

JAERI-Research  
97-089



分配係数の相互比較実験  
— 実験者による測定値の差異に関する検討 —

1997年12月

高橋知之・武部慎一・木村英雄・松鶴秀夫  
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>・芦川信雄<sup>\*4</sup>・小崎完<sup>\*5</sup>・矢島達哉<sup>\*6</sup>  
西高志<sup>\*7</sup>・大野拓郎<sup>\*8</sup>・豊原尚実<sup>\*9</sup>・本山光志<sup>\*10</sup>

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。

入手の問合わせは、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）で複写による実費頒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 いばらき印刷(株)

分配係数の相互比較実験  
—実験者による測定値の差異に関する検討—

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>・芦川 信雄<sup>\*4</sup>・小崎 完<sup>\*5</sup>・矢島 達哉<sup>\*6</sup>  
西 高志<sup>\*7</sup>・大野 拓郎<sup>\*8</sup>・豊原 尚実<sup>\*9</sup>・本山 光志<sup>\*10</sup>

(1997年11月18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、環境放射能挙動専門部会」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には、測定値に影響を与える様々な変動要因について、その影響の大きさを定量的に把握する必要がある。本研究ではこれらの変動要因のうち、実験者の差異が測定値に与える影響の大きさについて検討するため、20人の実験者による分配係数の相互比較実験を実施した。対象核種は<sup>60</sup>Co、<sup>137</sup>Csとし、浅地層土壤（豊浦砂、黒ボク土）を使用した。分配係数測定値は液性や振とう方法の差異によって差が見られ、液性がほぼ同一の実験条件においては、振とう器による場合はファクター2～3程度、ハンドシェイクの場合にはファクター2以下の変動幅を示した。

---

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 九州環境管理協会

\*5 北海道大学大学院

\*6 三菱マテリアル株式会社

\*7 株式会社日立製作所

\*8 三菱重工業株式会社

\*9 株式会社東芝

\*10 日揮株式会社

Intercomparison on Measurement of Distribution Coefficient  
- Investigation on Differences of Measured Values between Individuals -

Tomoyuki TAKAHASHI, Shinichi TAKEBE, Hideo KIMURA,  
Hideo MATSUZURU<sup>+</sup>, 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>,  
Nobuo ASHIKAWA<sup>\*4</sup>, Tamotsu KOZAKI<sup>\*5</sup>, Tatsuya YAJIMA<sup>\*6</sup>,  
Takashi NISHI<sup>\*7</sup>, Takuro OHNO<sup>\*8</sup>,  
Masamitsu TOYOHARA<sup>\*9</sup> and Mitsushi MOTOYAMA<sup>\*10</sup>

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

(Received November 18, 1997)

The distribution coefficient (Kd), which is defined as partitioning of a solute between a solid and liquid phases, is used in various models which describe the migration and transport phenomena of radionuclides in environment. The coefficient is therefore one of very important parameters for environmental safety assessment of nuclear facilities. Aiming at the recommendation of standard methodologies for both measurement and application of Kd, we have organized "WG on Parameters for Safety Assessment" which belongs to "Technical Committee on Behavior of Environmental Radioactivity" of "Research Committee on Environmental Radioactivity" established by Japan Atomic Energy Research Institute.

The formulation of a standard methodology for measurement of Kd might require a well quantitative understanding of variability observed in measured Kd, which might be caused by physical, chemical, biological, mineralogical and also human factors. In this study, we have

- 
- + Office of Planning
  - \*1 National Institute of Radiological Science
  - \*2 Central Research Institute of Electric Power Industry
  - \*3 Japan Nuclear Fuel Limited
  - \*4 Kyushu Environmental Evaluation Association
  - \*5 Hokkaido University
  - \*6 Mitsubishi Materials Corporation
  - \*7 Hitachi, Ltd.
  - \*8 Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.
  - \*9 Toshiba Corporation
  - \*10 JGC Corporation

conducted an intercomparison exercise on the measurement of Kd for  $^{60}\text{Co}$  and  $^{137}\text{Cs}$ , with 20 participants from various organizations, to evaluate the variability of measured Kd between the participants. The exercise revealed that the measured values of Kd depend significantly on chemical properties of a liquid phase and a mechanical method of shaking of vessel, within the experimental conditions used here. The Kd values measured by using a shaking machine distributed within a factor of 2 - 3 among the participants, while those by using shaking by hand differed by a factor 2 or less, in case that the other experimental conditions used by the participants were almost identical.

Keywords : Intercomparison, Distribution Coefficient, Radionuclides, Safety Assessment, Parameter, Standard Methodology, Batch Test, Variability, Differences between Individuals

## 目 次

1. 序 論 .....	1
2. 実験の概要 .....	1
2.1 実験参加者 .....	1
2.2 実験方法 .....	1
2.3 実験機材 .....	6
2.4 実験方法の変更 .....	6
3. 実験結果と考察 .....	11
3.1 振とう方法の影響 .....	11
3.2 測定精度の影響 .....	11
3.3 液性の差異の影響 .....	12
3.4 考 察 .....	24
4. 結 論 .....	24
謝 辞 .....	24
参考文献 .....	25

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Outline of Experiment .....	1
2.1 Participants of Experiment .....	1
2.2 Experimental Methods .....	1
2.3 Experimental Materials .....	6
2.4 Modification of Experimental Methods .....	6
3. Results and Discussion .....	11
3.1 Effect of Shaking Method .....	11
3.2 Effect of Precision of Measurement .....	11
3.3 Effect of Difference of Liquid Property .....	12
3.4 Discussion .....	24
4. Conclusion .....	24
Acknowledgment .....	24
References .....	25

## 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>。

この  $K_d$  値は、土壤の粒度、接触時間等の物理的要因、EC、pH 等の化学的要因、実験室、実験者の差異に起因する誤差等の複合的な影響により、同一の試料においても測定値にばらつきが生じることが知られている。安全評価の信頼性を確保するためには、このような変動要因を十分に理解し、合理的な  $K_d$  値を得る必要がある。よって著者等は、評価体系に固有の条件を客観的に反映した  $K_d$  の測定及び利用を可能にするため、 $K_d$  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）の作成を目的とした研究を進めている。

標準的測定法によって測定された  $K_d$  値は、信頼性を有することが必要不可欠である。すなわち、定められた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ものでなければならぬ。そのためには、測定値に大きな影響を与える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必要がある。また、測定値が物理的、化学的要因による顕著な影響を受けない実験条件を設定して比較実験を実施することにより、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測定値の変動の大きさを定量的に把握しておく必要がある。

前報<sup>[3]</sup>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、測定値に与える物理的、化学的要因の影響について検討した。本研究では、この知見に基づき、物理的、化学的変動要因を可能な限り排除した同一の実験条件下において、複数の実験者が  $K_d$  値の測定を行うことにより、実験室や実験者の差異に起因する  $K_d$  測定値の変動の大きさについて定量的な評価を行った。

## 2. 実験の概要

### 2.1 実験参加者

本研究では、8ヶ所の実験室（放射線医学総合研究所、九州環境管理協会、北海道大学大学院、三菱マテリアル、日立製作所、三菱重工業、東芝、日揮）で各1名、1ヶ所の実験室（日本原子力研究所）で12名の計20名が実験に参加した。以下、8ヶ所の実験室における各1名の実験者については大文字（A～H）で表し、原研の実験室における12名の実験者については小文字（a～l）で表す。

### 2.2 実験方法

本実験に際しては、物理的、化学的変動要因を排除するため、前報<sup>[3]</sup>の知見に基づき、実験方法は可能な限り詳細に設定することとした。なお、設定された条件で実験を行うことが困難である項目に関しては実験条件の変更を認めるが、その変更に起因する測定値の変化について

## 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>。

この  $K_d$  値は、土壤の粒度、接触時間等の物理的要因、EC、pH 等の化学的要因、実験室、実験者の差異に起因する誤差等の複合的な影響により、同一の試料においても測定値にばらつきが生じることが知られている。安全評価の信頼性を確保するためには、このような変動要因を十分に理解し、合理的な  $K_d$  値を得る必要がある。よって著者等は、評価体系に固有の条件を客観的に反映した  $K_d$  の測定及び利用を可能にするため、 $K_d$  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）の作成を目的とした研究を進めている。

標準的測定法によって測定された  $K_d$  値は、信頼性を有することが必要不可欠である。すなわち、定められた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ものでなければならぬ。そのためには、測定値に大きな影響を与える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必要がある。また、測定値が物理的、化学的要因による顕著な影響を受けない実験条件を設定して比較実験を実施することにより、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測定値の変動の大きさを定量的に把握しておく必要がある。

前報<sup>3)</sup>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、測定値に与える物理的、化学的要因の影響について検討した。本研究では、この知見に基づき、物理的、化学的変動要因を可能な限り排除した同一の実験条件下において、複数の実験者が  $K_d$  値の測定を行うことにより、実験室や実験者の差異に起因する  $K_d$  測定値の変動の大きさについて定量的な評価を行った。

## 2. 実験の概要

### 2.1 実験参加者

本研究では、8ヶ所の実験室（放射線医学総合研究所、九州環境管理協会、北海道大学大学院、三菱マテリアル、日立製作所、三菱重工業、東芝、日揮）で各1名、1ヶ所の実験室（日本原子力研究所）で12名の計20名が実験に参加した。以下、8ヶ所の実験室における各1名の実験者については大文字（A～H）で表し、原研の実験室における12名の実験者については小文字（a～l）で表す。

### 2.2 実験方法

本実験に際しては、物理的、化学的変動要因を排除するため、前報<sup>3)</sup>の知見に基づき、実験方法は可能な限り詳細に設定することとした。なお、設定された条件で実験を行うことが困難である項目に関しては実験条件の変更を認めるが、その変更に起因する測定値の変化について

把握する必要があるため、変更した項目についてはその変更内容を実験結果整理票に詳細に記載することとした。また、実験系の液性の影響を把握するため、金属イオンの吸着量に大きな影響を及ぼすと考えられるpHと、イオンの土壤吸着過程において競合する共存イオンの影響を評価する上で有効な指標となり得るECについて測定することとした<sup>4)</sup>。

設定した実験方法は以下の通りである。なお、実験方法のフローチャートを図2.1に、配布した実験結果整理票を図2.2に示す。

分配係数の相互比較実験における実験方法  
(\*については「10. 実験方法の変更」参照)

(1) 基本条件

RI	: $^{60}\text{Co}$ 、 $^{137}\text{Cs}$
土壤試料	: 豊浦砂、黒ボク土（事務局より配布）
試料調整	: 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（事務局より配布）
容器	: ポリプロピレン製 50ml (内径 38mm) 容器（事務局より配布）

(2) RI調整<sup>\*1</sup>

RI原液	: 日本アイソトープ協会製 JAS-706 標準溶液
放射能濃度	: 1MBq/ml
担体溶液	: $\text{CoCl}_2$ or $\text{CsCl}$ 0.05mg/g in 0.1 N-HCl

希釈方法 : イオン交換水で 50kBq/ml に希釈

(3) 固液接触

接触方法	: バッチ法
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
初期 RI 濃度	: 100Bq/ml
温度	: 15°C (恒温器を用いない場合は室温をなるべく一定に保つ)
試料温度調整	: 実験開始の 24 時間以上前から、土壤及び溶媒を恒温器内に入れておくことにより、温度調整を行う
サンプル数	: 1 核種 1 土壤あたり 3 サンプル (計 12 サンプル) + ブランク (2)

(4) 振とう (振とう器が使用できない場合は手による定期的な振とうでも可)

振とう開始	: RI 添加直後
振とう方法 <sup>*2</sup>	: 往復振とう
振とう強度 <sup>*2</sup>	: 50 往復 / 分
振とう時間	: 7 日 (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 (恒温器を用いない場合は室温) を測定、記録する

## (5) 測定試料前処理

固液分離 : 恒温器内で2時間静置後上澄み液をろ過する  
 ろ液用容器 : 配布した容器でろ液を受け、測定試料を採取する  
 測定試料量 : 5ml

(6) 放射能濃度測定<sup>\*3</sup>

測定機器 : Ge 半導体検出器  
 測定時間 : 原則として1時間とするが、測定方法や試料の放射能濃度に応じて適宜判断し、測定誤差を少なくする。

## (7) pH、EC 測定

EC<sup>\*4</sup> : RI 測定試料採取後、上澄みを必要量採取して測定する  
 pH<sup>\*5</sup> : 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

## (8) ブランク測定

試料作成 : 土壤を加えないことの他は全て同一条件で行う  
 濃度測定 : 振とう終了後2時間静置した後5ml採取して測定する  
 EC<sup>\*4</sup> : ろ液採取後、必要量採取して測定する  
 pH<sup>\*5</sup> : EC 測定試料採取後、そのまま使用する

