせ、1サンプルは手で軽く攪拌した後振とうさせず恒温器内に静置する
総サンプル数	: 1核種1土壤あたり5(4+1)サンプル(計20サンプル)+プランク(2+1)

・振とう

振とう方法	: 往復振とう
振とう強度	: 50往復/分
振とう時間	: 7日間(168時間)
温度測定	: 振とう開始より1日後、4日後、7日後(振とう終了時)に恒温器内温度を測定、記録する

・RI強度測定

固液分離	: 振とうした4サンプルの内3サンプル及び振とうしない1サンプルは、恒温器内で2時間静置後上澄み5mlをろ過する 残りの振とうした1サンプルは、恒温器内で2時間静置後遠心分離し上澄み5mlをろ過する
遠心分離	: 3500rpm、10分
温度管理	: 静置、遠心分離とも15°Cを保持する
測定試料量	: 5ml
測定機器	: マルチチャネル波高分析器付Ge半導体検出器
測定時間	: 原則として1時間とするが、カウント数に応じて適宜判断し、測定誤差を少なくする。特に $^{137}\text{Cs}$ について測定誤差に留意する。検出限界の10倍以

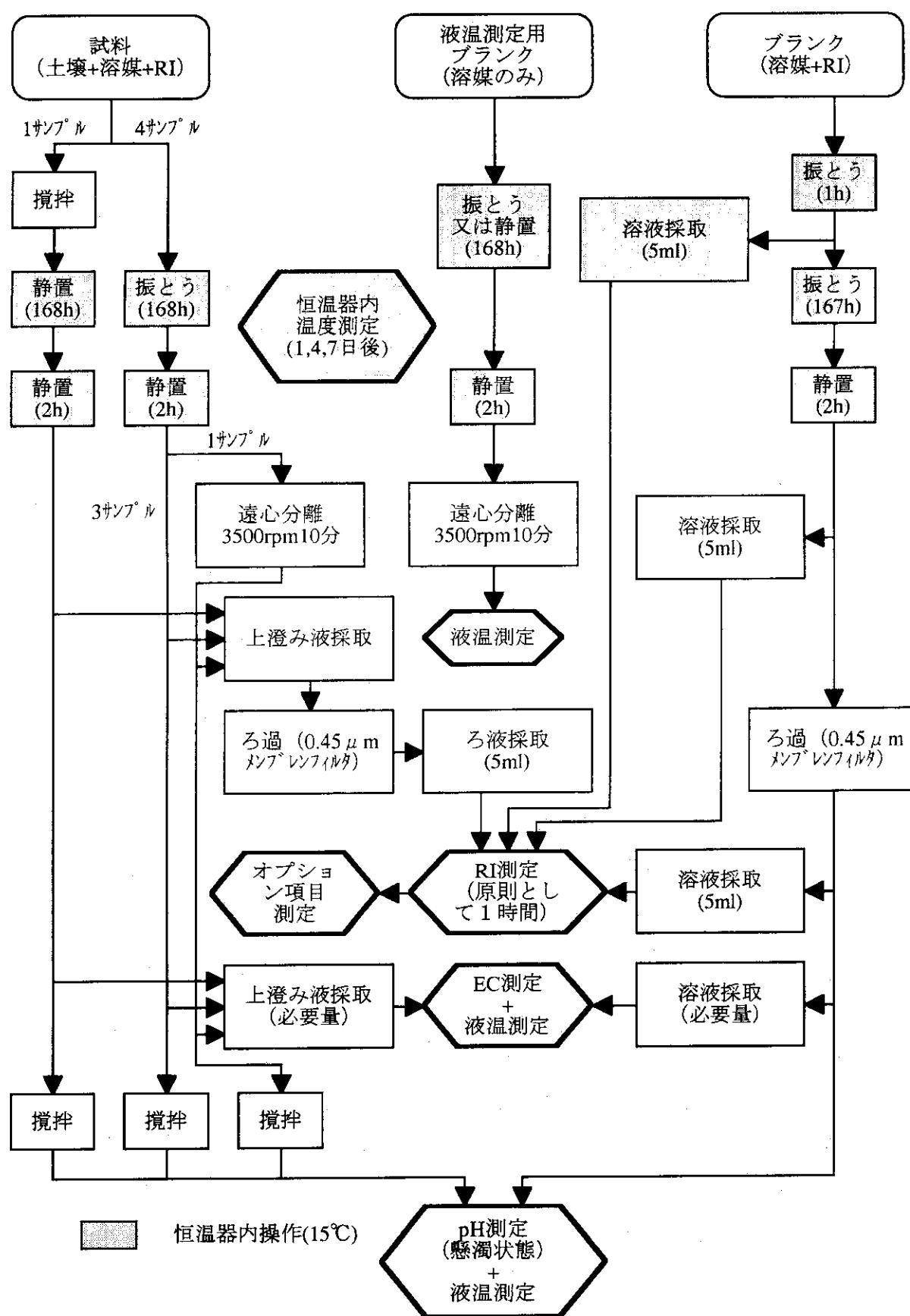


図 3.1 第2回実験手順のフローチャート

実施機関		実験者		実験日時				特記事項			
核種	土壤	固液接触	固液分離	濃度(Bq/ml)	Kd(ml/g)	pH	EC(μs/cm)	温度	測定時間	EC基準	
Co-60	豊浦砂	振とう	静置								
		静置	遠心分離								
		静置	静置								
	黒ボク土	振とう	静置								
		静置	遠心分離								
		静置	静置								
Cs-137	豊浦砂	振とう	静置								
		静置	遠心分離								
		静置	静置								
	黒ボク土	振とう	静置								
		静置	遠心分離								
		静置	静置								
温度測定		恒温器内温度：1日後		℃, 4日後	℃, 7日後	℃	遠心分離後の液温：		℃		
備考											

図 3.2 実験結果整理表

上を目安とする。

・pH、EC測定

EC : RI測定試料採取後、上澄みを必要量採取して測定する

pH : EC測定試料採取後攪拌して測定する

液温 : pH、EC測定時の液温を測定する

・ブランク測定

試料作成 : 土壌を加えないことの他は全て同一条件（振とうあり）で行う

RI強度 : 以下の3種類の溶液を各5ml採取して測定する

a. 振とう開始1時間後

b. 振とう終了後2時間静置した後

c. 上記試料採取後ろ過を行った後（ろ液）

EC : ロ液採取後必要量採取して測定する

pH : EC測定試料採取後そのまま使用する

・遠心分離による液温上昇測定

試料 : 溶媒のみのブランク試料を作成、使用する

測定方法 : 遠心分離用サンプルと同様の操作を行い、遠心分離直後の液温を測定する

・実験結果の整理

別紙様式にしたがう。ブランクの濃度は測定順にしたがって記載し、分配係数の算出には2時間静置後の濃度（b.の濃度）を用いる。特記事項の記入は以下の様式に従う。

測定時間 : RI濃度測定で1時間を超える測定時間としたとき、その測定時間を記録する（単位：時間）

EC希釈 : EC測定において測定試料を希釈した場合、その希釈倍率を記録する

その他 : その他個々のサンプルに関し実験方法を変更した場合等に、変更点を記録する

・その他

実験方法を全体的に変更した場合には、変更点を備考欄に記載する。

### 3.2 実験結果及び考察

得られたKd測定値及びpH、EC測定値を、第1回実験において同じ実験条件（RI初期濃度100Bq/ml、温度15°C）で得られた測定値と併せて図3.3～図3.6に示す。機関Aは振とうを行わない実験を実施せず、遠心分離を行う実験を2サンプル実施した。また、機関Bは第1回実験ではECの測定を行っていない。以下、それぞれの核種-土壤の組み合わせについて考察する。

#### (1) コバルト

豊浦砂 : 機関Cを除く3機関で、第2回実験の測定値が第1回実験の測定値を上回っている。その差の傾向はpH及びECの変化に対応しており、コバルト-豊浦砂の組み合わせにおいては液性が極めて大きな影響を及ぼしていることが推察される。第1回実験で各核種単独で実験を行った機関Cでは、Kd、pH、ECとも同程度の測定値が得られており、第1回実験と第2回実験の差異が、添加したRI原液の量の差異によって生じた液性の差異によるこことを裏付けている。また、各機関の測定値には1桁以上の差異が見られる。

黒ボク土 : いずれの機関でも安定した測定値が得られており、第1回実験との差は小さいこと

Kd測定値 (ml/g)

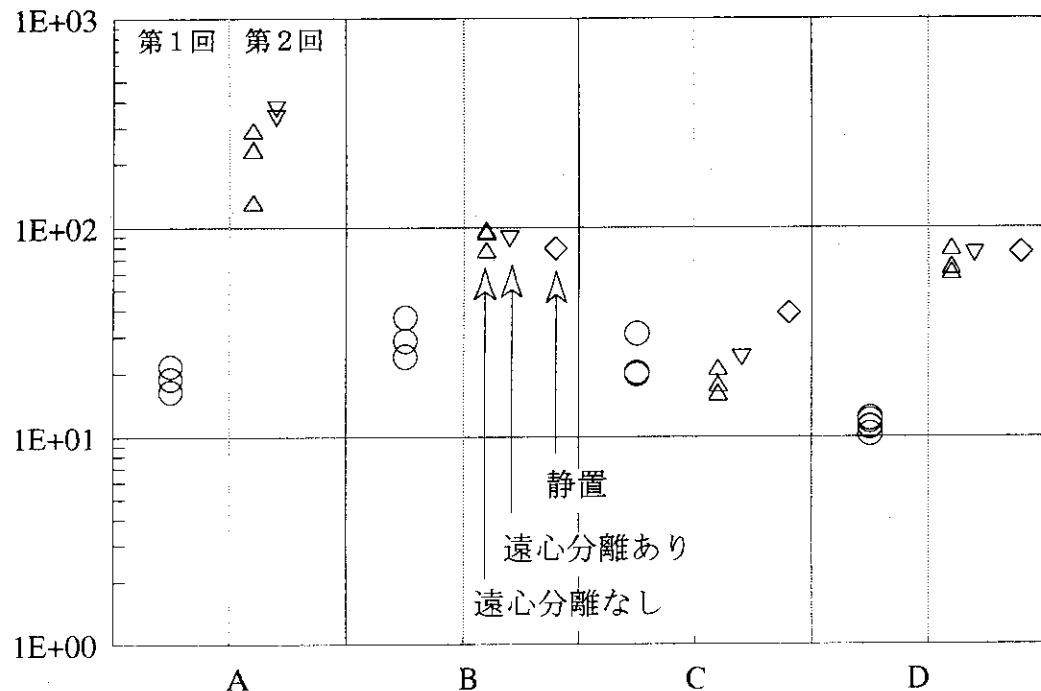


図3.3a 第2回実験におけるKd測定値 (コバルト、豊浦砂)