## (9) 実験結果の整理

添付した実験結果整理票（図2.2参照）に、各サンプルの核種濃度、Kd値、pH及びEC値（測定時の液温を含む）を記入する。なお、温度測定の欄は、恒温器・室温のいずれかに丸をつけ、振とう開始より1日後、4日後、7日後の温度を記録する。

## (10) 実験方法の変更

本実験方法において、\*を付した項目については、実験室や実験者の都合により、設定した方法と異なる方法を用いてもよい。その場合、実験結果整理票の定められた欄に、変更した内容を記述する。

\*1: 設定と異なるRI原液を用いた場合、その原液の供給元と番号、RI濃度、担体溶液、担体濃度及び基準日を「RI原液」欄に記述する。また、異なった希釈方法（希釈溶液、希釈後RI濃度等）を用いた場合、希釈溶液、希釈後のRI濃度、添加量を「RI希釈」欄に記述する。なお、RI原液あるいは希釈方法のいずれかを変更した場合は、使用するRI溶液のpHを測定し、「RI溶液pH」欄に記述する。

\*2: 手による振とうを行った場合、あるいは提示した方法と異なる振とう方法、振とう強度を用いた場合、その内容（「1日1回朝10分のハンドシェイク」等）を「振とう方法」欄に記述する。

\*3: 測定に使用した機器名およびその検出限界を「RI測定機器」欄に記述する。また、NaIシンチレーションカウンタやGM計数管を用いた場合は、測定条件や試料の形態等について同欄に詳細に記述する。なお、1時間を超える測定時間としたときは、その測定時間を「測定時間」欄に記録する（単位：時間）。

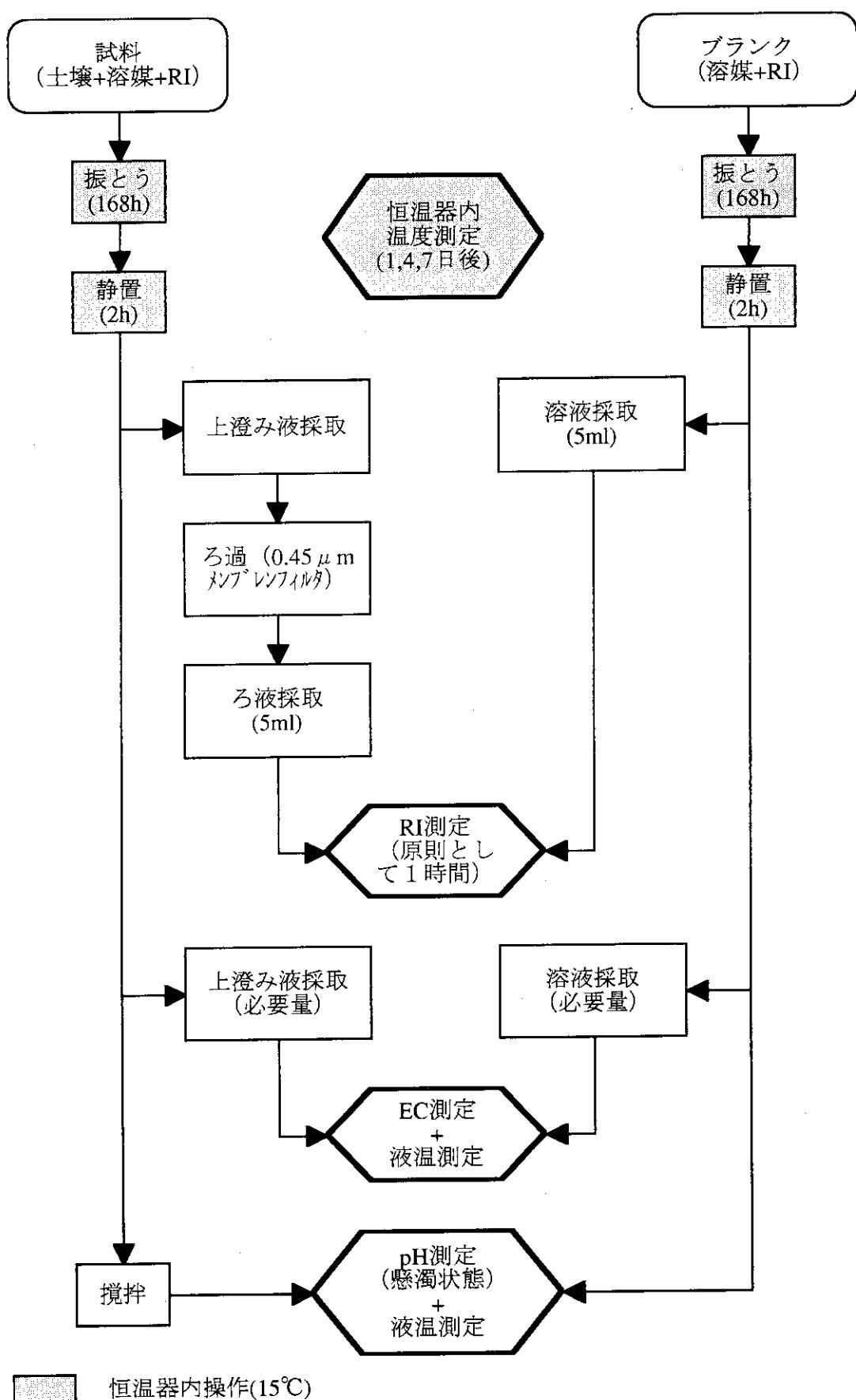


図 2.1 測定手順のフローチャート

実験者		所属		実験日時		変更点 (サンプル毎)	
核種	土壤	濃度(Bq/ml)	Kd(mL/g)	pH	EC(µs/cm)	温度	測定時間
Co-60	豊浦砂						
	黒ボク土						
	ブランク						
	豊浦砂						
Cs-137	黒ボク土						
	ブランク						
	恒温器	室温	温度：1日後	温度：4日後	温度：7日後	℃	℃
	RI原液					RI溶液	pH
変更点	RI希釀						
	振とう方法						
	RI測定機器					検出限界：	
	その他						

図2.2 実験結果整理票

\*4: EC測定は、測定器がない場合は行わなくても良い。また、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「EC希釈」欄に記録する。

\*5: pHはpHメーターがない場合はpH試験紙によって測定する。pH試験紙は希望者に配布する。なお、pH試験紙を用いた場合はその旨を「その他」欄に記載する。

他の実験方法を変更した場合には、その内容を詳細に「その他」欄に記述する。

### 2.3 実験機材

前回の比較実験<sup>3)</sup>により、実験機材、特に実験に使用する容器の形状の差異による影響が明らかとなった。よって本実験においては、実験機材の差異の影響を排除するため、主な実験機材及び試料を事務局より配布した。配布した実験機材及び試料を表2.1に示す。また、各土壤試料の化学的性質について分析した結果を表2.2に示す。

### 2.4 実験方法の変更

設定した実験方法のうち、最も変更が多かったのはRI溶液の作成方法であり、RI原液の供給元や濃度、希釈方法等が各機関で様々であった。各機関が使用したRI溶液の作成方法を、設定した実験方法とあわせて表2.3～表2.4に示す。また、実験中の温度、RI測定方法、振とう方法及びその他の変更点について、表2.5にまとめて示す。

表2.1 配布機材及び試料一覧

配布機材及び試料	形式	数量
エッペンドルフピペット	0.01ml～0.1ml可変 4910型	1本
	0.2ml～1.0ml可変 4910型	1本
	0.5ml～5.0ml可変 3110型	1本
ピペット用チップ	0.001ml～0.1ml ヨーロチップ黄	192本
	0.1ml～1.0ml ヨーロチップ青	192本
	1.0ml～5.0ml ヨーロチップ赤	100本
試験容器（アイボーイ）	ポリプロピレン製50ml広口 内径38mm φ×高さ78mm	48本
マイクロシリジ（テルモ）	ポリプロピレン製10ml用 SS-10ES	100本
フィルター（ミリポア）	0.45 μm 25mm φ マイレックスHA25型	50個
バイアル瓶 (ヒューレット・パッカード)	LSC VIAL 20ml用	48本
試験管立て		1個
溶媒	10 <sup>-3</sup> mol/l CaCl <sub>2</sub> 溶液	2000ml
土壤試料	豊浦砂	約150g
	黒ボク土	約150g

表 2.2 実験に使用した土壤試料の化学的性質

項目	豊浦砂 <sup>*1</sup> (JIS 5201用砂)	黒ボク土 <sup>*2</sup> (NDG-1)
風乾含水比(%)	0.05	5.07
pH(H <sub>2</sub> O) <sup>*3</sup> (測定水温26°C)	7.5	5.4
pH(KCl) <sup>*3</sup> (測定水温26°C)	6.3	4.5
酸化還元電位(mV) <sup>*3</sup>	+250	+350
陽イオン交換容量 (meq/100g乾土)	1.1	27.5
交換性Na (meq/100g乾土)	0.6	0.4
交換性K (meq/100g乾土)	0.7	0.5
交換性Ca (meq/100g乾土)	2.6	0.8
交換性Mg (meq/100g乾土)	0.8	0.4
有機態炭素 (%)	0.02	6.01
有機態窒素 (mg/kg乾土)	8.0	4300

\*1 豊浦砂（豊浦標準砂）：山口県豊浦郡豊浦町で産出する砂で、豊浦珪石鉱業株式会社が販売しており、JIS 5201セメントの強さ試験等に使用されている。添付された分析表によれば、約93%はSiO<sub>2</sub>で、約4%はAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、その他、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CaO、MgO等が含まれる。

\*2 黒ボク土（土壤標準試料 NDG-1）：栃木県農業試験場（鹿沼）で採取された畑作土で、(社)日本土壤肥料学会の要請により、富士平鉱業株式会社が販売している。添付された分析表によれば、全炭素量は7.06%、全窒素量は0.434%と、有機層に富んだ表層の土壤である。

\*3 : pH 及び酸化還元電位は、実験条件と同じ固液比（1:10）で測定している。

表2.3 RI溶液の作成方法 ( $^{60}\text{Co}$ )

実験者		A	B	C	D	E
原液	供給元	日本RI協会	日本RI協会	日本RI協会	日本RI協会	アマシャム
	番号	JAS-706	JAS-704	JAS-706	JAS-706	CKZ.64
	RI濃度(kBq/ml)	約1,000	50.1	1,090	1,140	404
	塙体濃度(mg/g)	0.05	0.05	0.05	0.05	0.1
	溶液	0.1N HCl	0.1N HCl	0.1N HCl	0.1N HCl	0.1N HCl
実験用溶液	基準日	—	'92 6/29	'96 10/17	'95 8/21	'96 9/4
	希釀溶液	イオン交換水	1N HCl	イオン交換水	イオン交換水	0.1N HCl
	RI濃度(kBq/ml)	95	2.54	55	50	50
	pH	1.7	0.4以下	—	2.0	1
	添加量(ml)	0.6	1.18	0.06	0.06	0.06
実験者		F	G	H	a~1	設定
原液	供給元	デュポン	セティカルパニリミットド	アマシャム	日本RI協会	日本RI協会
	番号	JDN0451	No.23997	CKZ.72	JAS-706	JAS-706
	RI濃度(kBq/ml)	37,000	526	4,924	1,010	1,000
	濃度(mg/g)	0.05	0.01	0.1	0.05	0.05
	塙体溶液	0.5N HCl	0.1N HCl	0.1N HCl	0.1N HCl	0.1N HCl
実験用溶液	基準日	'96 1/6	'96 6/17	'92 6/1	'95 7/13	—
	希釀溶液	蒸留水	イオン交換水	*	イオン交換水	イオン交換水
	RI濃度(kBq/ml)	33.1	50	46.7	51.3	50
	pH	4.3	3	1.5	2.4	—
添加量(ml)		0.0905	0.06	0.065	0.06	0.06

\*: 0.1N HClで20倍希釀の後、イオン交換水で3倍希釀

表2.4 RI溶液の作成方法 ( $^{137}\text{Cs}$ )

実験者		A	B	C	D	E*
原液	供給元	日本RI協会	日本RI協会	日本RI協会	日本RI協会	アマシャム
	番号	JAS-706	JAS-704	JAS-706	JAS-706	CCS.1
	RI濃度(kBq/ml)	約1,000	48.3	1,220	1,060	39,600
	担体濃度(mg/g)	0.05	0.05	0.05	0.05	0.0929
	溶液	0.1N HCl	0.1N HCl	0.1N HCl	0.1N HCl	0.1N HCl
実験用 溶液	基準日	—	'92 6/29	'96 10/17	'95 8/21	'89 4/1
	希釈溶液	イオン交換水	1N HCl	イオン交換水	イオン交換水	0.1N HCl
	RI濃度(kBq/ml)	99	4.37	61	50	50
	pH	1.7	0.4以下	—	2.8	1
	添加量(ml)	0.6	0.687	0.06	0.06	0.06
実験者	実験者	F	G	H	a~1	設定
	供給元	日本RI協会	アマシャム	アマシャム	日本RI協会	日本RI協会
	番号	Special type	—	CDZ.72	JAS-706	JAS-706
	原液	RI濃度(kBq/ml)	829	3,990	4,620	999
		担体濃度(mg/g)	0.05	0.1	0.1	0.05
実験用 溶液	溶液	0.1N HCl	0.1N HCl	0.1N HCl	0.1N HCl	0.1N HCl
	基準日	'86 1/6	'89 5/1	'92 10/1	'95 7/13	—
	希釈溶液	蒸留水	イオン交換水	イオン交換水	イオン交換水	イオン交換水
	RI濃度(kBq/ml)	53.2	50	36.0	51.5	50
	pH	1.3	4	3.0	2.4	—
	添加量(ml)	0.0564	0.06	0.080	0.06	0.06

\*:  $^{134}\text{Cs}$  を使用

表2.5 実験条件一覧

実験者		A	B	C	D	E
温度	実験条件	恒温器	恒温器	恒温器	恒温器	室温
	1日後	15°C	14.5°C	15.0°C	15.0°C	16°C
	4日後	測定せず	15.4°C	15.0°C	15.0°C	15°C
pH,EC測定時	7日後	15°C	14.2°C	15.0°C	15.0°C	19°C
	pH,EC測定時	19.9°C~20.6°C	15.3°C~17.9°C	19.2°C~25.1°C	15.5°C~16.0°C	19°C
	測定機器	Ge半導体検出器	Ge半導体検出器	NaIシチレーシヨンカウント	Ge半導体検出器	Ge半導体検出器
RI測定	測定時間	1時間	30分	1時間	30分	1時間
	振とう方法	振とう器	振とう器	振とう器	振とう器	振とう器
	その他	ECは各条件毎に 1サンプルのみ測定	—	ブランク濃度を 100Bq/mlと仮定し 相対濃度を算出	—	pH試験紙を使用 ECは測定せず
実験者		F	G	H	a~I	設定
温度	実験条件	恒温器	恒温器	恒温器	恒温器	恒温器
	1日後	14.8°C	15°C	14°C	15°C	15°C
	4日後	14.8°C	15°C	14°C	15°C	15°C
pH,EC測定時	7日後	15.0°C	15°C	14°C	15°C	15°C
	pH,EC測定時	10.0°C~11.6°C	12.7°C~13.5°C	16.0°C~17.5°C	17.3°C~21.9°C	—
	測定機器	Ge半導体検出器	NaIシチレーシヨンカウント	Ge半導体検出器	Ge半導体検出器	Ge半導体検出器
RI測定	測定時間	1時間	1時間	1時間	1時間	1時間
	振とう方法	ハンドシェイク <sup>*2</sup>	振とう器	ハンドシェイク <sup>*3</sup>	振とう器 <sup>*1</sup>	振とう器
	その他	—	ECは2倍希釈で 測定	ろ液はデイスミックフィル を2回共洗後3回目 のろ液を使用	ECはバイアルに 移して測定	—

\*1: オプションとしてハンドシェイク（方法は任意）を1サンプル \*2: 1日2回朝夕それぞれ10分間

\*3: サンプル作成後1日目、4日～7日目にそれぞれ約10秒間

### 3. 実験結果と考察

#### 3.1 振とう方法の影響

各実験者によるKd値の測定結果を図3.1～図3.4に示す。振とうを振とう器で行った測定値は○、ハンドシェイクで行った測定値は◇で表している。機関F及び機関Hの実験者はハンドシェイクによる実験を3サンプルについて実施している。機関B及び原研の実験室の実験者(a～l)は、前報<sup>3)</sup>で見られた振とう方法の差異による測定値の差異について明確にするため、振とう器による実験を3サンプルについて実施するとともに、ハンドシェイクによる実験を各1サンプルについて実施している。

いずれの核種、土壤においても、本実験で定めた条件では、振とう器による測定値よりハンドシェイクによる測定値の方が高い傾向が見られる。特に同一実験室の12名(a～l)の測定結果ではその差異が明確である。これは、前回の実験<sup>3)</sup>と同様に、振とう器による振とうの場合は水平方向の振とうが主であるため、本実験で用いた容器では液相と固相の面的接触が支配的となって混合が不十分となるのに対し、ハンドシェイクでは定常的ではないものの、液相と固相の均一な混合系を生成するためと考えられる。

この振とう方法の差異の影響について明確にするため、原研の実験室の実験者12名(a～l)の測定結果について、各振とう方法による測定値の累積分布関数を図3.5～図3.6に示す。いずれの核種、土壤の組み合わせにおいても、振とう器による振とうとハンドシェイクとの差異が明確である。これらの差異は、ノンパラメトリック検定であるKolmogorov-Smirnovの検定により、いずれも有意であることが確認された。また、これらの差異の大きさは組み合わせによって若干異なるが、ファクター2程度であることが認められる。但し、この差異の大きさは、実験に使用する容器の底面積に依存し、底面積が小さい容器を用いた場合は、より大きな差異が生じると考えられる<sup>3)</sup>。

また、機関F及び機関Hは振とう器を用いず、ハンドシェイクの実験のみを行っているが、これらの測定値は機関Hの「<sup>60</sup>Co、豊浦砂」の測定値を除き、原研の実験室の実験者のハンドシェイクの測定値とほぼ同程度の値である。これは、ハンドシェイクの場合は液相と固相が十分に混合されるため、振とう器の場合に比べ測定値が安定しやすいことによると考えられる。なお、ハンドシェイクの測定値は振とう器による測定値の最大値とほぼ同程度であり、振とう器による振とうにおいて混合が比較的十分になされた場合、ハンドシェイクによる測定値と同様の測定結果が得られると考えられる。

なお、ハンドシェイクの方法(頻度、時間、混合方法等)については特に設定しなかったため、各実験者が実施した方法は統一されていない。しかし、測定値のばらつきは比較的小さいことから、ハンドシェイクの場合はその方法の差異の影響は小さいことが推測される。

#### 3.2 測定精度の影響

固相への核種の吸着量が多い場合、すなわちKd測定値が高い場合は、液相中の核種濃度が低くなるため、放射能測定における測定誤差の影響が大きくなる。また、逆に固相への核種の吸着量が少ない場合、すなわちKd測定値が低い場合は、液相中の核種濃度の変化が少ないため、同様に測定誤差の影響が大きくなることが考えられる。

図3.4及び図3.6に見られるように、「<sup>137</sup>Cs、黒ボク土」のKd測定値は、他の組み合わせに比べKd測定値が高く、そのばらつきも比較的大きい。この傾向は、同一の実験者による3サ

ンプルの測定結果においても現れている。このばらつきは、液相中の放射能濃度が低くなつたことにより、測定誤差の影響が相対的に大きくなつたことによると考えられる。

このような測定誤差によるばらつきの影響小さくするためには、RI初期濃度を適切に設定することが必要がある。但し、RI溶液の添加量を変化させた場合、実験系の液性が変化することにより、Kd測定値に影響を与える可能性があることに十分留意する必要がある。

### 3.3 液性の差異の影響

図3.1～図3.4のいずれにおいても、機関A、機関B及び機関Dの実験者の測定値が一般に低い傾向が見られる。これらについては、pHやECに現れている液性の差異が、Kd測定値に影響を与えていていると考えられる。

まずpHとKd測定値との相関を明らかにするため、実験終了時の各サンプルの液相のpHとKd測定値との相関、及びプランクのpHとKd測定値との相関を図3.7～図3.14に示す。表2.3及び表2.4に示したように、機関AはRI添加量が0.6mlと他の実験者より10倍程度多いため、プランクのpHが他の実験者に比べ低くなっている。機関Bは希釈溶液に1N HClを用い、RI溶液の添加量も他機関より10倍以上多いため、サンプル及びプランクのいずれについてもpHが他機関よりかなり低い値を示している。

いずれの組み合わせにおいても、プランクのpHとKd測定値との間に明確な相関が見られる。特に、黒ボク土は緩衝作用が大きいため、実験終了時の各サンプルの液相のpHとKd測定値では相関はほとんど見られないが（図3.9、図3.13）、プランクのpHとは比較的よい相関が見られる（図3.10、図3.14）。このように、Kd測定値に対するpHの影響は、プランクのpHに着目した方がより明確である。これらの図より、機関A及び機関Bはいずれの組み合わせにおいてもプランクのpHが他の機関より明らかに低く、このためにKd測定値が低くなつたと考えられる。なお、プランクのpHが4程度より大きい場合は、pHとKd測定値に明確な相関は見られない。

次に、各サンプルの液相のECとKd測定値との相関、及びプランクのECとKd測定値との相関を図3.15～図3.22に示す。但し、機関AはプランクのECを測定しておらず、機関Eはサンプル及びプランクのいずれもECを測定していない。いずれの組み合わせにおいても、機関B及び機関DのECが他の実験者と大きく異なつており、全体として負の相関の傾向が見られる。機関Bは前述したRI溶液の特性のためECも高くなつたと考えられる。また、機関DはpHについては他の機関とあまり差異がなかつたが、ECについてはサンプル、プランクのいずれにおいても他機関より明らかに高い値を示しており、このためにKd測定値が低くなつたと考えられる。機関AはECについては他機関とほぼ同様であるため、前述したpHの差異がKd測定値の差異となって現れたことが推察される。なお、機関Bを除き、サンプルのECとプランクのECはいずれの実験者においてもほぼ同程度であった。

このように、プランクのpHあるいはECのいずれか（あるいは両方）が大きく変動した場合、Kd測定値はオーダーの幅で変動することが明らかである。

また、上述した機関A、機関B及び機関D以外の機関の実験者についても、RI供給元、RI原液の担体濃度、希釈方法などで若干の違いが見られた。しかしながら、これらの実験者間においては、プランクのpH及びECがほぼ同じ値であり、Kd測定値に対する影響も特に現れていない。すなわち、RI原液やその希釈方法の差異に起因する液性の差異は、プランクのpH及びECに大きな差異が生じる程度でなければ、実験者の差異による影響に比して有意な影響を

Kd測定値(ml/g)

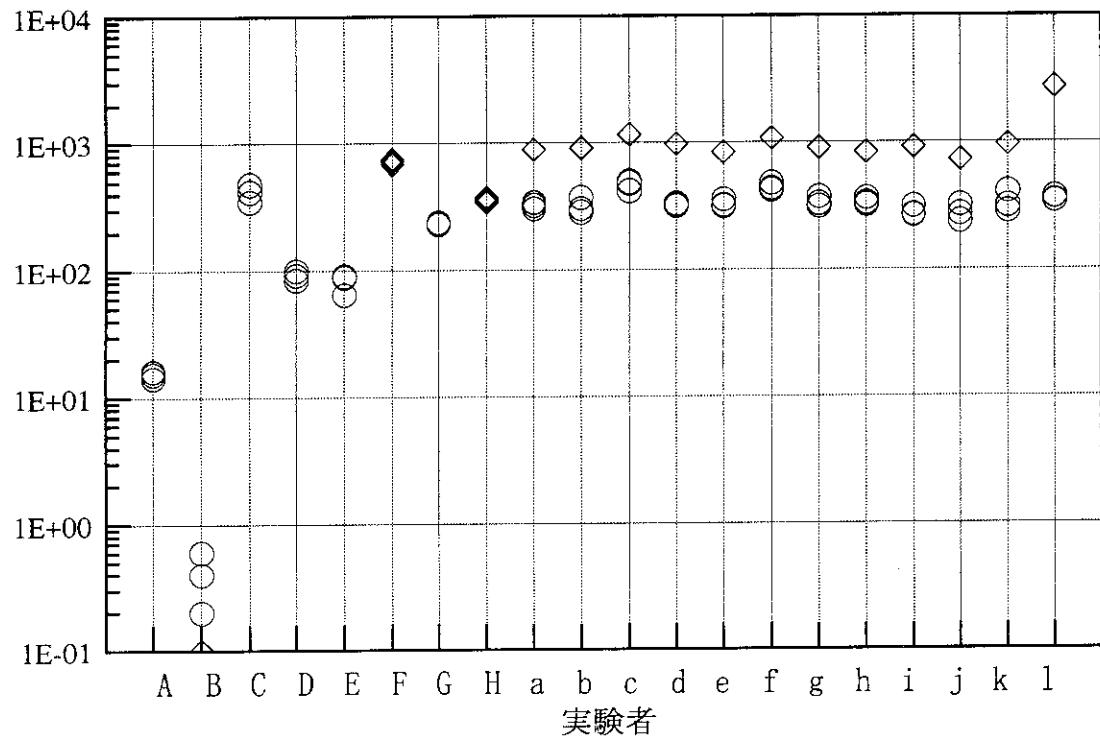


図3.1 Kd測定値 (Co-60, 豊浦砂)