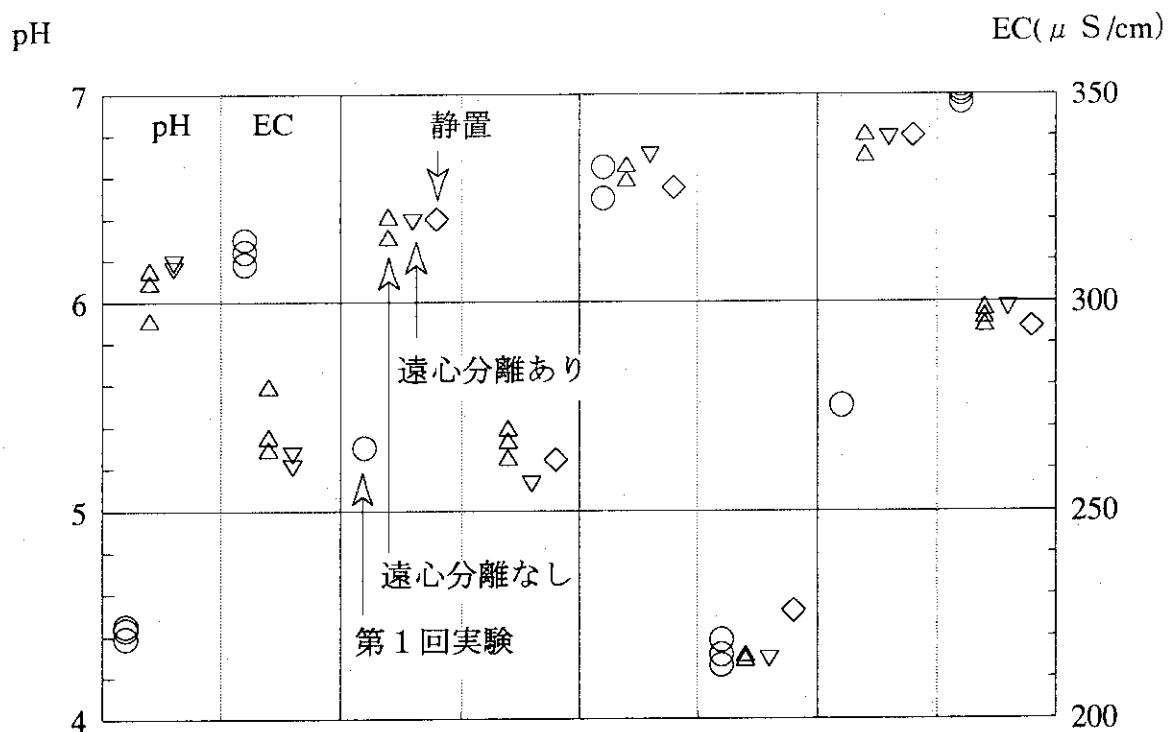


図3.3b pH及びEC測定値 (コバルト、豊浦砂)

Kd 測定値(ml/g)

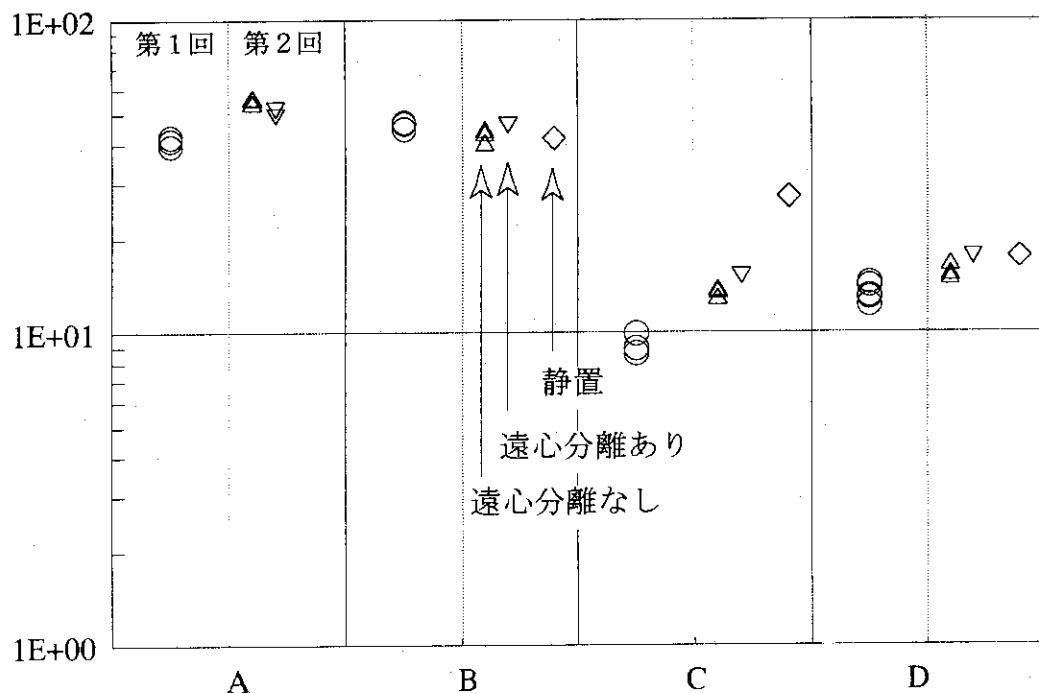


図3.4a 第2回実験におけるKd測定値 (コバルト、黒ボク土)

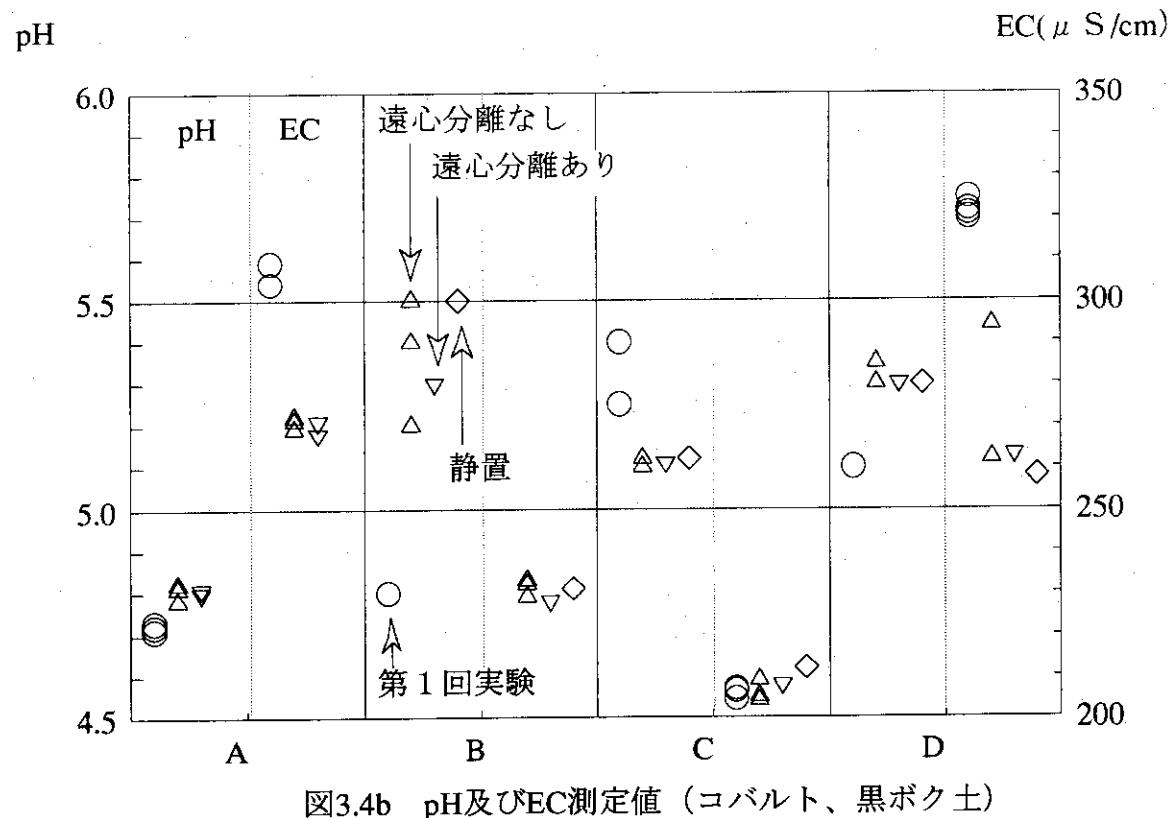


図3.4b pH及びEC測定値 (コバルト、黒ボク土)

## Kd 測定値(ml/g)

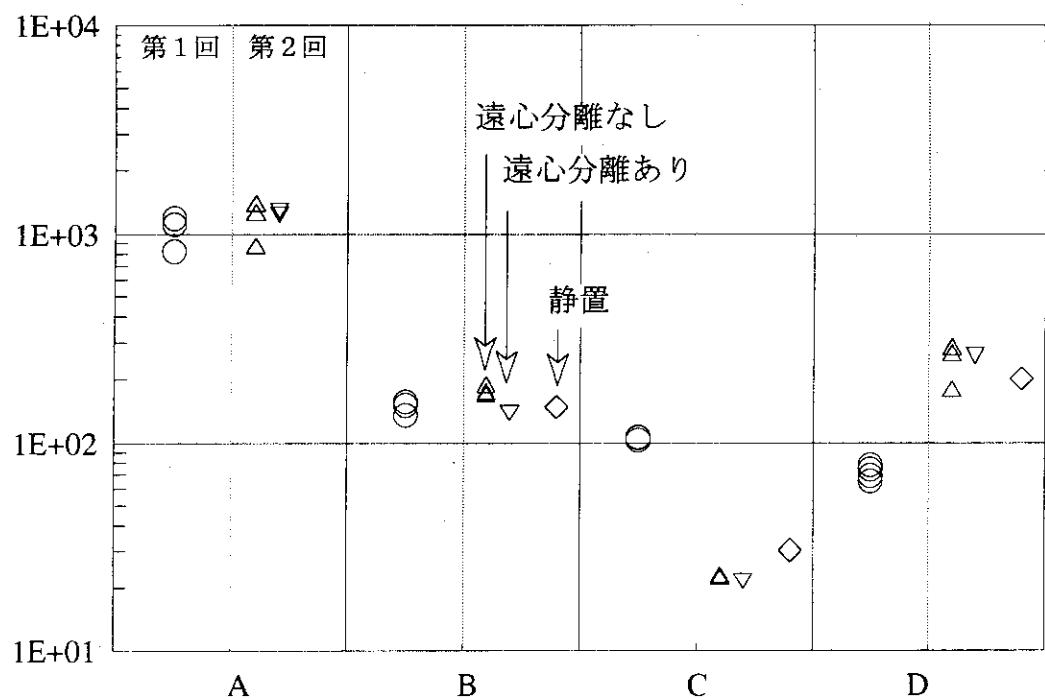


図3.5a 第2回実験におけるKd測定値(セシウム、豊浦砂)

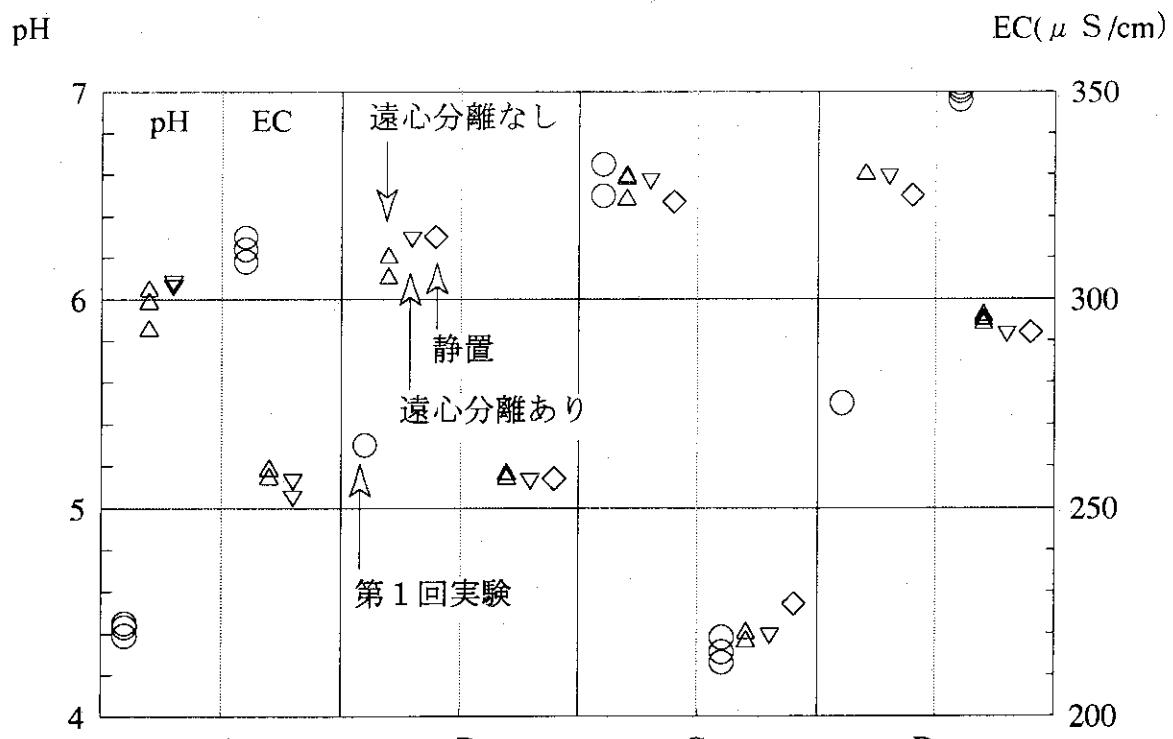


図3.5b pH及びEC測定値(セシウム、豊浦砂)