Kd測定値(ml/g)

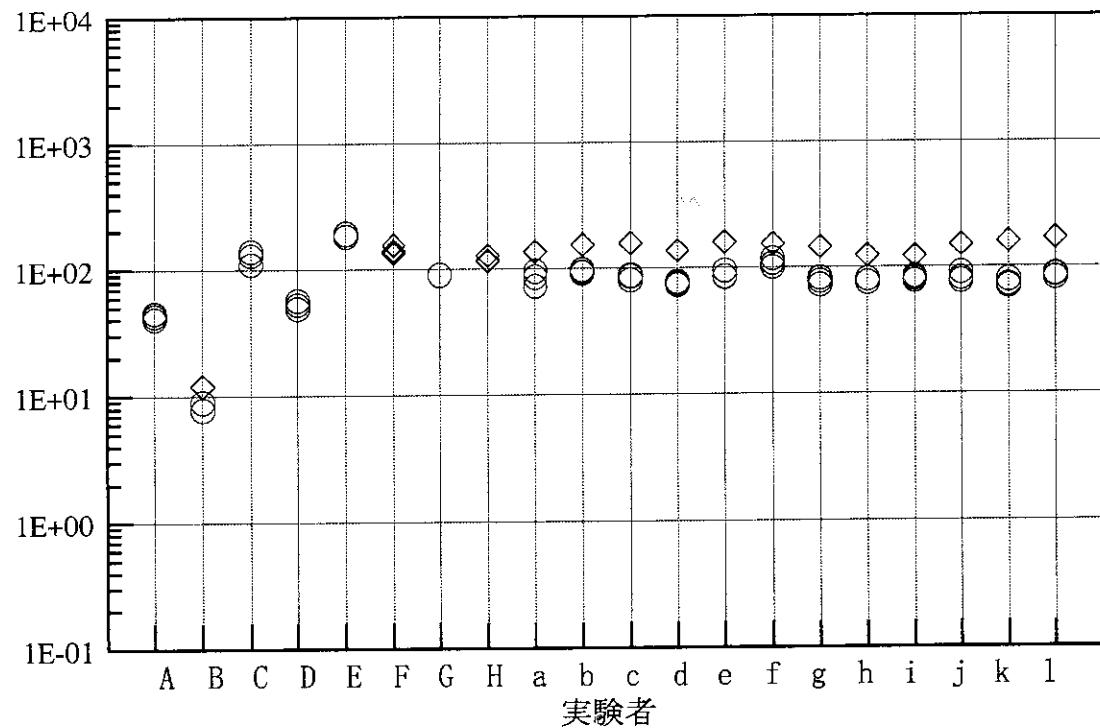


図3.2 Kd測定値 (Co-60, 黒ボク土)

Kd測定値(ml/g)

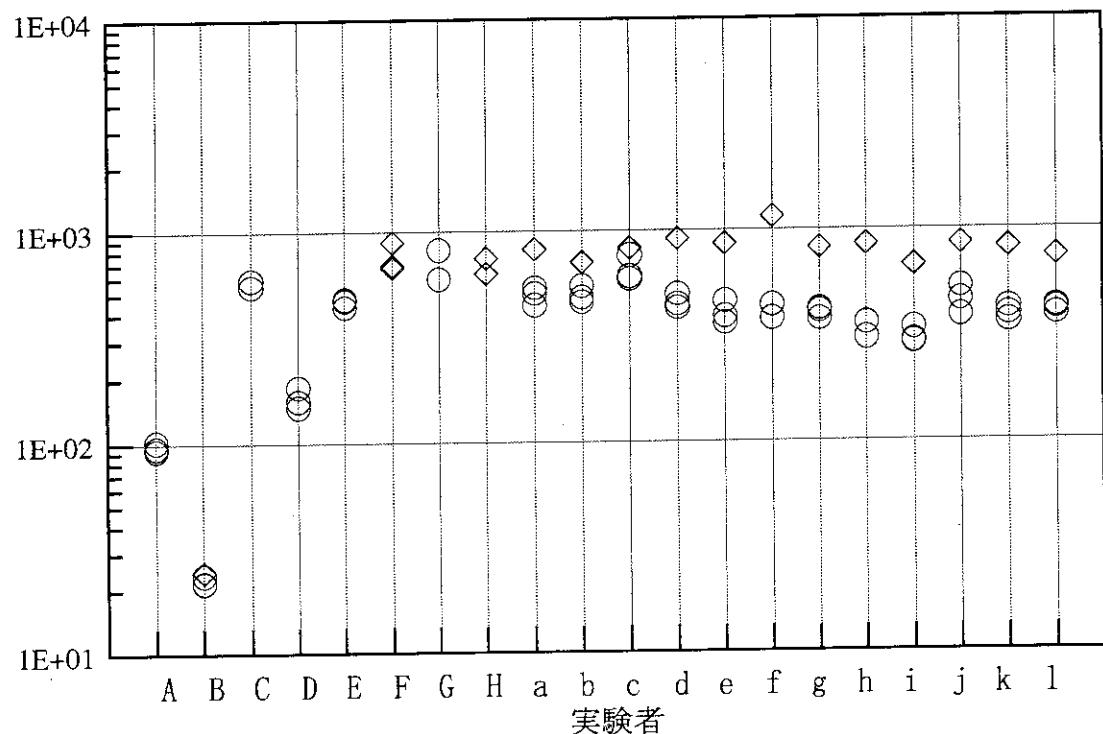


図3.3 Kd測定値 (Cs-137, 豊浦砂)

Kd測定値(ml/g)

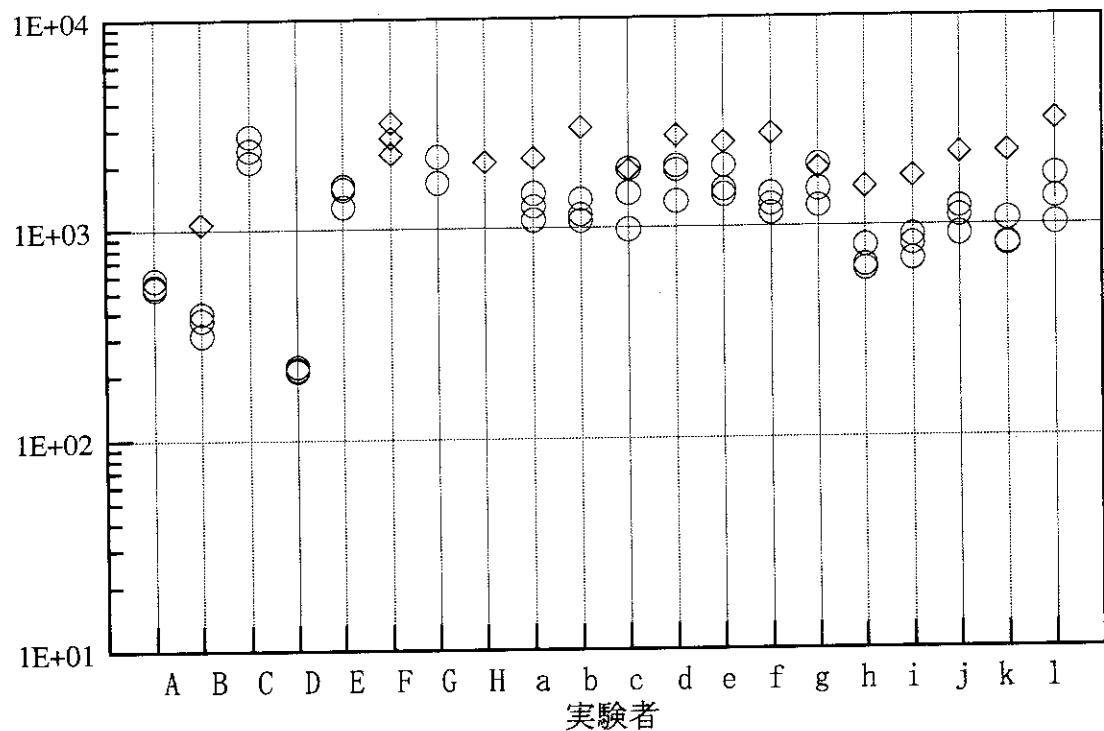


図3.4 Kd測定値 (Cs-137, 黒ボク土)

累積確率(-)

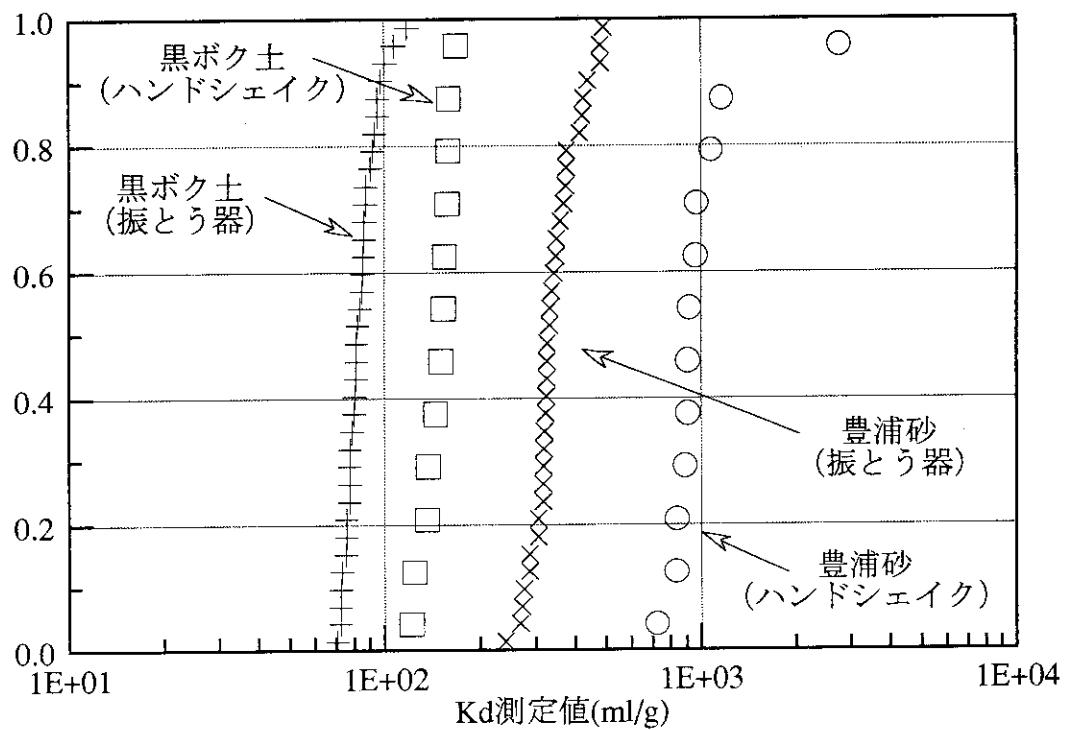


図3.5 同一実験室における実験者の測定値の累積分布関数(Co-60)

累積確率(-)

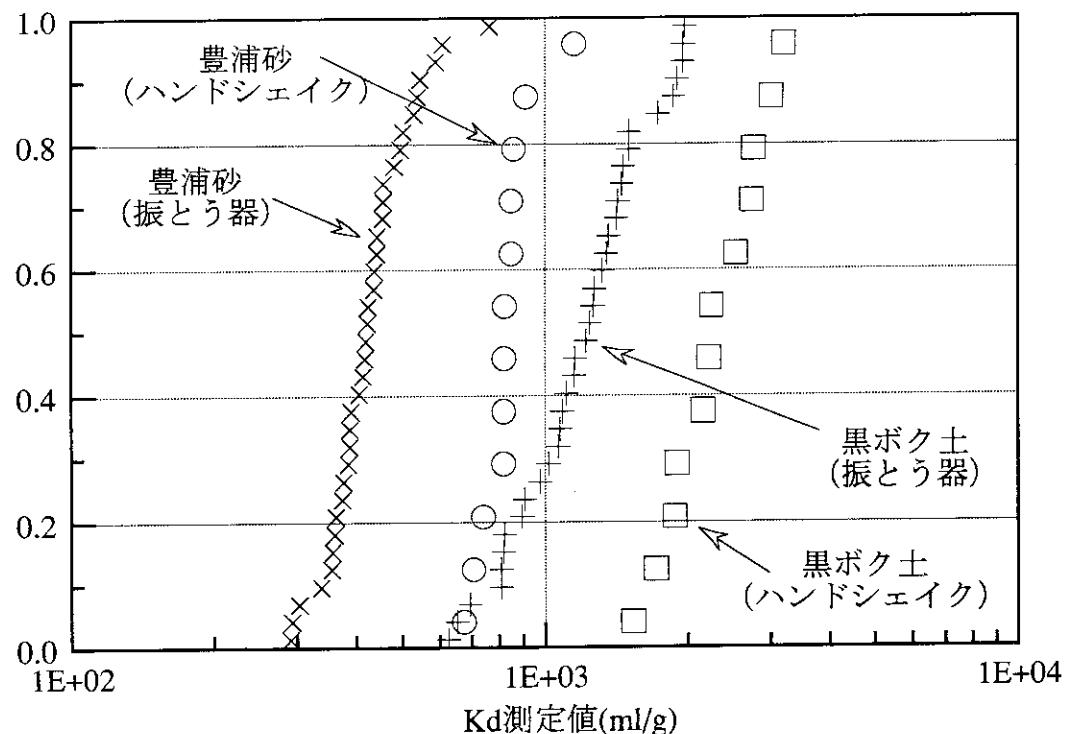


図3.6 同一実験室における実験者の測定値の累積分布関数(Cs-137)

Kd測定値(ml/g)

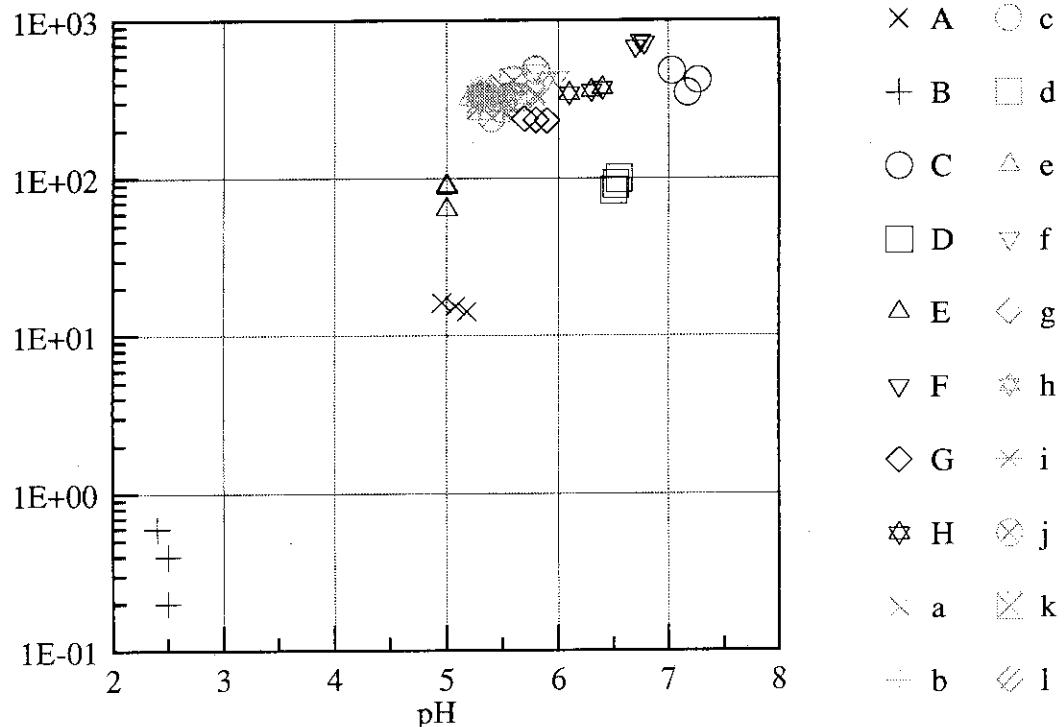


図3.7 サンプルのpHとKdの相関 (Co-60, 豊浦砂)

Kd測定値(ml/g)

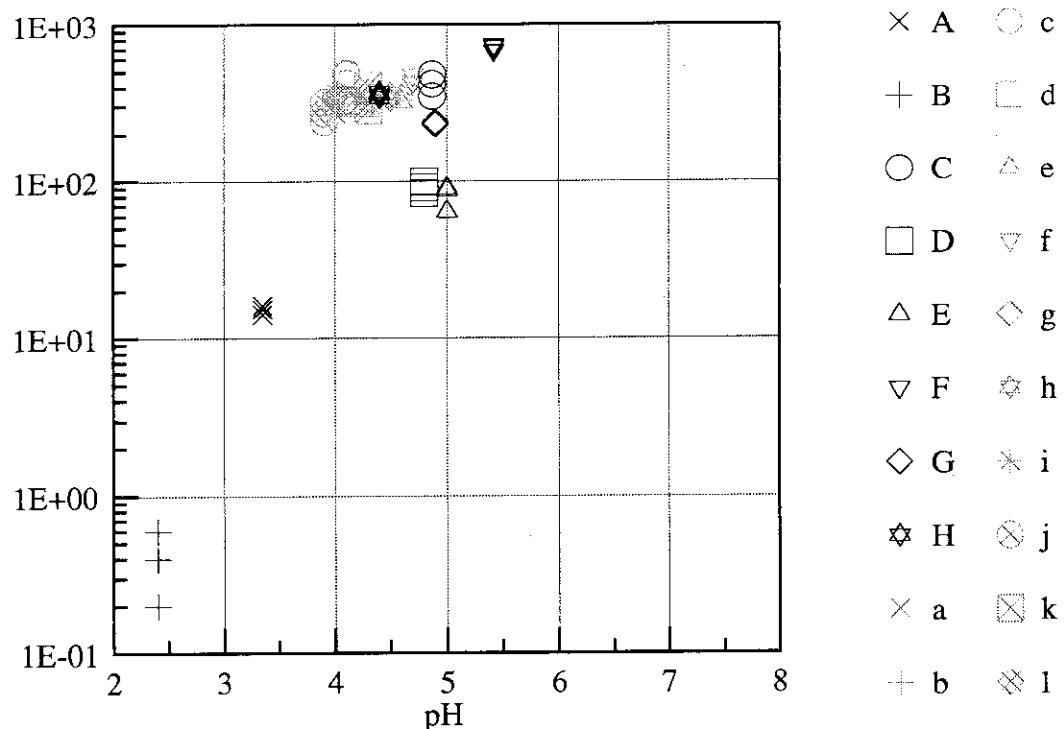


図3.8 ブランクのpHとKdの相関 (Co-60, 豊浦砂)

Kd測定値(ml/g)

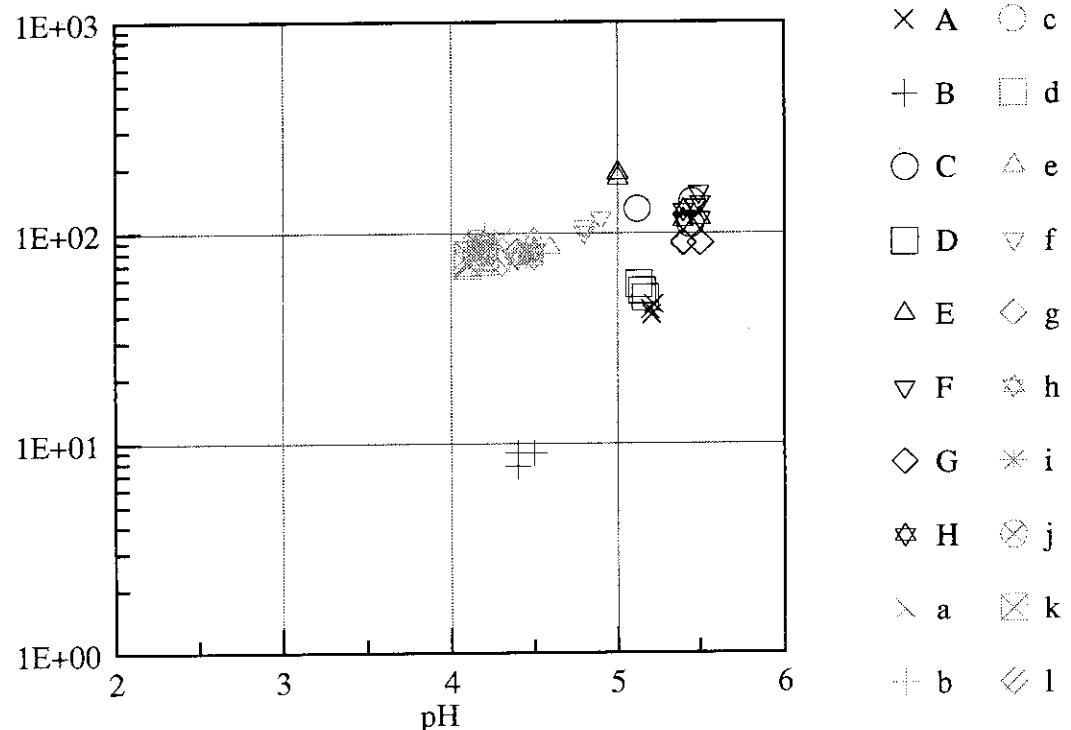


図3.9 サンプルのpHとKdの相関 (Co-60, 黒ボク土)

Kd測定値(ml/g)

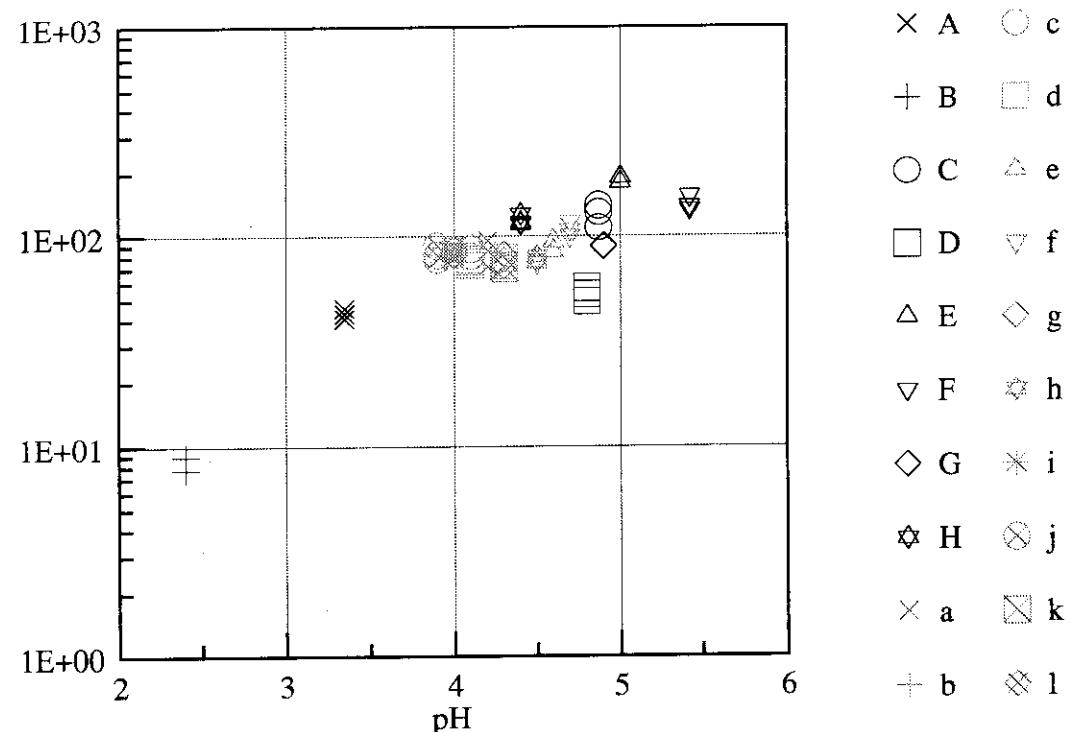


図3.10 ブランクのpHとKdの相関 (Co-60, 黒ボク土)

Kd測定値(ml/g)