Kd測定値 (ml/g)

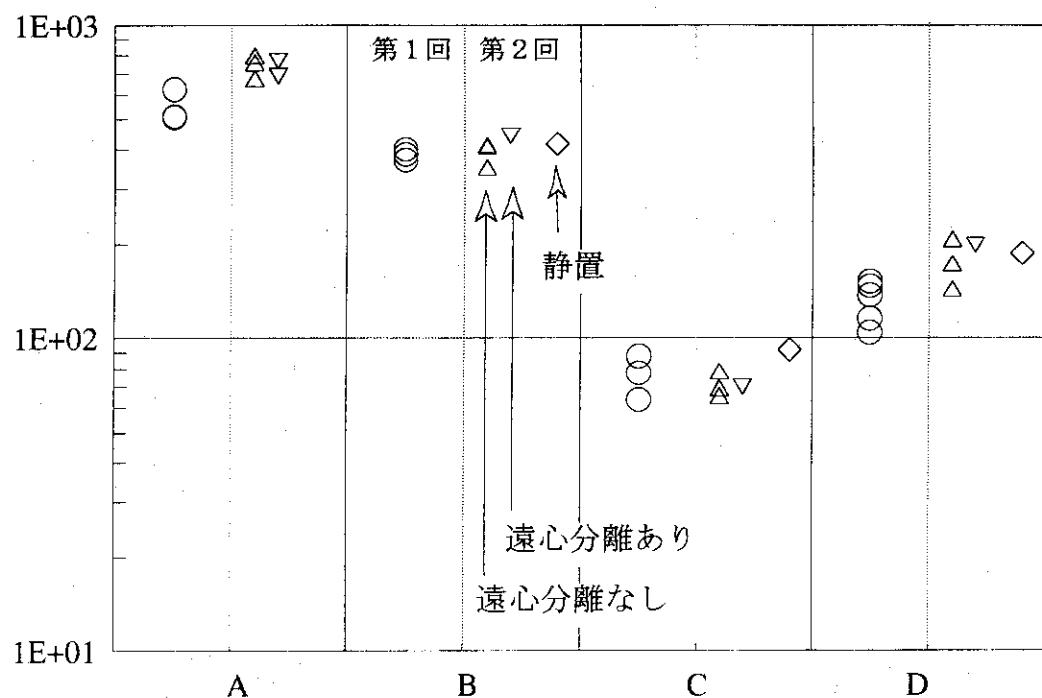


図3.6a 第2回実験におけるKd測定値 (セシウム、黒ボク土)

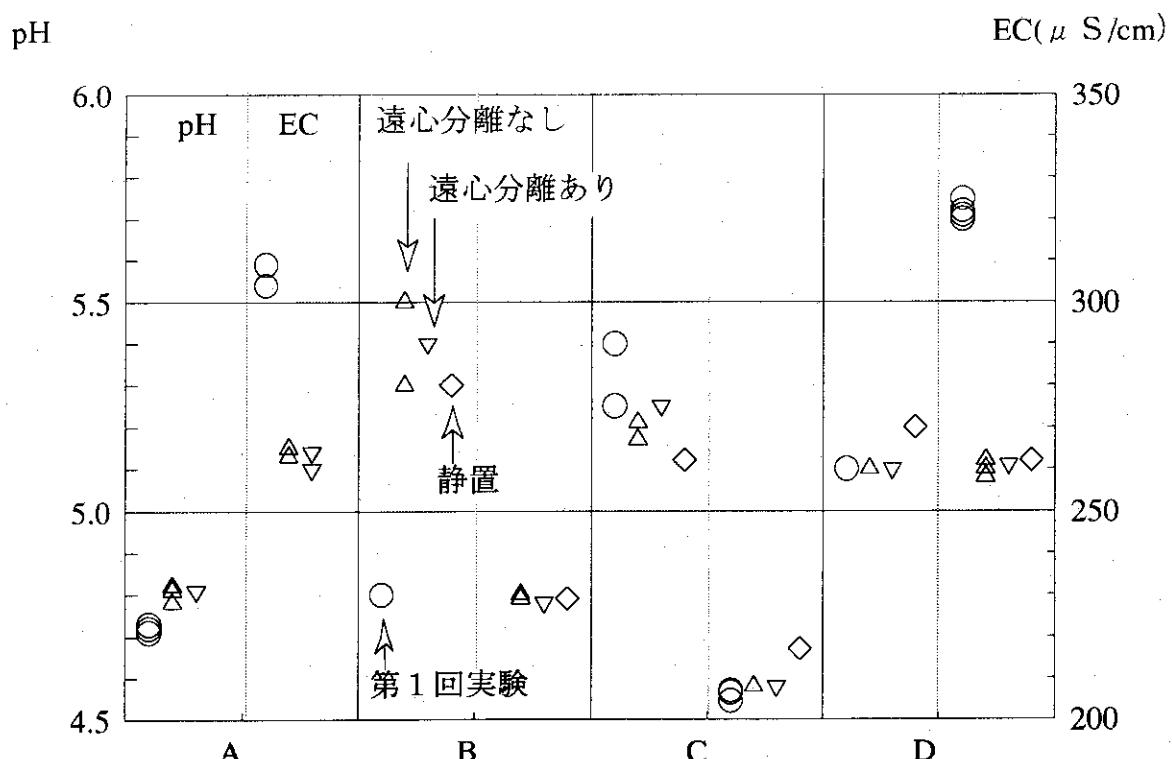


図3.6b pH及びEC測定値 (セシウム、黒ボク土)

から、黒ボク土に関しては液性の影響は少ないと考えられる。また、全体のばらつきもファクタ4程度で比較的小さい。これらは、黒ボク土の緩衝能が比較的高いことによると推察される。第1回実験と同様に、機関Aと機関B、機関Cと機関Dで2つのグループを形成しているが、pH及びEC測定値の傾向はこのようなKd測定値の傾向には対応していない。

## (2) セシウム

豊浦砂：機関A及び機関Bでは第1回実験と同程度の測定値が得られ、機関Cでは若干小さい値が、機関Dでは若干大きな値が得られている。pH、EC測定値はコバルトと同様に機関A及び機関Bにおいても大きく変化していることから、コバルトと異なり液性の差異よりも大きな影響を与える因子が存在していると考えられる。また、機関間の測定値の差異は顕著であり、そのばらつきは2桁に近い。

黒ボク土：コバルトの場合と同様、すべての機関でほぼ第1回実験と同程度の測定値が得られている。全体として1桁近いばらつきが見られる。

このように、同一機関における第1回実験と第2回実験のKd測定値の大きな差異は、pH、EC測定値の差異によって説明することが可能であるが、各機関間の測定値の差異は、pH、EC測定値と対応がとれていない場合が多い。すなわち、液性の差異以外にKd測定値に対して大きな影響を与える変動要因が機関間において存在することが示唆された。また、固液接触における振とうの有無及び過前の遠心分離の有無の影響は、ほとんどの場合明確には認められなかった。

これらの結果に基づき、各機関間のKd測定値の差異の要因について検討した結果、主な変動要因とは考え難い事項として以下の事項があげられた。

### ・容器やフィルタへの核種の吸着の差異

ブランクの測定値に機関による差がないことから、容器やフィルタ等への吸着量の差異の影響は無視できると考えられる。

### ・振とうによる土壤粒子及び粒子表面の有機物質の破壊の程度の差異

振とうは各機関ともゆるやか(50回/分)に行っていることや、振とうを行わない実験においても機関による差異が認められることから、振とうによる土壤粒子の破壊や、土壤粒子表面を覆っている有機物質の破壊の差異の影響はほとんどないと考えられる。

### ・振とう時の温度による微生物活性の差異

固液接触時の温度は15°Cと低く安定しており、振とう操作にも違いが認められないで、微生物の影響は考え難い。特に豊浦砂では微生物の活性は無視できると思われる。

また、主な変動要因として可能性のある事項として以下の項目があげられた。

### ・RI溶液の作成方法の差異

第2回実験ではRI溶液の作成方法を定義したが、各機関の都合により機関Dを除き正確には実施されなかった。液性の指標であるpH、EC測定値とKd測定値の傾向に対応は見られないが、何らかの影響を及ぼしていることも考えられる。以下に各機関のRI溶液の作成方法を示す。

A : 0.1 N HClで10倍希釀した溶液をイオン交換水で2倍に再度希釀した50 kBq/ml溶液を0.06 ml 使用した。

B : 蒸留水で希釀した5 kBq/ml溶液(1/10濃度)を0.6 mlを使用した。

C : イオン交換水で希釀した5 kBq/ml溶液(1/10濃度)を0.6 mlを使用した。

D：イオン交換水で20倍希釈した50kBq/ml溶液を0.06ml使用した。

#### ・土壤試料の鉱物組成の不均一性や輸送及び保管の状態の差異

土壤試料は1機関より配布したため、本来その組成は均一であると考えられるが、若干のばらつきは生じている可能性があり、特に豊浦砂においては吸着性の高い鉱物の含有量の差異がKd測定値に影響を与えていた可能性がある。また、黒ボク土においては、輸送や保管の状態により性質が変化する可能性も考えられる。

#### ・実験機材の差異

第2回実験では土壤試料及び溶媒については1機関が作成して配布することにより統一を図ったが、その他の実験機材は各機関が従来から使用していたものを実験に供している。このため、これらの差異が測定値に何らかの影響を与えていた可能性がある。

これらの変動要因の影響について、第3回～第5回実験で確認を行った。

### 4. 第3回実験 －土壤試料の不均一性に関する評価－

#### 4.1 実験方法

第3回実験では、土壤試料の鉱物組成の不均一性や輸送及び保管の状態の差異等、土壤試料の性質の差異による影響を確認するため、各機関に配布した土壤試料を回収し、それぞれを4分割して、再度各機関に配布することにより、土壤試料のクロスチェックを試みた。実験方法は第2回と同じであるが、ろ過前の遠心分離の影響はほとんど見られなかったので、遠心分離は行わないこととした。

#### 4.2 実験結果及び考察

得られたKd測定値を図4.1～図4.4に示す。いずれの機関においても、再配布した土壤試料間の測定値の差異は小さく、各機関毎には比較的安定した値が得られている。また、各機関の測定値は、それぞれの機関の第2回実験における測定値とほぼ同様の結果となっている。よって、土壤試料の鉱物組成の不均一性や輸送及び保管の状態の差異等の影響は小さいと考えられる。

### 5. 第4回実験 －実験機材の差異に関する評価－

#### 5.1 実験方法

第4回実験では、実験機材の差異の影響を確認するため、土壤試料及び溶媒に加え、実験に使用する機材一式を統一した実験を行うこととした。このため、機関Dで使用している実験機材一式を各機関に配布して実験を実施した。配布した実験機材を表5.1に示す。実験方法は第3回実験と全く同様である。

#### 5.2 実験結果及び考察

得られたKd測定値を、第2回実験の結果と併せて図5.1～図5.4に示す。各機関間の全体的なばらつきは小さくなり、これまでの実験結果に比べて比較的近い値が得られている。すなわち、機関Aと機関Bの測定値は第3回実験までの測定値に比べて小さく、機関Cと機関Dに近い測定値が得られている。また、実験機材の配布元である機関Dでは第3回実験までの測定値と

D：イオン交換水で20倍希釈した50kBq/ml溶液を0.06ml使用した。

#### ・土壤試料の鉱物組成の不均一性や輸送及び保管の状態の差異

土壤試料は1機関より配布したため、本来その組成は均一であると考えられるが、若干のばらつきは生じている可能性があり、特に豊浦砂においては吸着性の高い鉱物の含有量の差異がKd測定値に影響を与えていた可能性がある。また、黒ボク土においては、輸送や保管の状態により性質が変化する可能性も考えられる。

#### ・実験機材の差異

第2回実験では土壤試料及び溶媒については1機関が作成して配布することにより統一を図ったが、その他の実験機材は各機関が従来から使用していたものを実験に供している。このため、これらの差異が測定値に何らかの影響を与えていた可能性がある。

これらの変動要因の影響について、第3回～第5回実験で確認を行った。

### 4. 第3回実験 －土壤試料の不均一性に関する評価－

#### 4.1 実験方法

第3回実験では、土壤試料の鉱物組成の不均一性や輸送及び保管の状態の差異等、土壤試料の性質の差異による影響を確認するため、各機関に配布した土壤試料を回収し、それぞれを4分割して、再度各機関に配布することにより、土壤試料のクロスチェックを試みた。実験方法は第2回と同じであるが、ろ過前の遠心分離の影響はほとんど見られなかったので、遠心分離は行わないこととした。

#### 4.2 実験結果及び考察

得られたKd測定値を図4.1～図4.4に示す。いずれの機関においても、再配布した土壤試料間の測定値の差異は小さく、各機関毎には比較的安定した値が得られている。また、各機関の測定値は、それぞれの機関の第2回実験における測定値とほぼ同様の結果となっている。よって、土壤試料の鉱物組成の不均一性や輸送及び保管の状態の差異等の影響は小さいと考えられる。

### 5. 第4回実験 －実験機材の差異に関する評価－

#### 5.1 実験方法

第4回実験では、実験機材の差異の影響を確認するため、土壤試料及び溶媒に加え、実験に使用する機材一式を統一した実験を行うこととした。このため、機関Dで使用している実験機材一式を各機関に配布して実験を実施した。配布した実験機材を表5.1に示す。実験方法は第3回実験と全く同様である。

#### 5.2 実験結果及び考察

得られたKd測定値を、第2回実験の結果と併せて図5.1～図5.4に示す。各機関間の全体的なばらつきは小さくなり、これまでの実験結果に比べて比較的近い値が得られている。すなわち、機関Aと機関Bの測定値は第3回実験までの測定値に比べて小さく、機関Cと機関Dに近い測定値が得られている。また、実験機材の配布元である機関Dでは第3回実験までの測定値と

D：イオン交換水で20倍希釈した50kBq/ml溶液を0.06ml使用した。

#### ・土壤試料の鉱物組成の不均一性や輸送及び保管の状態の差異

土壤試料は1機関より配布したため、本来その組成は均一であると考えられるが、若干のばらつきは生じている可能性があり、特に豊浦砂においては吸着性の高い鉱物の含有量の差異がKd測定値に影響を与えていた可能性がある。また、黒ボク土においては、輸送や保管の状態により性質が変化する可能性も考えられる。

#### ・実験機材の差異

第2回実験では土壤試料及び溶媒については1機関が作成して配布することにより統一を図ったが、その他の実験機材は各機関が従来から使用していたものを実験に供している。このため、これらの差異が測定値に何らかの影響を与えていた可能性がある。

これらの変動要因の影響について、第3回～第5回実験で確認を行った。

### 4. 第3回実験 －土壤試料の不均一性に関する評価－

#### 4.1 実験方法

第3回実験では、土壤試料の鉱物組成の不均一性や輸送及び保管の状態の差異等、土壤試料の性質の差異による影響を確認するため、各機関に配布した土壤試料を回収し、それぞれを4分割して、再度各機関に配布することにより、土壤試料のクロスチェックを試みた。実験方法は第2回と同じであるが、ろ過前の遠心分離の影響はほとんど見られなかったので、遠心分離は行わないこととした。

#### 4.2 実験結果及び考察

得られたKd測定値を図4.1～図4.4に示す。いずれの機関においても、再配布した土壤試料間の測定値の差異は小さく、各機関毎には比較的安定した値が得られている。また、各機関の測定値は、それぞれの機関の第2回実験における測定値とほぼ同様の結果となっている。よって、土壤試料の鉱物組成の不均一性や輸送及び保管の状態の差異等の影響は小さいと考えられる。

### 5. 第4回実験 －実験機材の差異に関する評価－

#### 5.1 実験方法

第4回実験では、実験機材の差異の影響を確認するため、土壤試料及び溶媒に加え、実験に使用する機材一式を統一した実験を行うこととした。このため、機関Dで使用している実験機材一式を各機関に配布して実験を実施した。配布した実験機材を表5.1に示す。実験方法は第3回実験と全く同様である。

#### 5.2 実験結果及び考察

得られたKd測定値を、第2回実験の結果と併せて図5.1～図5.4に示す。各機関間の全体的なばらつきは小さくなり、これまでの実験結果に比べて比較的近い値が得られている。すなわち、機関Aと機関Bの測定値は第3回実験までの測定値に比べて小さく、機関Cと機関Dに近い測定値が得られている。また、実験機材の配布元である機関Dでは第3回実験までの測定値と

Kd測定値 (ml/g)

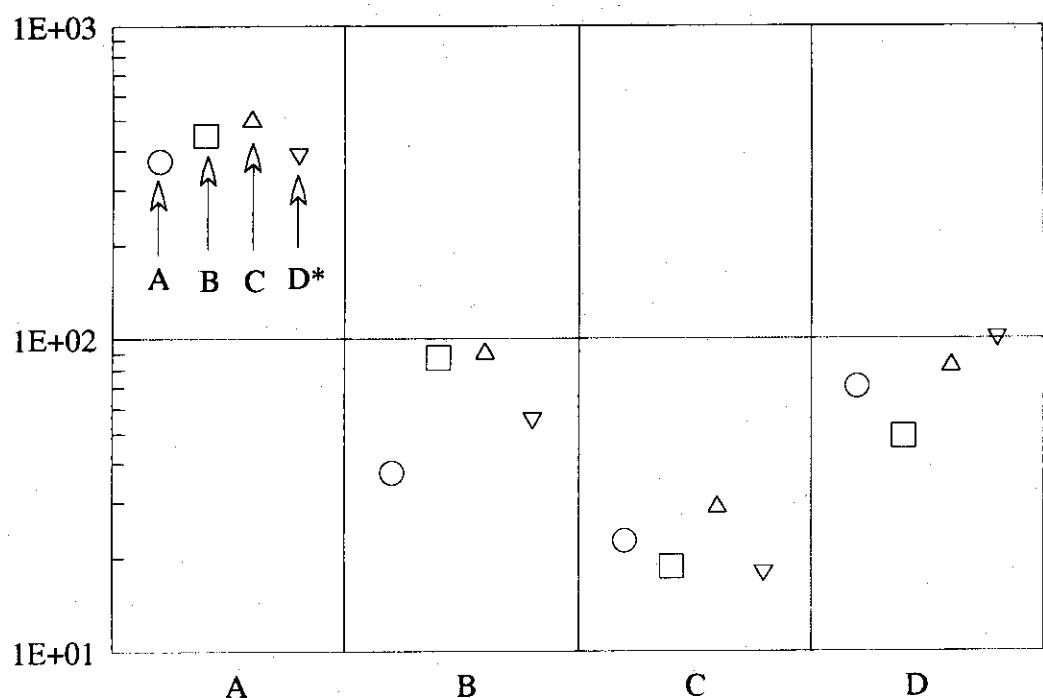


図4.1 第3回実験におけるKd測定値（コバルト、豊浦砂）  
(例：\*は機関Dから回収された試料の機関Aによる測定値)

Kd測定値 (ml/g)

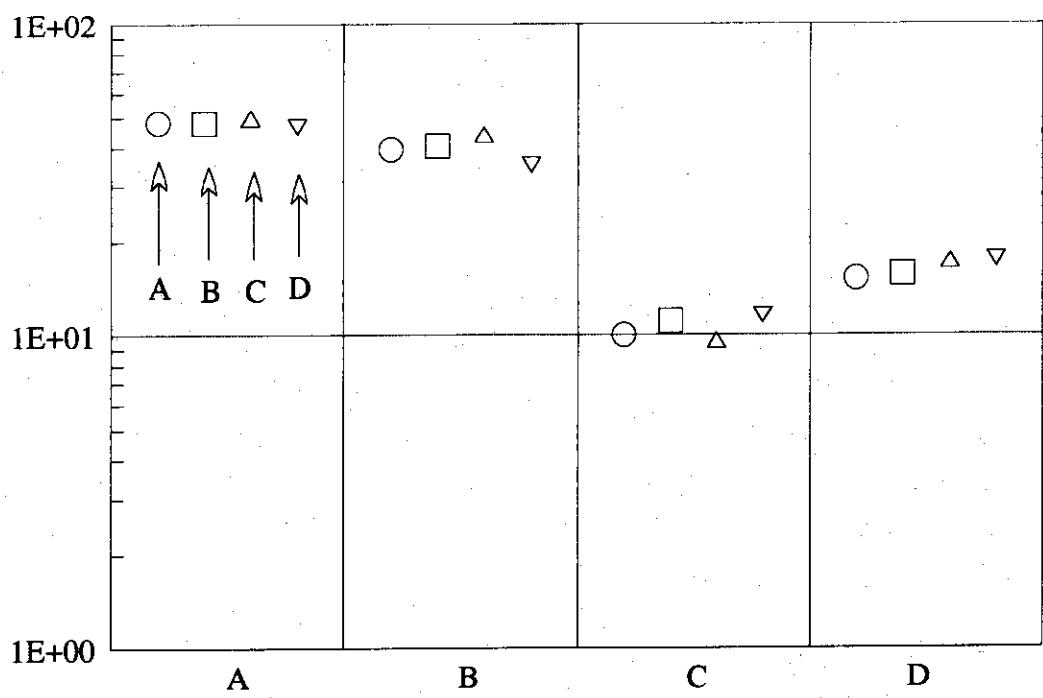


図4.2 第3回実験におけるKd測定値（コバルト、黒ボク土）

Kd測定値 (ml/g)

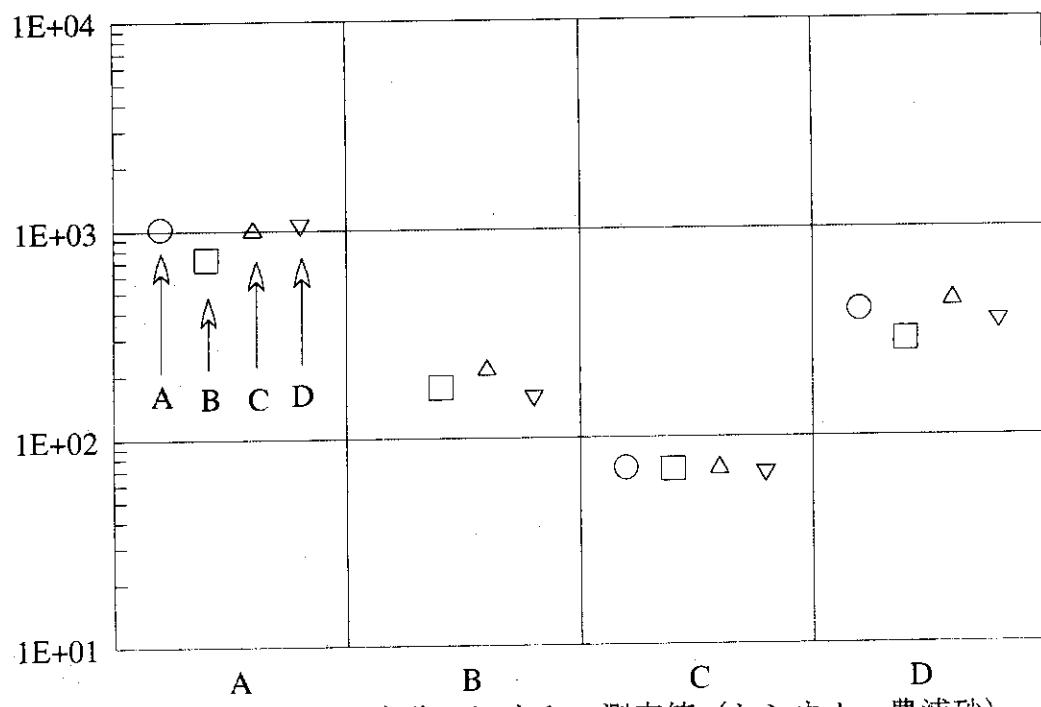


図4.3 第3回実験におけるKd測定値 (セシウム、豊浦砂)