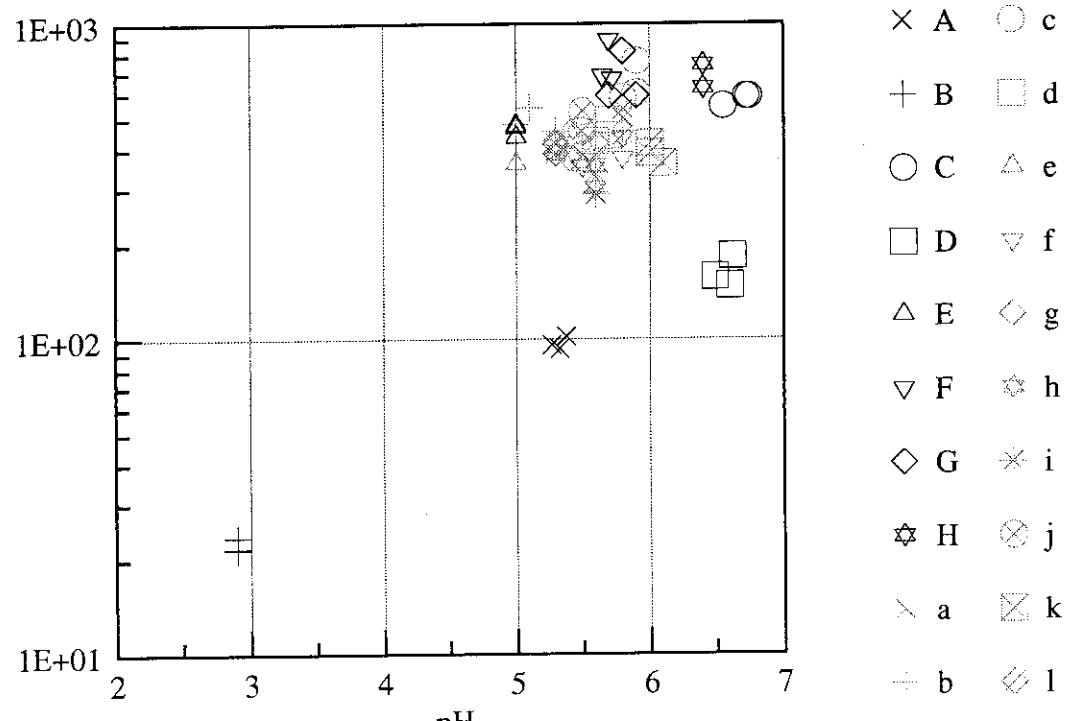


図3.11 サンプルのpHとKdの相関 (Cs-137, 豊浦砂)

Kd測定値(ml/g)

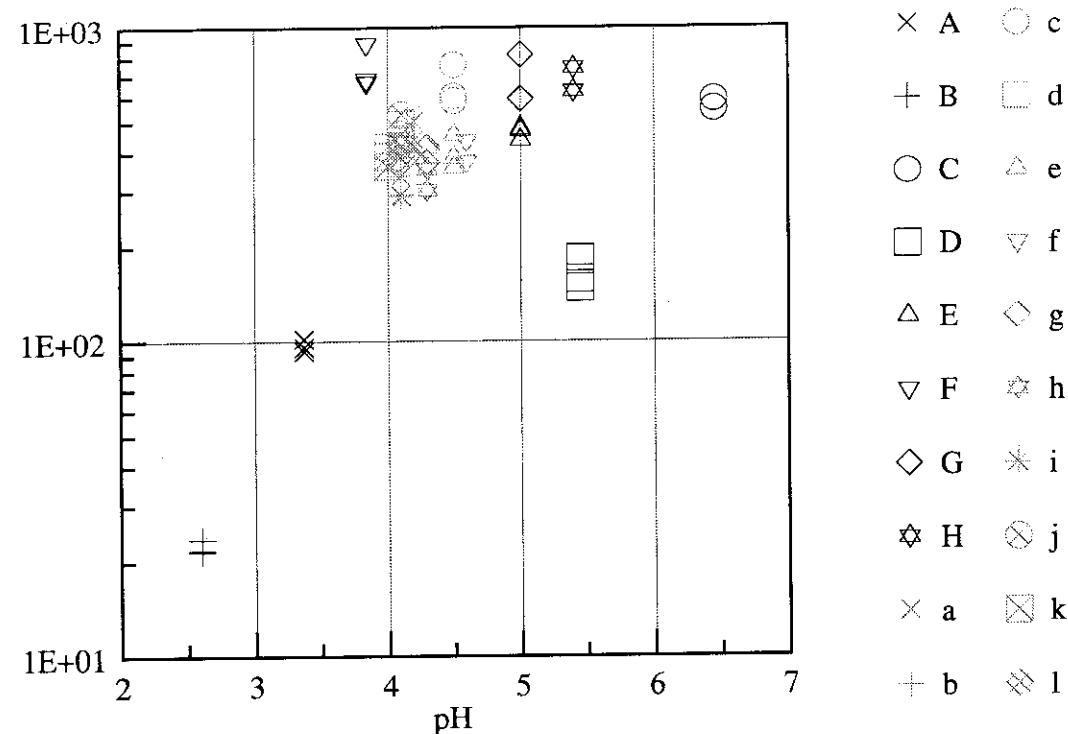


図3.12 ブランクのpHとKdの相関 (Cs-137, 豊浦砂)

Kd測定値(ml/g)

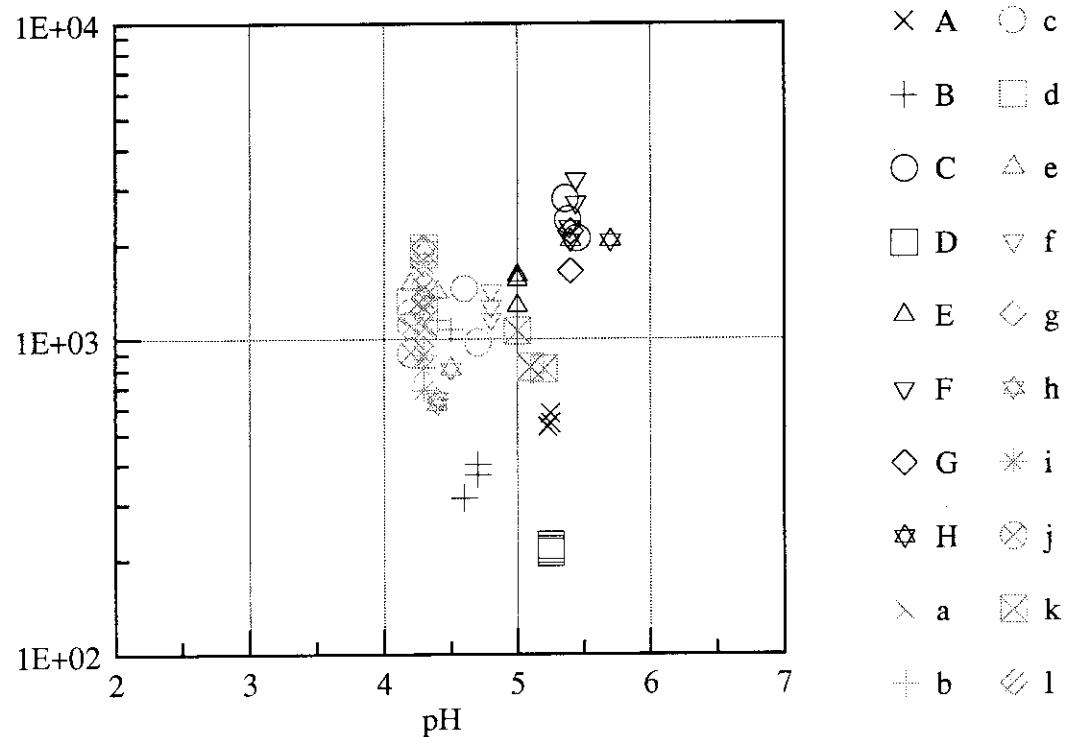


図3.13 サンプルのpHとKdの相関 (Cs-137,黒ボク土)

Kd測定値(ml/g)

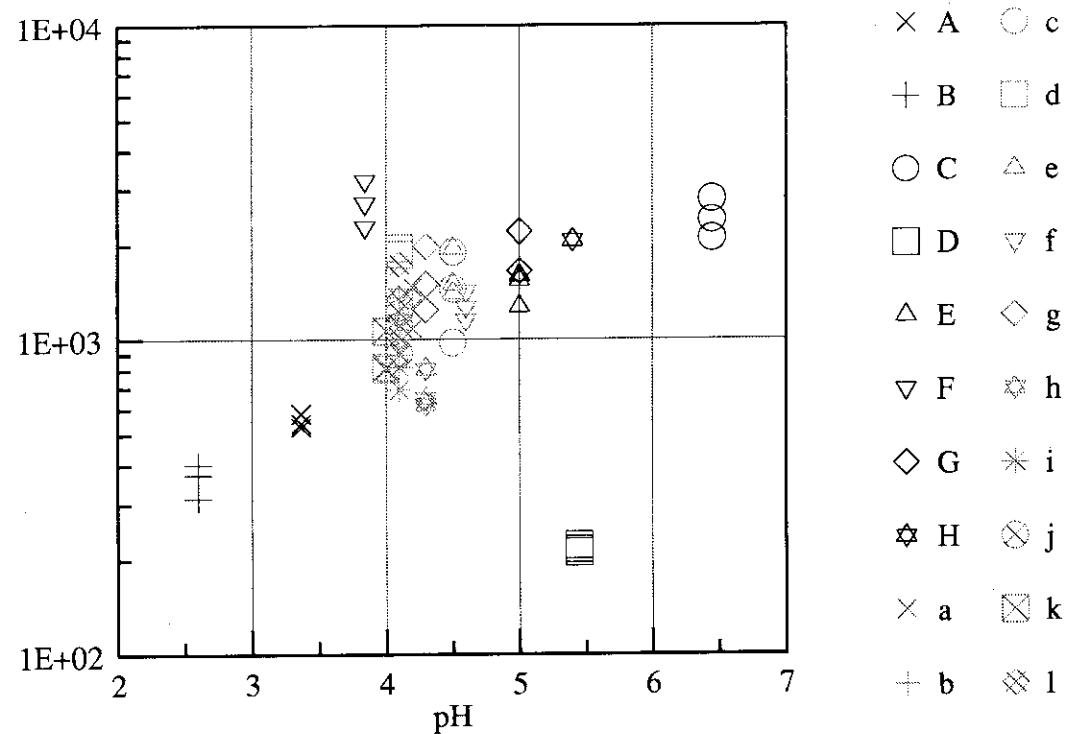


図3.14 ブランクのpHとKdの相関 (Cs-137,黒ボク土)

Kd測定値(ml/g)

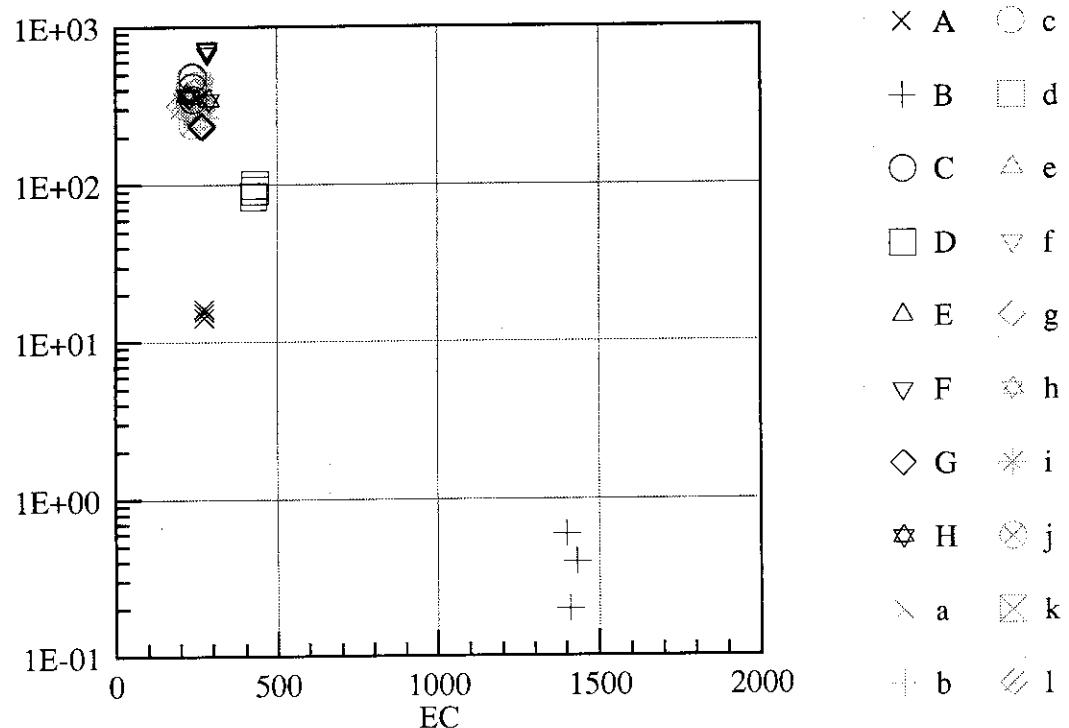


図3.15 サンプルのECとKdの相関 (Co-60, 豊浦砂)

Kd測定値(ml/g)