Kd測定値(ml/g)

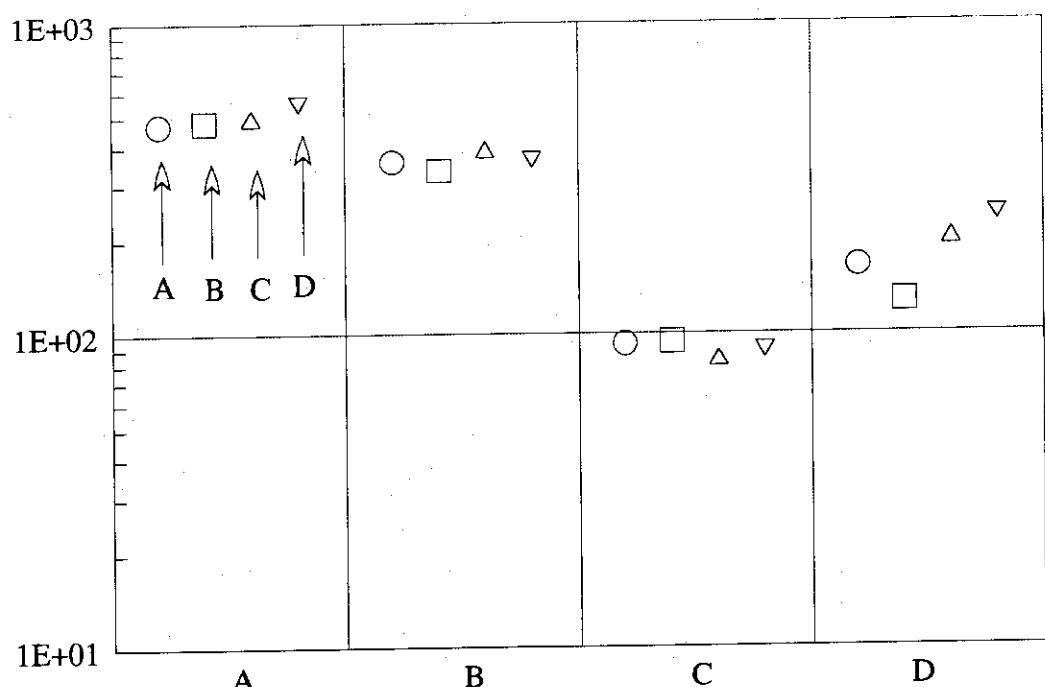


図4.4 第3回実験におけるKd測定値 (セシウム、黒ボク土)

Kd測定値 (ml/g)

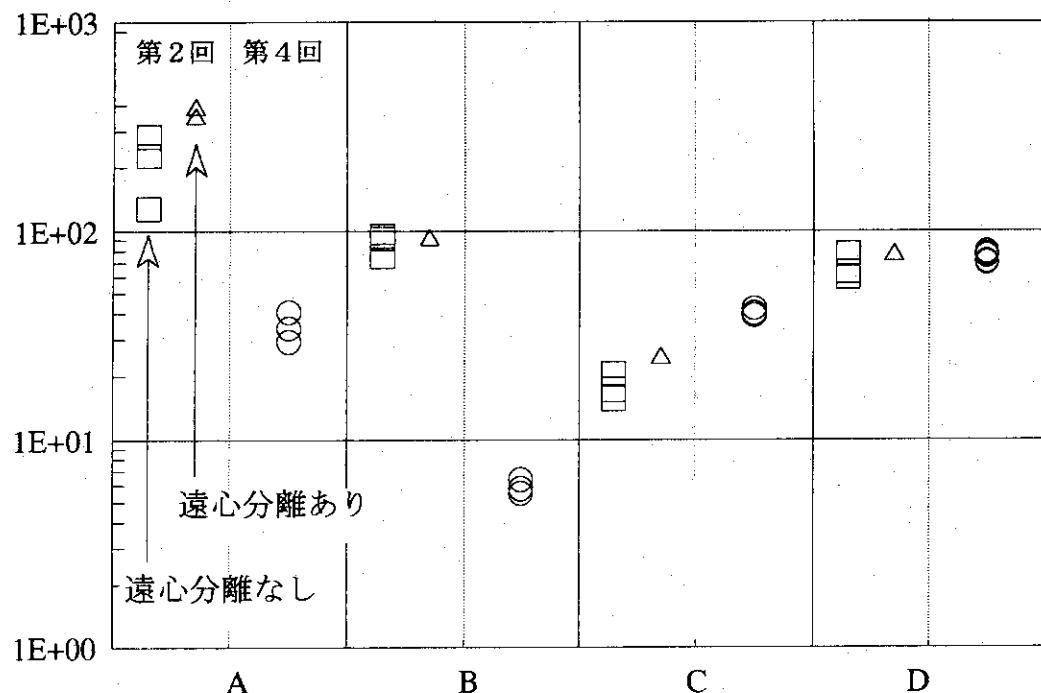


図5.1 第4回実験におけるKd測定値 (コバルト、豊浦砂)

Kd測定値 (ml/g)

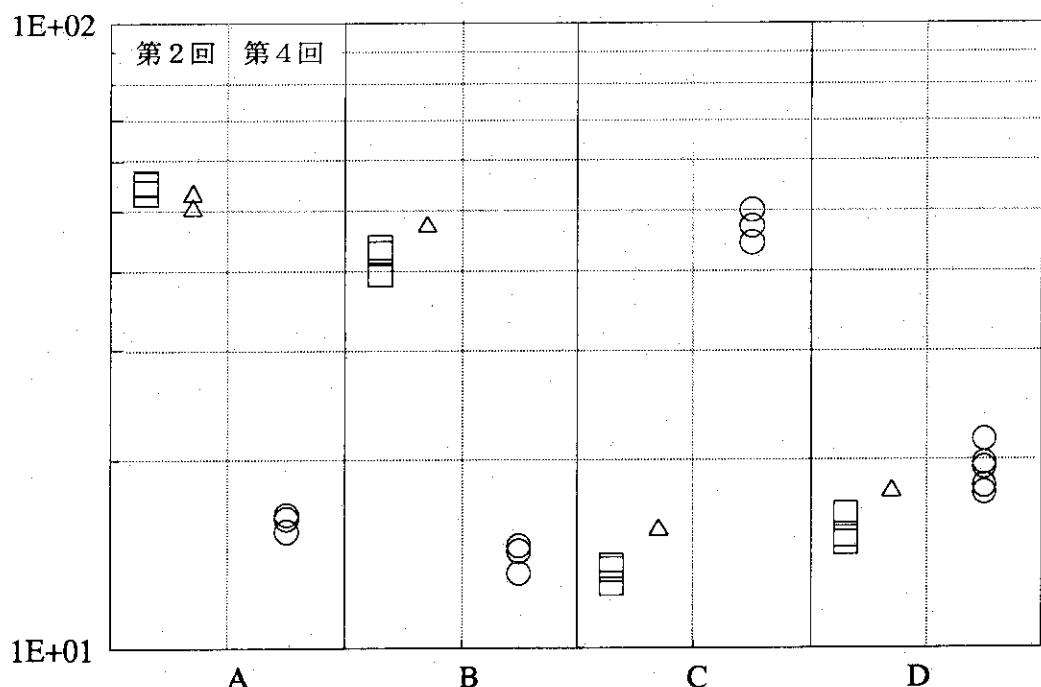


図5.2 第4回実験におけるKd測定値 (コバルト、黒ボク土)

Kd測定値 (ml/g)

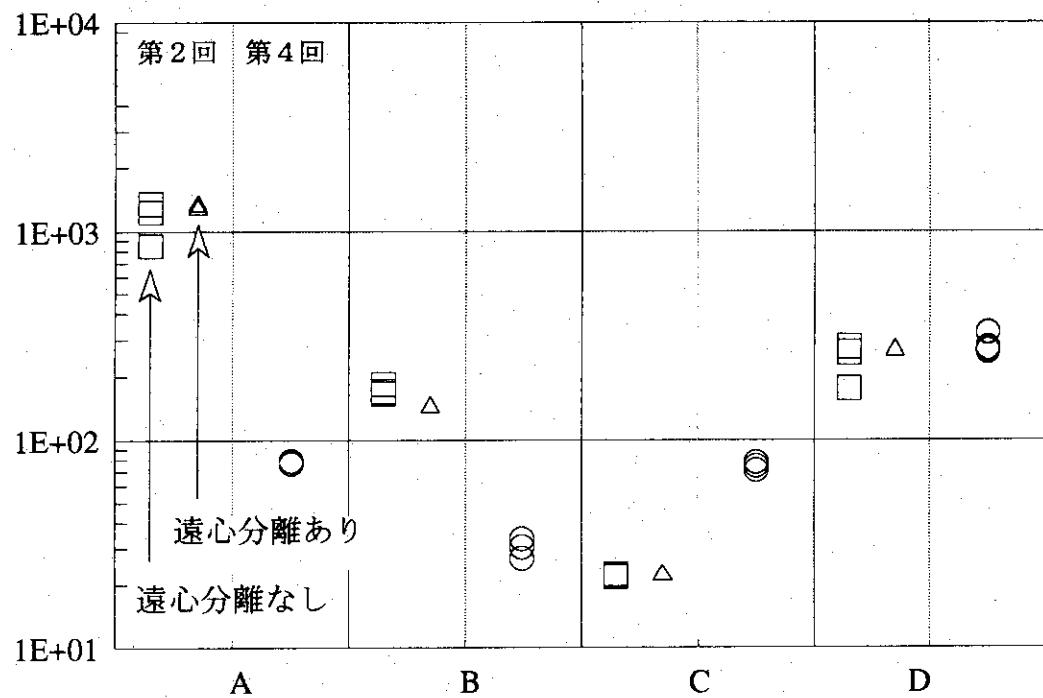


図5.3 第4回実験におけるKd測定値 (セシウム、豊浦砂)

Kd測定値 (ml/g)

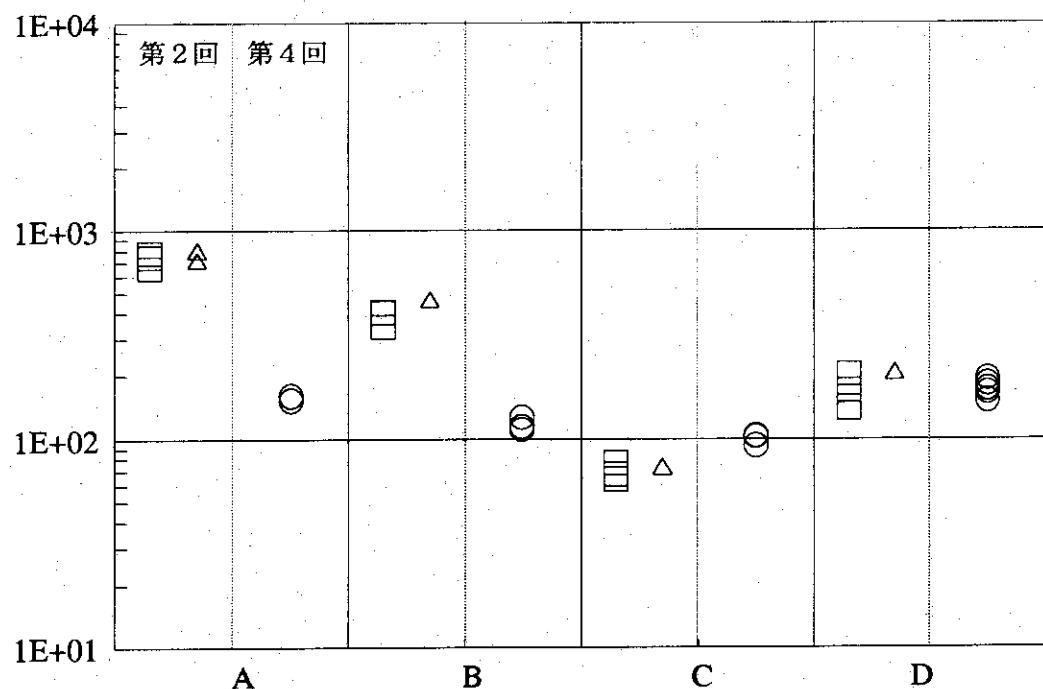


図5.4 第4回実験におけるKd測定値 (セシウム、黒ボク土)

表 5.1 第4回実験において配布した実験機材

配布機材	数量
エッペンドルフピペット (0.1ml、1.0ml、5.0ml)	各1本
ピペット用チップ (0.1ml、1.0ml、5.0ml)	各50本
ポリプロピレン製遠沈管	50本
試験管立て	1個
テルモマイクロシリソジ	50本
液シンバイアル	50本
ミリポアフィルター	100個
土壤試料 (豊浦砂、黒ボク土)	各1瓶
溶媒 ( $10^{-3}$ mol/l CaCl <sub>2</sub> 溶液)	2000ml

ほぼ同様の値が得られている。

この結果から、これまでの測定値に見られた機関間の差異は、実験に使用された機材の差異によってもたらされた可能性が高いことが推察された。このため、各機関が使用している実験機材について再チェックを行った。その結果、実験容器について、材質は全てポリプロピレン製であるが、機関Aと機関Bは底面積が比較的大きい瓶型の容器を用いたのに対し、機関Cは底面積が比較的小さい瓶型の容器、機関Dは底面積が比較的小さい遠沈管型の容器を用いていたことが明らかとなった。第3回実験までのKd測定値は、機関Aと機関B、機関Cと機関Dの2つのグループに分かれる傾向が見られたことから、実験に用いる容器の形状の差異がKd測定値に大きな影響を与える可能性が示唆された。このような検討の結果、容器形状や振とう方法の差異等に起因するKd測定値の差異について確認するため、1機関による第5回実験を実施した。

## 6. 第5回実験 -変動要因の詳細な検討-

### 6.1 容器の差異の影響

第4回実験において明らかとなった容器形状の差異等による測定値の影響についてさらに詳細に検討するため、1つの機関（機関D）において、同一の条件（実験者、実験機材等）により、各機関で使用している容器のクロスチェックを行った。また、容器の材質による違いについても同様の方法でチェックを実施した。使用した容器は、第1回から第3回実験において各機関が使用したポリプロピレン容器（A～D）、及びポリエチレン（P）、ガラス（パイレックス：G）、ポリカーボネート（PC）の遠沈管であり、第4回実験と同様の条件でKdの比較実験を行った。それぞれの容器の形状を写6.1及び写6.2に示す。また、各容器の仕様を表6.1に示す。実験に用いる土壤試料は黒ボク土のみとした。なお、機関Aでは容器の表面処理として1N硝酸による浸漬を行った後実験に供していることから、全ての容器について、硝酸浸漬処理を行った容器と蒸留水での洗浄のみを行った容器を使用し、表面処理の有無によるKd測定値の

表 5.1 第4回実験において配布した実験機材

配布機材	数量
エッペンドルフピペット (0.1ml、1.0ml、5.0ml)	各1本
ピペット用チップ (0.1ml、1.0ml、5.0ml)	各50本
ポリプロピレン製遠沈管	50本
試験管立て	1個
テルモマイクロシリソジ	50本
液シンバイアル	50本
ミリポアフィルター	100個
土壤試料 (豊浦砂、黒ボク土)	各1瓶
溶媒 ( $10^{-3}$ mol/l CaCl <sub>2</sub> 溶液)	2000ml

ほぼ同様の値が得られている。

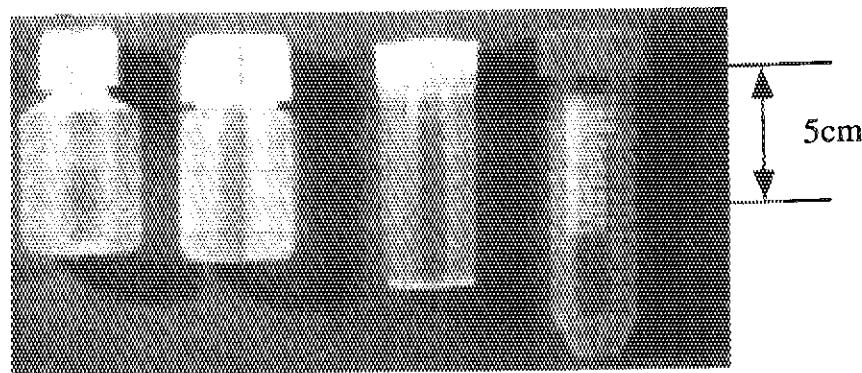
この結果から、これまでの測定値に見られた機関間の差異は、実験に使用された機材の差異によってもたらされた可能性が高いことが推察された。このため、各機関が使用している実験機材について再チェックを行った。その結果、実験容器について、材質は全てポリプロピレン製であるが、機関Aと機関Bは底面積が比較的大きい瓶型の容器を用いたのに対し、機関Cは底面積が比較的小さい瓶型の容器、機関Dは底面積が比較的小さい遠沈管型の容器を用いていたことが明らかとなった。第3回実験までのKd測定値は、機関Aと機関B、機関Cと機関Dの2つのグループに分かれる傾向が見られたことから、実験に用いる容器の形状の差異がKd測定値に大きな影響を与える可能性が示唆された。このような検討の結果、容器形状や振とう方法の差異等に起因するKd測定値の差異について確認するため、1機関による第5回実験を実施した。

## 6. 第5回実験 一変動要因の詳細な検討一

### 6.1 容器の差異の影響

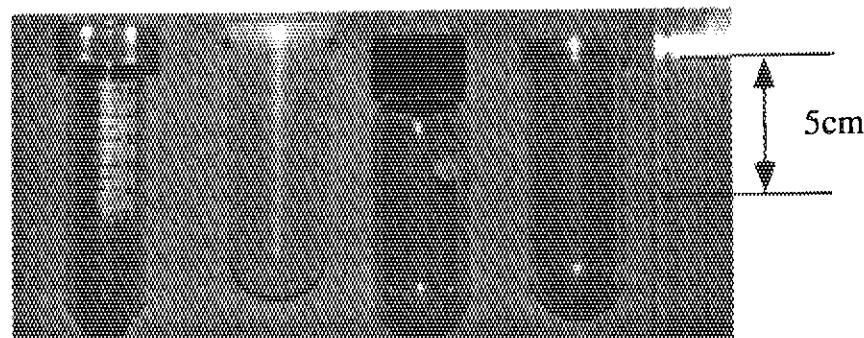
第4回実験において明らかとなった容器形状の差異等による測定値の影響についてさらに詳細に検討するため、1つの機関（機関D）において、同一の条件（実験者、実験機材等）により、各機関で使用している容器のクロスチェックを行った。また、容器の材質による違いについても同様の方法でチェックを実施した。使用した容器は、第1回から第3回実験において各機関が使用したポリプロピレン容器（A～D）、及びポリエチレン（P）、ガラス（パイレックス：G）、ポリカーボネート（PC）の遠沈管であり、第4回実験と同様の条件でKdの比較実験を行った。それぞれの容器の形状を写6.1及び写6.2に示す。また、各容器の仕様を表6.1に示す。実験に用いる土壤試料は黒ボク土のみとした。なお、機関Aでは容器の表面処理として1N硝酸による浸漬を行った後実験に供していることから、全ての容器について、硝酸浸漬処理を行った容器と蒸留水での洗浄のみを行った容器を使用し、表面処理の有無によるKd測定値の

機関 A 機関 B 機関 C 機関 D



写6.1 各機関が使用した試験容器

PP P G PC



- |    |                         |
|----|-------------------------|
| PP | : ポリプロピレン (写6.1の機関Dの容器) |
| P  | : ポリエチレン                |
| G  | : ガラス (パイレックス)          |
| PC | : ポリカーボネート              |

写6.2 材質の異なる試験容器 (遠沈管)

表 6.1 各容器の仕様

容器記号	形状	寸法	仕様	
A	瓶型 平底	40mm φ × 72mmH	材質	ポリプロピレン
			品名	アイボーアイ細口瓶(50ml)
			コードNo.	井内盛栄堂 45-001-01
B	瓶型 平底	40mm φ × 75mmH	材質	ポリプロピレン
			品名	アイボーアイ広口瓶(50ml)
			コードNo.	井内盛栄堂 45-002-01
C	瓶型 平底	34mm φ × 77mmH	材質	ポリプロピレン
			品名	マルエム容器(50ml)
			コードNo.	マルエム 020407
D	遠沈管型 丸底	29mm φ × 115mmH	材質	ポリプロピレン
			品名	遠沈管(50ml)
			コードNo.	岩城硝子 2330-050
P	遠沈管型 丸底	35mm φ × 97mmH	材質	ポリエチレン
			品名	遠沈管(50ml)
			コードNo.	国産遠心器 PET
G	遠沈管型 丸底	35mm φ × 105mmH	材質	ガラス
			品名	遠沈管(50ml)
			コードNo.	岩城硝子 8422CTF
PG	遠沈管型 丸底	34mm φ × 100mmH	材質	ポリカーボネート
			品名	遠沈管(50ml)
			コードNo.	国産遠心器 PCF-010

影響についても確認した。

各容器を用いて得られたKd測定値を図6.1～図6.2に示す。まず各機関の容器(A～D)について比較すると、第3回実験までの結果と同様に、コバルト及びセシウムの両核種ともに機関Aと機関Bの容器による測定値が比較的高く、機関Cと機関Dの容器による測定値は低い傾向が見られる。このように、容器の差異によりKd測定値が異なることから、容器材質は同じであっても、容器の表面状態の差異や形状の差異等が測定値に影響している可能性が示唆された。

また、他の材質の容器を用いた場合(P、G、PC)の測定値は、機関Cと機関Dの容器の測定値とほぼ同じ値を示している。これは、これらの容器の形状(遠沈管)が、機関C及び機関Dの容器とほぼ同じであるためと考えられる。すなわち、容器材質の差異は、容器形状の差異に比して影響が小さいことが推察される。なお、容器の洗浄の影響については、いずれの容器においても測定値はほとんど変わらず、表面処理による影響はほとんどないことが確認された。

次に、容器形状と測定値の関係を定量的に把握することを目的とし、土壤及び溶液の量を変化させず、容量すなわち底面積の異なるガラス容器を用いて同様の実験を行った。得られた測定値を図6.3～図6.4に示す。容量が大きくなるほど測定値は大きくなり、容量が200ml程度以上の容器でほぼ平衡に達している。このことから、同じ振とう条件であっても、底面積の差異、すなわち土壤及び溶液の高さの差異によって、容器内の振とうの状況が異なり、測定値に影響を与えたと考えられる。これらのことから、第3回実験までの測定値の差異は、各機関が用いた容器の底面積の差異、すなわち容器形状による振とう状況の差異に起因すると推察される。