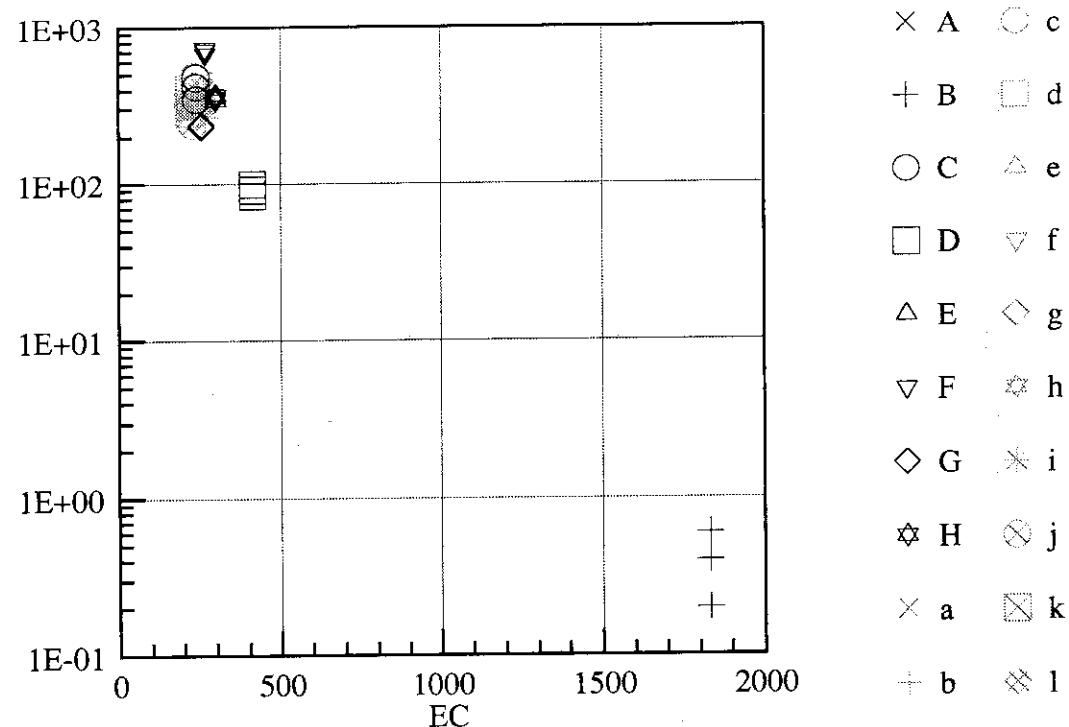


図3.16 ブランクのECとKdの相関 (Co-60, 豊浦砂)

Kd測定値(ml/g)

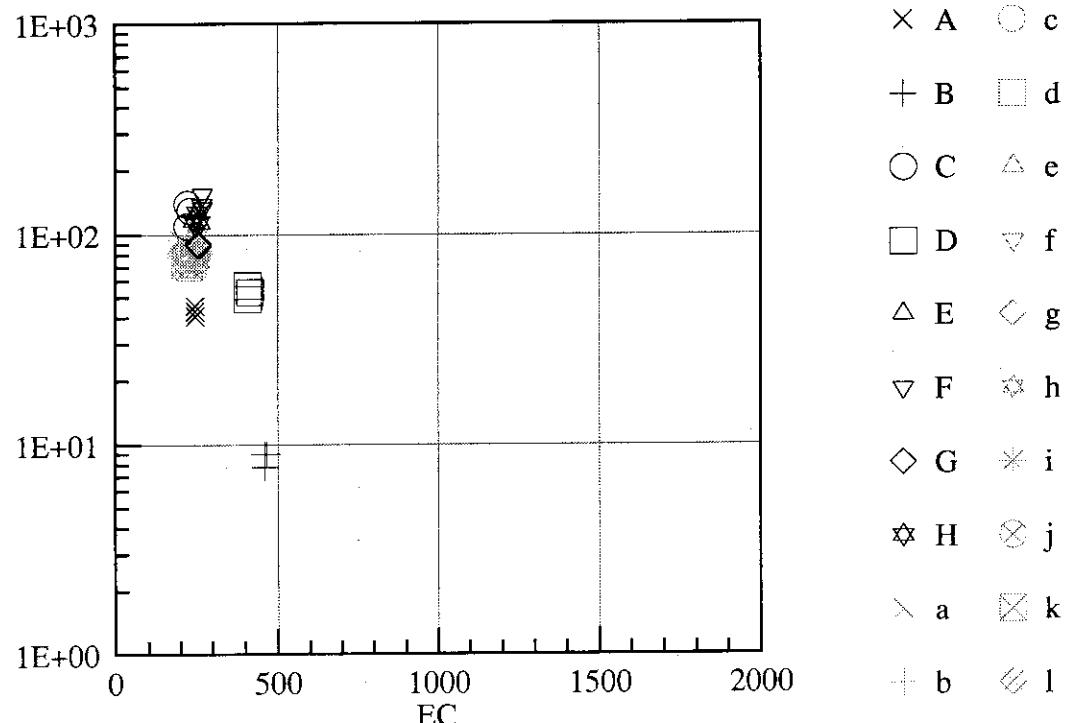


図3.17 サンプルのECとKdの相関 (Co-60, 黒ボク土)

Kd測定値(ml/g)

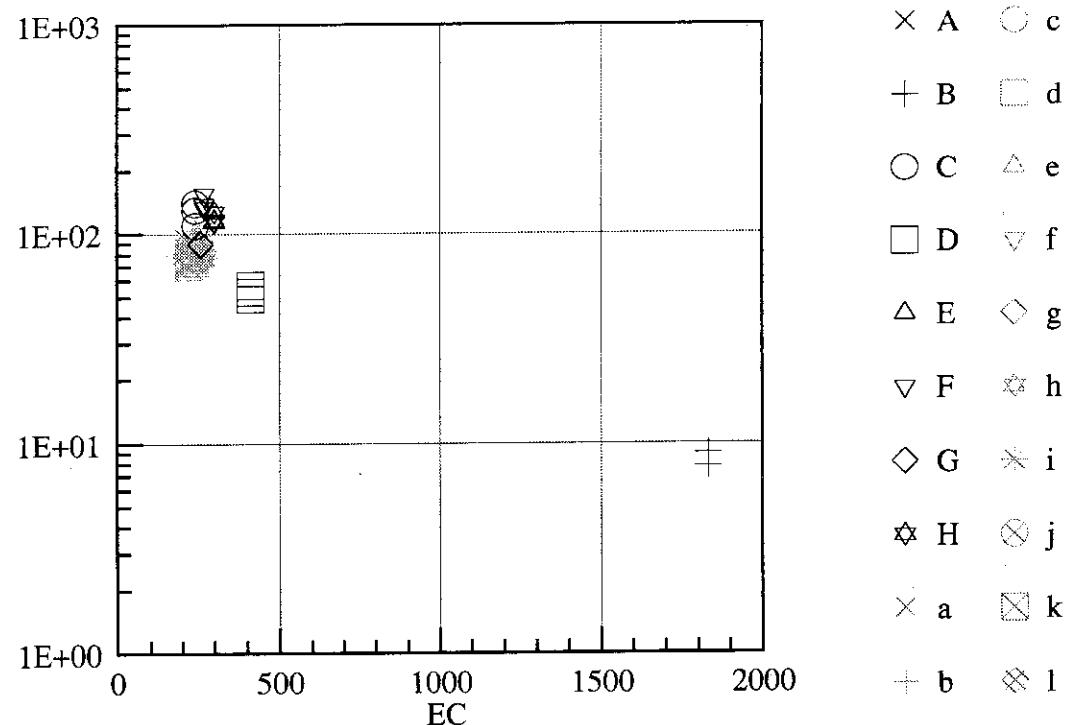


図3.18 ブランクのECとKdの相関 (Co-60, 黒ボク土)

Kd測定値(ml/g)

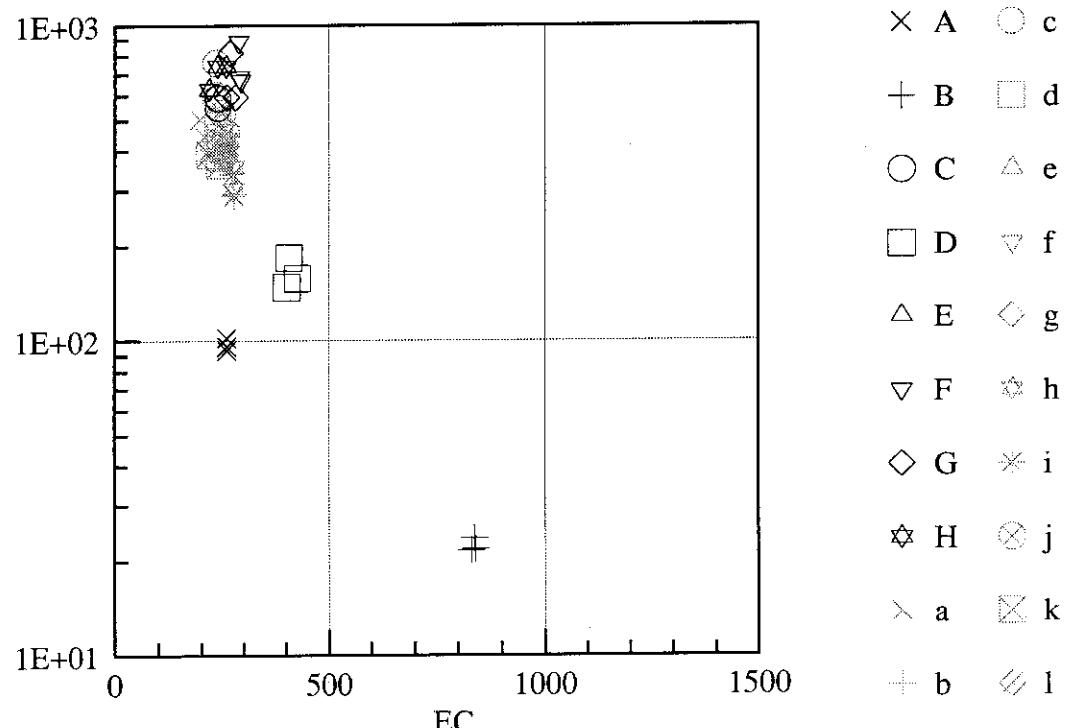


図3.19 サンプルのECとKdの相関 (Cs-137, 豊浦砂)

Kd測定値(ml/g)

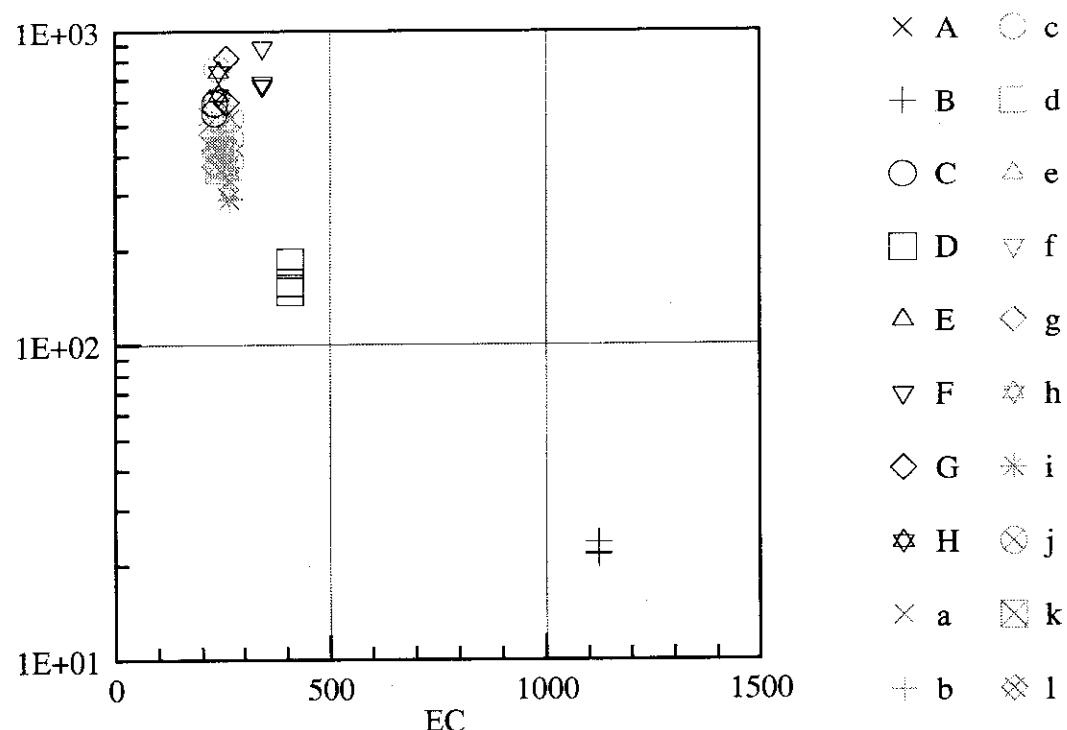


図3.20 ブランクのECとKdの相関 (Cs-137, 豊浦砂)