## 6.2 振とう方法の影響

振とう状況の差異による測定値の差異について更に検討するため、前項で示した7種類の容器について、振とう器による実験とハンドシェイクによる実験を行って測定値を比較した。ハンドシェイクを行うサンプルは、振とう器による振とうに加え、1日1回のハンドシェイクを実施することとした。両者に違いがあれば、振とう器による振とうのみでは、溶液中の状態が真の平衡状態に達していないことが考えられる。

得られた測定値を図6.5～図6.6に示す。いずれの容器においても、ハンドシェイクを行った場合の測定値は、往復振とうのみによる測定値に比して明らかに高く、容器の種類によらず安定した値が得られている。また、その測定値は、図6.3～図6.4において、容器の底面積が比較的大きい場合の測定値に近い値となっている。したがって、振とう器による実験では、土壤試料と溶液が完全に混合された真の平衡状態の測定値ではなく、土壤表面と溶液の静的な見かけの平衡状態においての測定値が得られているものと推察される。

## 6.3 容器への付着の影響

核種の容器への付着によるKd測定値への影響を評価するため、 $10^{-3}$ mol/l CaCl<sub>2</sub>溶液の他に、蒸留水、イオン交換水、土壤抽出水(固液比が10の状態で浸漬した土壤抽出水を0.45ミクロンのフィルタで濾過した溶液)を用いてブランクテストを行った。その結果、いずれの溶液においても、溶液中の核種濃度の変化はほとんど見られない。すなわち、容器に付着する核種量は極めて少ないと考えられる。また、実験終了後、容器内の水と土壤を蒸留水で数回洗浄し、容器壁に付着した核種の濃度をGe検出器で測定したが、容器にはほとんど付着していないことを確認した。なお、多少土壤が付着した容器については容器壁から核種が検出されたが、その場

Kd測定値 (ml/g)

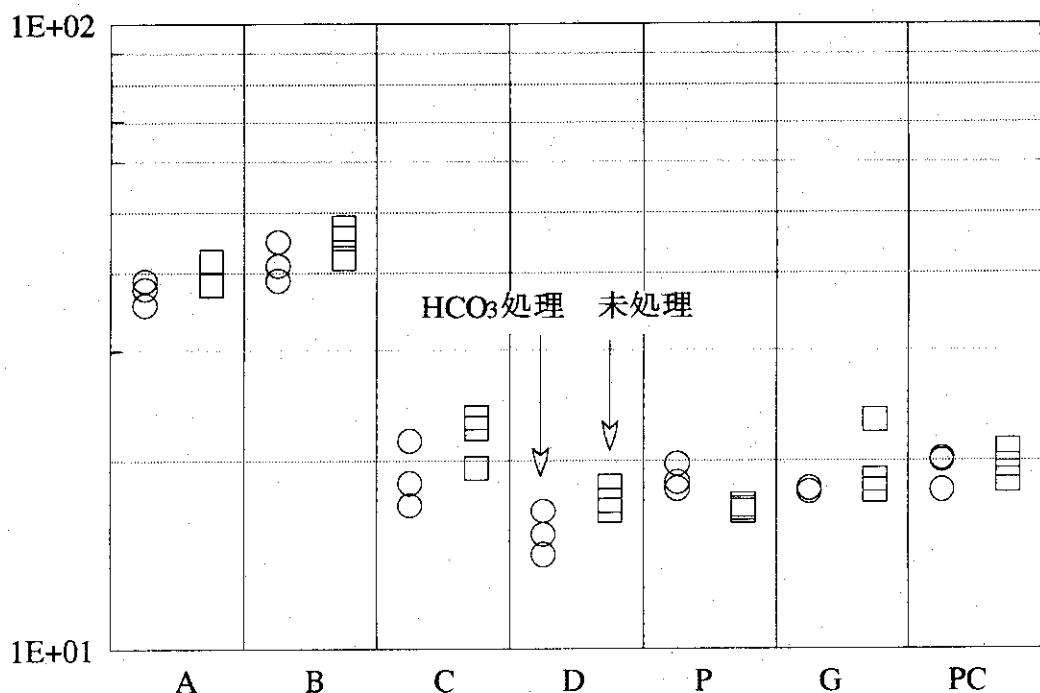


図6.1 容器形状、材質及び表面処理の差異による影響（コバルト）

Kd測定値 (ml/g)

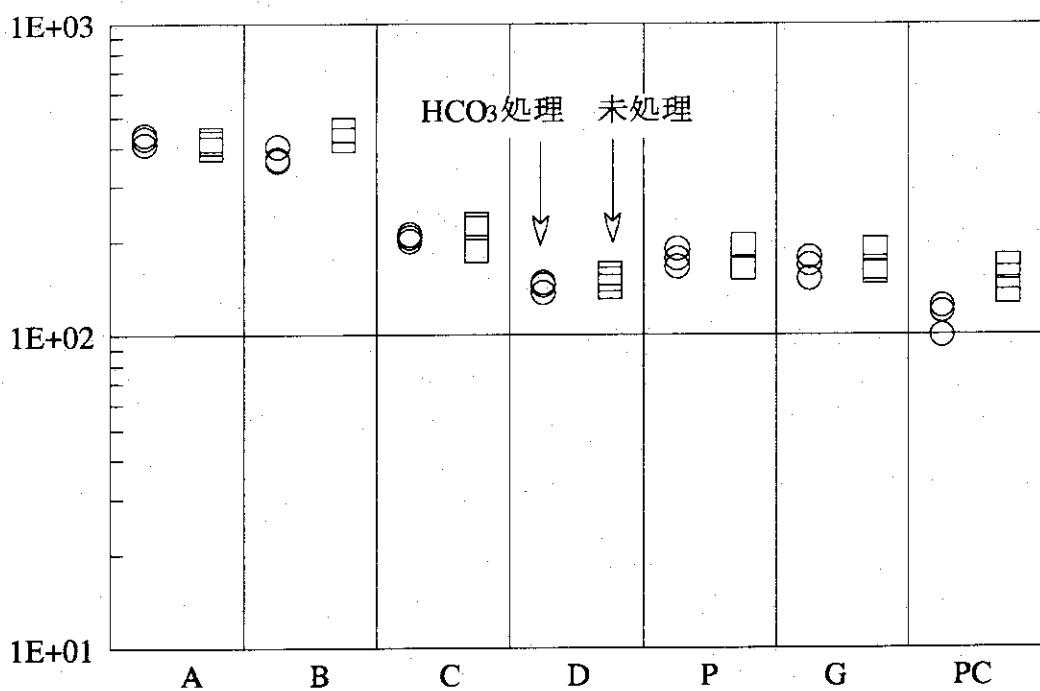


図6.2 容器形状、材質及び表面処理の差異による影響（セシウム）

Kd 測定値(ml/g)

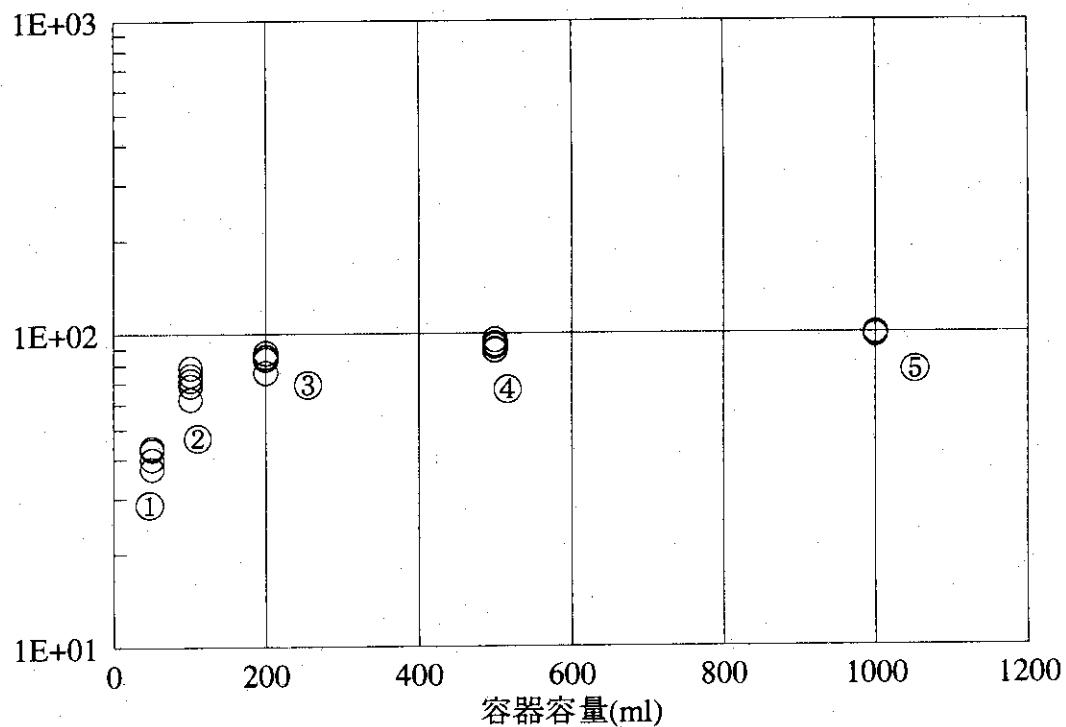


図6.3 容器容量の差異による影響 (コバルト)

(容器内径 : ① 40mm, ② 50mm, ③ 63.5mm, ④ 79.2mm, ⑤ 99mm)

Kd 測定値(ml/g)

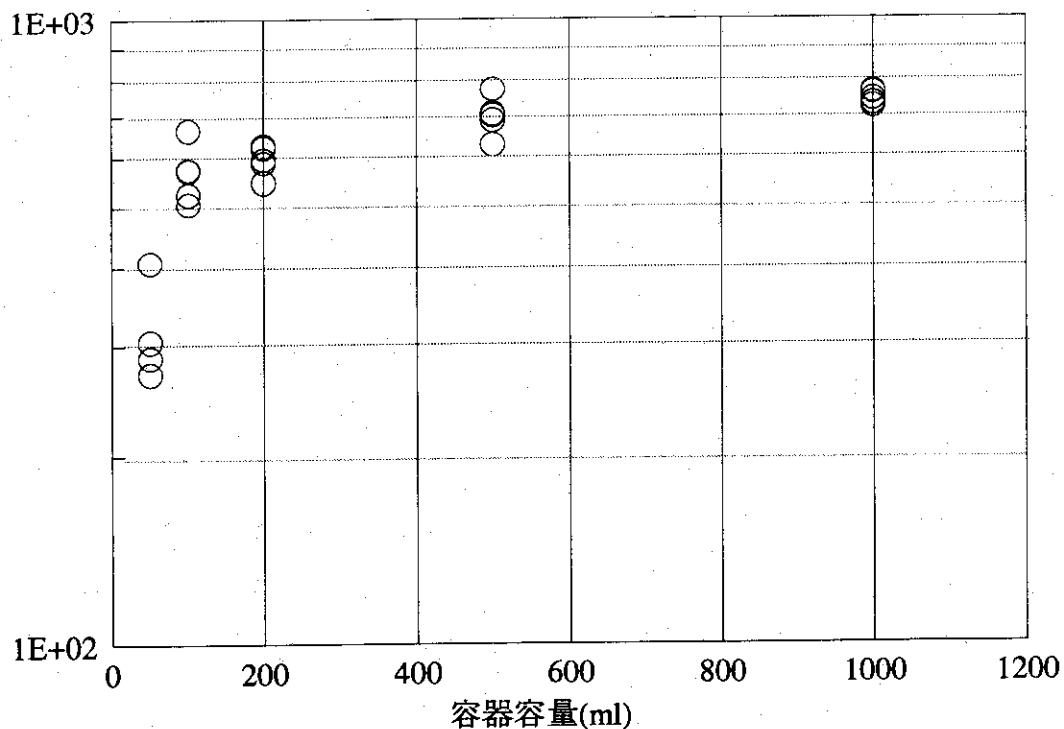


図6.4 容器容量の差異による影響 (セシウム)

Kd測定値 (ml/g)

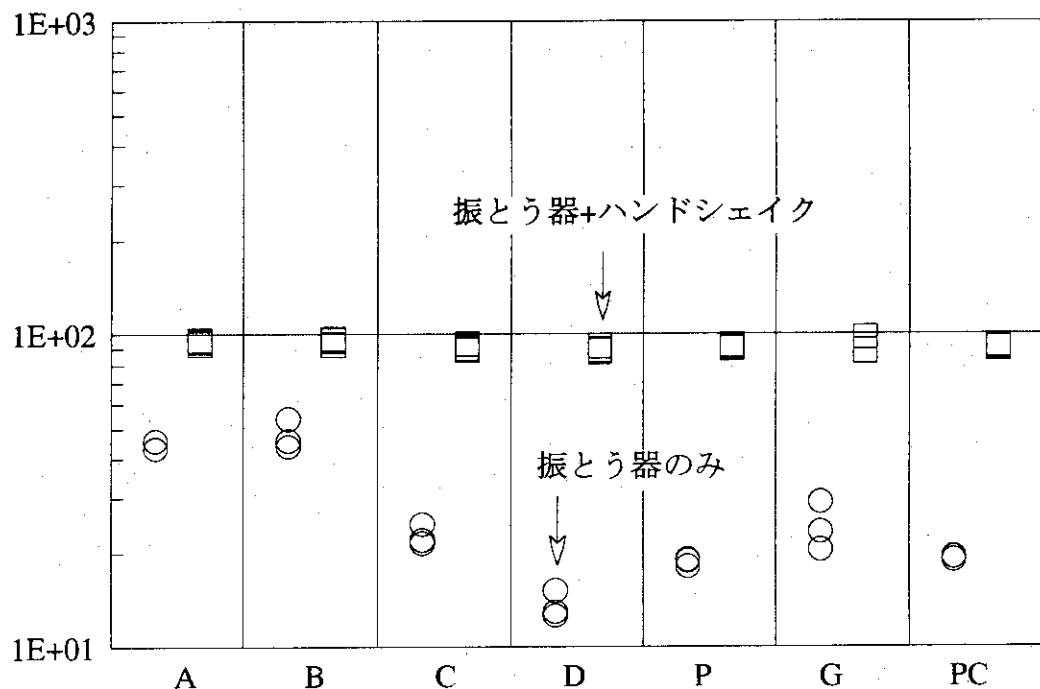


図6.5 振とう方法の差異による影響 (コバルト)

Kd測定値 (ml/g)

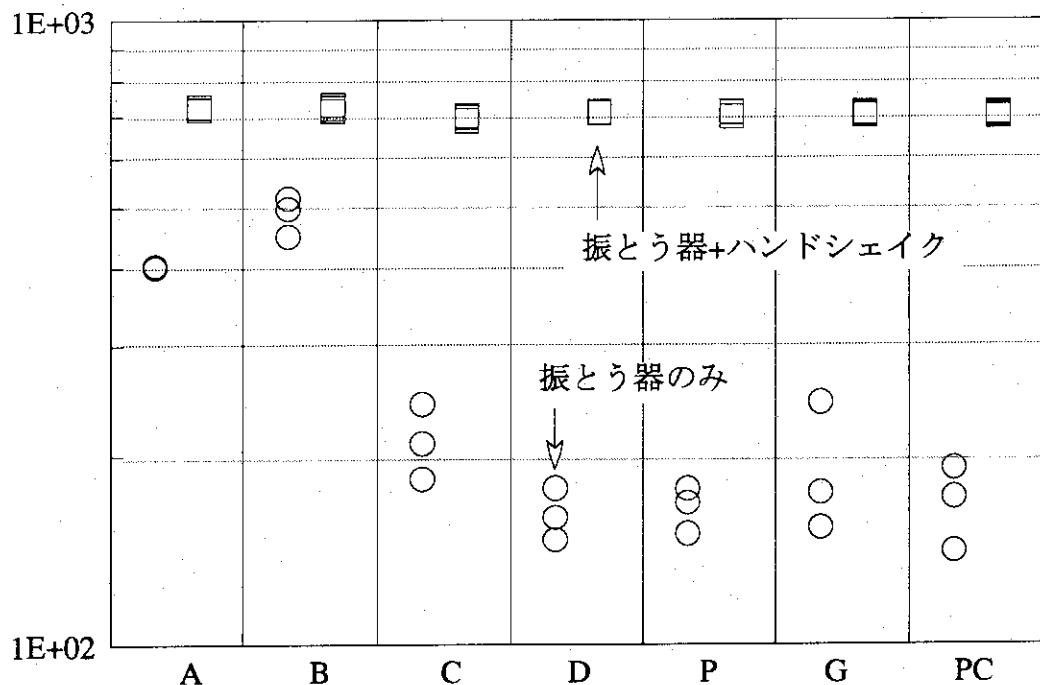


図6.6 振とう方法の差異による影響 (セシウム)

合においても核種濃度は非常に小さく、測定値に影響を与える程度の付着は見られなかった。

Kd測定値のばらつきの大きさから考えると、各機関の溶液中の核種濃度の差は2倍程度あるため、その差異が核種の容器への付着の影響によるならば、容器へ付着した核種の濃度は大きいはずである。しかし、容器への付着量はいずれの場合も極めて小さい値しか得られていない。したがって、今回の実験系においては、容器への付着の影響はほとんど無いものと考えられる。

## 7. 結論

### 7.1 本研究の成果

本研究における一連の実験において、Kd測定値に対する変動要因は、その影響の大きさにより以下の3種類に分類し得る。

#### (1)ほとんどの場合大きな影響を与える要因

- ・RI溶液の液性
- ・容器形状（底面積）
- ・振とう方法（ハンドシェイクと振とう器）

#### (2)若干の影響を与える場合がある要因

- ・温度

#### (3)ほとんど影響を与えない要因

- ・RI初期濃度（液性の変化の影響を除く）
- ・ろ過操作
- ・遠心分離
- ・土壤試料間差（同一試料を用いた場合）
- ・容器表面処理
- ・容器材質

これらの変動要因の影響の大きさは、今回の実験条件における相対的な比較であり、実験条件が変化すればその影響の度合いも変化する可能性がある。

本比較実験では、上記の実験条件、実験機材について十分に検討することにより、当初大きかったKd測定値の機関間のばらつきを比較的小さくすることができた。標準的測定法を作成するためには、さらに、現時点における測定値のばらつきが、実験室や実験者の差異に起因するのか、あるいは今回の実験で把握することができなかった物理的あるいは化学的変動要因に起因するのかを明らかにする必要がある。このために、本ワーキンググループでは、実験室や実験者の差異に起因するKd測定値の変動の大きさ等に関する検討を開始している。

### 7.2 今後の課題

安全評価の信頼性を確保するためには、評価モデルに用いられているパラメータ値の信頼性、ばらつき等を十分検討する必要がある。このため、本ワーキンググループではKdについて4機関による比較実験を行い、測定値の変動要因について検討した。

本実験におけるKd測定値について考えると、同一の機関における測定値はほぼ一定の値を示しており、また実験条件、実験機材等を統一することにより、機関間の測定値のばらつきを小さくできることが確認された。すなわち、これらの測定値はいずれも限られた実験条件（系）

合においても核種濃度は非常に小さく、測定値に影響を与える程度の付着は見られなかった。

Kd測定値のばらつきの大きさから考えると、各機関の溶液中の核種濃度の差は2倍程度あるため、その差異が核種の容器への付着の影響によるならば、容器へ付着した核種の濃度は大きいはずである。しかし、容器への付着量はいずれの場合も極めて小さい値しか得られていない。したがって、今回の実験系においては、容器への付着の影響はほとんど無いものと考えられる。

## 7. 結論

### 7.1 本研究の成果

本研究における一連の実験において、Kd測定値に対する変動要因は、その影響の大きさにより以下の3種類に分類し得る。

#### (1)ほとんどの場合大きな影響を与える要因

- ・RI溶液の液性
- ・容器形状（底面積）
- ・振とう方法（ハンドシェイクと振とう器）

#### (2)若干の影響を与える場合がある要因

- ・温度

#### (3)ほとんど影響を与えない要因

- ・RI初期濃度（液性の変化の影響を除く）
- ・ろ過操作
- ・遠心分離
- ・土壤試料間差（同一試料を用いた場合）
- ・容器表面処理
- ・容器材質

これらの変動要因の影響の大きさは、今回の実験条件における相対的な比較であり、実験条件が変化すればその影響の度合いも変化する可能性がある。

本比較実験では、上記の実験条件、実験機材について十分に検討することにより、当初大きかったKd測定値の機関間のばらつきを比較的小さくすることができた。標準的測定法を作成するためには、さらに、現時点における測定値のばらつきが、実験室や実験者の差異に起因するのか、あるいは今回の実験で把握することができなかった物理的あるいは化学的変動要因に起因するのかを明らかにする必要がある。このために、本ワーキンググループでは、実験室や実験者の差異に起因するKd測定値の変動の大きさ等に関する検討を開始している。

### 7.2 今後の課題

安全評価の信頼性を確保するためには、評価モデルに用いられているパラメータ値の信頼性、ばらつき等を十分検討する必要がある。このため、本ワーキンググループではKdについて4機関による比較実験を行い、測定値の変動要因について検討した。

本実験におけるKd測定値について考えると、同一の機関における測定値はほぼ一定の値を示しており、また実験条件、実験機材等を統一することにより、機関間の測定値のばらつきを小さくできることが確認された。すなわち、これらの測定値はいずれも限られた実験条件（系）

の中で、実験条件に含まれる全ての因子の影響を含んだ「分配比」として、正しい値を示していると考えられる。ただし、この「分配比」は限られた条件の範囲内での値であり、広範囲な自然条件をこのような限られた実験条件の範囲内の測定値で表現することは難しい。

しかし、 $K_d$ はその利便性から多くの安全評価モデルでパラメータとして利用され、また、カラム試験やフィールド実験等においても、 $K_d$ の有効性がある程度確認されていることも事実である。したがって、放射性核種の環境中移行に関する安全評価を進める上で、どのような条件で測定され、求められた分配比が $K_d$ 値として妥当と考えるのか、また、使用されるべきなのかについて十分に検討する必要がある。今後は、本研究の成果を踏まえて、安全評価に利用可能な $K_d$ の条件、すなわちその実験条件や測定値の適用範囲等について、さらに検討を進める予定である。

### 参考文献

- (1) 原子力環境整備センター編：環境パラメータ・シリーズ2 土壤と土壤溶液間の放射性核種の分配係数，RWMC-90-P-13(1990).
- (2) 内田滋夫他：JAERI-Review 95-009，“分配係数の測定法及び利用法”(1995).

の中で、実験条件に含まれる全ての因子の影響を含んだ「分配比」として、正しい値を示していると考えられる。ただし、この「分配比」は限られた条件の範囲内での値であり、広範囲な自然条件をこのような限られた実験条件の範囲内の測定値で表現することは難しい。

しかし、 $K_d$ はその利便性から多くの安全評価モデルでパラメータとして利用され、また、カラム試験やフィールド実験等においても、 $K_d$ の有効性がある程度確認されていることも事実である。したがって、放射性核種の環境中移行に関する安全評価を進める上で、どのような条件で測定され、求められた分配比が $K_d$ 値として妥当と考えるのか、また、使用されるべきなのかについて十分に検討する必要がある。今後は、本研究の成果を踏まえて、安全評価に利用可能な $K_d$ の条件、すなわちその実験条件や測定値の適用範囲等について、さらに検討を進める予定である。

### 参考文献

- (1) 原子力環境整備センター編：環境パラメータ・シリーズ2 土壌と土壌溶液間の放射性核種の分配係数，RWMC-90-P-13(1990).
- (2) 内田滋夫他：JAERI-Review 95-009，“分配係数の測定法及び利用法”(1995).