Kd測定値(ml/g)

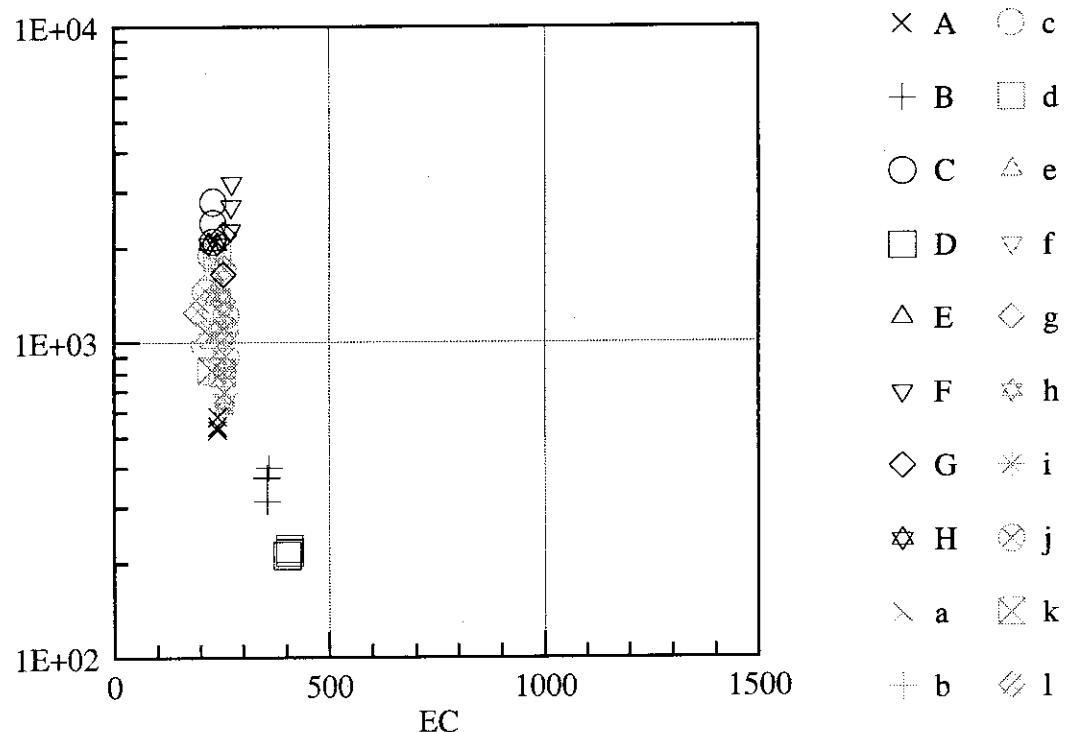


図3.21 サンプルのECとKdの相関 (Cs-137,黒ボク土)

Kd測定値(ml/g)

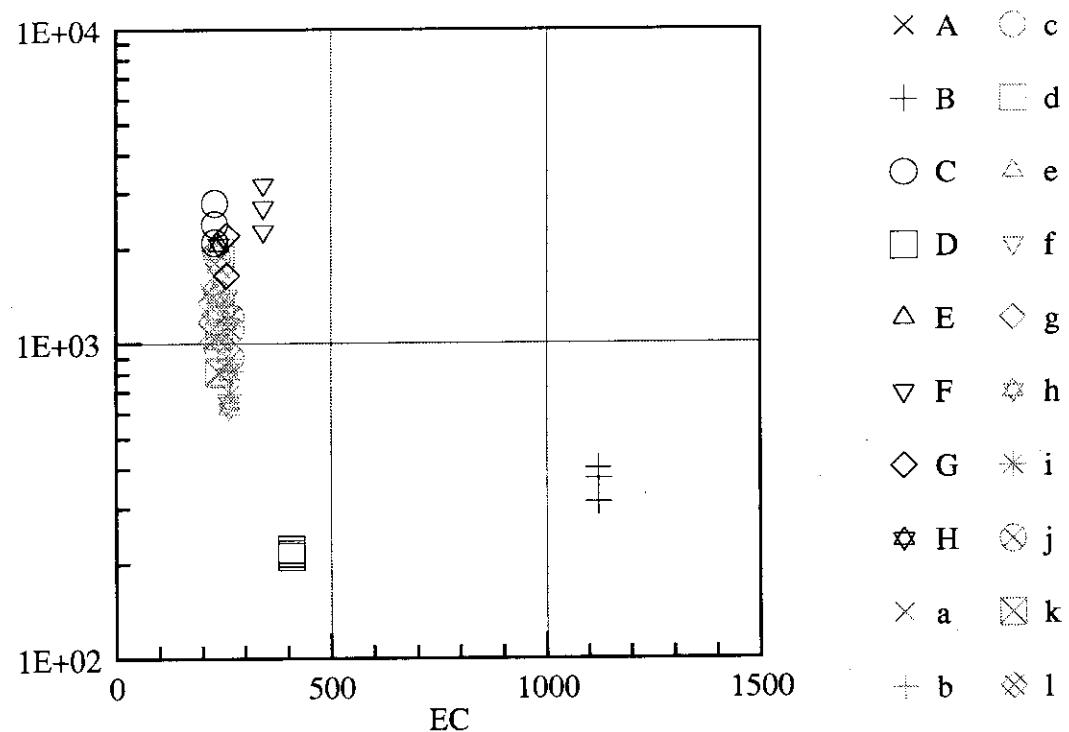


図3.22 ブランクのECとKdの相関 (Cs-137,黒ボク土)

及ぼさないと考えられる。

### 3.4 考察

これらの結果から、ブランクのpH及びECが大きく異なる場合のKd測定値のばらつきは、振とう器による測定値でファクター2～3程度、ハンドシェイクによる測定でファクター2以下となることが確認された。このばらつきは同一実験室の実験(a～l)でも同程度であることから、本研究に参加した実験室の差異による影響は実験者による差異の影響に比して小さく、主として実験者の差異に起因するばらつきであると考えられる。なお、振とう器による測定値のばらつきの大きさは、使用する容器の底面積によって若干変化することが推察される。

## 4. 結論

本比較実験においてKd測定値に大きく影響を与えた実験条件は、液性及び振とう方法の差異である。液性は使用するRI溶液の作成方法及び添加量等に依存し、その差異により測定値がオーダーの幅で変化する可能性があるため、RI溶液の作成方法や添加量を変えた場合はブランクのpH及びECを測定することによってチェックする必要がある。また、振とう器を使った実験は、ハンドシェイクの場合に比べ、Kd測定値が低くなる傾向があり、今回用いた試験容器(内径38mm)ではその差異はファクター2程度である。但し、この差異は試験容器の底面積によって変化すると考えられるため、振とう器を用いた場合は、その平衡状態について十分に考慮する必要がある。なお、これらの物理的、化学的変動要因の影響がない場合の実験者の差異に起因する変動幅は、振とう器による測定値でファクター2～3程度、ハンドシェイクによる測定でファクター2以下となることが示された。

今後は、Kd測定値に対する各種変動要因の影響の大きさについて、本比較実験で明らかとなった実験者の差異に起因するKd測定値の変動の大きさを考慮して検討することにより、標準的測定法について具体的な検討を進める予定である。

## 謝辞

本比較実験及び検討に参加いただいた北海道大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻の佐藤大樹氏、北海道大学工学部原子工学科(現日本原燃株式会社)の中嶋守氏、日本原子力研究所バックエンド技術部の下岡謙司氏、日本原子力研究所環境安全研究部の松本潤子氏、古宮友和氏、田中忠夫氏、向井雅之氏、武田聖司氏、(財)放射線計測協会の小沼義一氏、安忠義氏、安田孝行氏、東海原子力サービス株式会社の小室栄氏、赤石聰氏、クニミネ工業株式会社の緑川欣也氏に感謝いたします。

及ぼさないと考えられる。

### 3.4 考察

これらの結果から、ブランクのpH及びECが大きく異なる場合のKd測定値のばらつきは、振とう器による測定値でファクター2~3程度、ハンドシェイクによる測定でファクター2以下となることが確認された。このばらつきは同一実験室の実験(a~l)でも同程度であることから、本研究に参加した実験室の差異による影響は実験者による差異の影響に比して小さく、主として実験者の差異に起因するばらつきであると考えられる。なお、振とう器による測定値のばらつきの大きさは、使用する容器の底面積によって若干変化することが推察される。

## 4. 結論

本比較実験においてKd測定値に大きく影響を与えた実験条件は、液性及び振とう方法の差異である。液性は使用するRI溶液の作成方法及び添加量等に依存し、その差異により測定値がオーダーの幅で変化する可能性があるため、RI溶液の作成方法や添加量を変えた場合はブランクのpH及びECを測定することによってチェックする必要がある。また、振とう器を使った実験は、ハンドシェイクの場合に比べ、Kd測定値が低くなる傾向があり、今回用いた試験容器(内径38mm)ではその差異はファクター2程度である。但し、この差異は試験容器の底面積によって変化すると考えられるため、振とう器を用いた場合は、その平衡状態について十分に考慮する必要がある。なお、これらの物理的、化学的変動要因の影響がない場合の実験者の差異に起因する変動幅は、振とう器による測定値でファクター2~3程度、ハンドシェイクによる測定でファクター2以下となることが示された。

今後は、Kd測定値に対する各種変動要因の影響の大きさについて、本比較実験で明らかとなった実験者の差異に起因するKd測定値の変動の大きさを考慮して検討することにより、標準的測定法について具体的な検討を進める予定である。

## 謝辞

本比較実験及び検討に参加いただいた北海道大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻の佐藤大樹氏、北海道大学工学部原子工学科(現日本原燃株式会社)の中嶋守氏、日本原子力研究所バックエンド技術部の下岡謙司氏、日本原子力研究所環境安全研究部の松本潤子氏、古宮友和氏、田中忠夫氏、向井雅之氏、武田聖司氏、(財)放射線計測協会の小沼義一氏、安忠義氏、安田孝行氏、東海原子力サービス株式会社の小室栄氏、赤石聰氏、クニミネ工業株式会社の緑川欣也氏に感謝いたします。

及ぼさないと考えられる。

### 3.4 考察

これらの結果から、ブランクのpH及びECが大きく異なる場合のKd測定値のばらつきは、振とう器による測定値でファクター2~3程度、ハンドシェイクによる測定でファクター2以下となることが確認された。このばらつきは同一実験室の実験(a~l)でも同程度であることから、本研究に参加した実験室の差異による影響は実験者による差異の影響に比して小さく、主として実験者の差異に起因するばらつきであると考えられる。なお、振とう器による測定値のばらつきの大きさは、使用する容器の底面積によって若干変化することが推察される。

## 4. 結論

本比較実験においてKd測定値に大きく影響を与えた実験条件は、液性及び振とう方法の差異である。液性は使用するRI溶液の作成方法及び添加量等に依存し、その差異により測定値がオーダーの幅で変化する可能性があるため、RI溶液の作成方法や添加量を変えた場合はブランクのpH及びECを測定することによってチェックする必要がある。また、振とう器を使った実験は、ハンドシェイクの場合に比べ、Kd測定値が低くなる傾向があり、今回用いた試験容器(内径38mm)ではその差異はファクター2程度である。但し、この差異は試験容器の底面積によって変化すると考えられるため、振とう器を用いた場合は、その平衡状態について十分に考慮する必要がある。なお、これらの物理的、化学的変動要因の影響がない場合の実験者の差異に起因する変動幅は、振とう器による測定値でファクター2~3程度、ハンドシェイクによる測定でファクター2以下となることが示された。

今後は、Kd測定値に対する各種変動要因の影響の大きさについて、本比較実験で明らかとなった実験者の差異に起因するKd測定値の変動の大きさを考慮して検討することにより、標準的測定法について具体的な検討を進める予定である。

## 謝辞

本比較実験及び検討に参加いただいた北海道大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻の佐藤大樹氏、北海道大学工学部原子工学科(現日本原燃株式会社)の中嶋守氏、日本原子力研究所バックエンド技術部の下岡謙司氏、日本原子力研究所環境安全研究部の松本潤子氏、古宮友和氏、田中忠夫氏、向井雅之氏、武田聖司氏、(財)放射線計測協会の小沼義一氏、安忠義氏、安田孝行氏、東海原子力サービス株式会社の小室栄氏、赤石聰氏、クニミネ工業株式会社の緑川欣也氏に感謝いたします。

### 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).
- (3) 高橋知之他：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).
- (4) Yasuda H. and Uchida S.: Statistical approach for the estimation of strontium distribution coefficient. Environ. Sci. Technol., 27, 2462 (1993).