

# JNC収着データベースを用いた収着分配係数の 信頼度評価手法の開発

( 技 術 報 告 )

2005年8月

核燃料サイクル開発機構  
東海事業所

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

電話：029-282-1122（代表）

ファックス：029-282-7980

電子メール：jserv@jnc.go.jp

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)

2005

JNC 収着データベースを用いた収着分配係数の  
信頼度評価手法の開発  
(技術報告)

齋藤好彦<sup>1)</sup>, Michael Ochs<sup>2)</sup>, 神徳 敬<sup>3)</sup>,  
陶山忠宏<sup>4)</sup>, 柴田雅博<sup>1)</sup>, 笹本 広<sup>1)</sup>, 油井三和<sup>5)</sup>

要 旨

核燃料サイクル開発機構 (JNC) は、高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の第 2 次取りまとめにおいて、人工バリアおよび天然バリアでの遅延能力を評価する上で重要な放射性核種のベントナイトや岩石への分配係数 (Kd) を JNC 収着データベース (JNC-SDB) として整備した。

JNC-SDB に登録されている Kd は、約 20,000 件に及んでいる。このような膨大なデータを有する JNC-SDB には、様々な試験条件で得られた Kd およびそれに付随する重要なデータが含まれている。そこで、個々の Kd に対し、信頼度をレベル付けするために下記のクライテリアとクラス分けシステムを開発した。

- ・ クライテリア I : 報告書などの記述 (実験方法, 実験条件など) の網羅性の確認
- ・ クライテリア II : 実験方法・実験条件などに基づく個々の収着データの信頼度の確認
- ・ クライテリア III : データ相互間の整合性の観点からのランク付け
- ・ Kd の信頼度を総合評価するためのクラス分けシステム

クライテリア II のチェックポイントでは、固相, pH の調整と制御, 酸化還元状態, 最終の溶液組成, 温度, 固液比と粒子サイズ, 収着率, 核種の初期濃度, 固液分離, 反応時間, 攪拌方法, 核種の添加量, 反応容器, 不確実性の評価, パラメータ変化について信頼度レベルを評価する。

- 
- 1) 核燃料サイクル開発機構 東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部 処分バリア性能研究グループ
  - 2) BMG ENGINEERING LTD, スイス連邦共和国
  - 3) 石川島播磨重工業株式会社
  - 4) 検査開発株式会社
  - 5) 核燃料サイクル開発機構 東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部

Development of Guideline for Evaluating and Categorizing the Reliability of  
Distribution Coefficient Values in the JNC Sorption Database  
(Technical Document)

Yoshihiko Saito<sup>1)</sup>, Michael Ochs<sup>2)</sup>, Takashi Jintoku<sup>3)</sup>  
Tadahiro Suyama<sup>4)</sup>, Masahiro Shibata<sup>1)</sup>, Hiroshi Sasamoto<sup>1)</sup>, Mikazu Yui<sup>5)</sup>

ABSTRACT

Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC) has developed the JNC sorption database (JNC-SDB) for bentonite and rocks in order to assess the retardation property of important radioactive elements in natural and engineered barriers in the H12 report. The database includes distribution coefficient (Kd) of important radionuclides.

The Kd values in the JNC-SDB are about 20,000 data. The JNC-SDB includes a great variety of Kd and additional key information from many different literatures. Accordingly, the following classification guideline and classification system were developed in order to evaluate the reliability of each Kd value.

- Criterion I : Completeness of documentation and type of Kd information
- Criterion II : Quality of reported data from a technical and scientific point of view
- Criterion III : Consistency of data with the majority of related reliable studies
- An overall classification system

The checkpoints in Criterion II evaluate the reliability of each Kd entry in the JNC-SDB ; solid phase, adjustment and control of pH, redox conditions, final solution composition, temperature, solid/water ratio and grain size, sorption value, initial radionuclide concentration, phase separation, reaction time, agitation method, radionuclide loading, reaction vessels, uncertainty estimates, parameter variation.

---

1) Japan Nuclear Cycle Development Institute, Tokai Works, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Waste Isolation Research Division, Barrier Performance Research Group.

2) BMG ENGINEERING LTD, Switzerland

3) Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd.

4) Inspection Development Company Ltd.

5) Japan Nuclear Cycle Development Institute, Tokai Works, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Waste Isolation Research Division

目 次

1. はじめに -----	1
2. JNC-SDB に登録された Kd へ信頼度を付与するための検討 -----	2
3. Kd 信頼度評価のためのクライテリアについて -----	6
3.1 クライテリアⅠ：報告書などの記述（実験方法，実験条件など） の網羅性の確認 -----	6
3.2 クライテリアⅡ：実験方法・実験条件などに基づく個々の 収着データの信頼度の確認 -----	8
3.3 クライテリアⅢ：データ相互間の整合性の観点からの ランク付け -----	23
3.4 クライテリアⅠ，クライテリアⅡおよびクライテリアⅢの評価例 -----	23
4. Kd の信頼度を総合的および定量的に評価するためのクラス分けシステム --	27
5. おわりに -----	30
6. 参考文献 -----	31
 付録：英語版 (Evaluation and categorization of the reliability of Kd values in the JNC-SDB) -----	付(1)

図目次

図-1 データ相互間の整合性の観点に基づく Kd の信頼度評価の一例----- 25

表目次

表-1 クライテリアⅡにおける個々のチェックポイントの重み付け----- 28

表-2 クライテリアⅡに対する信頼度のクラス分け----- 28

表-3 全クライテリアとクラス分けシステム----- 29

## 1. はじめに

地層処分システムにおいて核種がベントナイトや岩石へ物理・化学的に収着されることによる移行遅延は、地層処分システムに期待されている最も重要な安全機能の一つであり、放射性廃棄物を人間環境から隔離することができることを定量的に示すために非常に大切な機能である。高レベル放射性廃棄物処分の性能評価における核種移行解析では、溶液中の核種が固相に収着される程度を示す収着分配係数（以下、「 $K_d$ 」と記す）が、核種の移行遅延を評価する上での重要なパラメータとして用いられている。

核燃料サイクル開発機構（以下、「JNC」と記す）は、高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の第2次取りまとめにおいて、人工バリアおよび天然バリアでの遅延能力を評価する上で重要な核種のベントナイトや岩石への  $K_d$  をデータベースとして整備した（澁谷ほか，1999；以下、「JNC-SDB」と記す）。また、JNC-SDB 整備以降の最新の  $K_d$  を収集し、データの拡充を図るため、1998年から2003年の間に公開された文献を対象に  $K_d$  を収集し、JNC-SDB を更新した（陶山・笹本，2004）。JNC-SDB は、処分研究部が作成し、外部公開したホームページ（<http://migrationdb.jnc.go.jp/>）からもダウンロードし、利用することができ、国内外において幅広く利用されている。JNC-SDB は、使用者の利便性を考慮し、マイクロソフト社製汎用ソフトである Access で作動し、文献やデータの検索だけでなく、分配係数の頻度分布、 $K_d$ -pH 相関図などを調べるための作図機能も有している（澁谷ほか，1999）。

JNC-SDB に登録されている  $K_d$  は、約 20,000 件に及んでおり、様々な試験条件で得られたデータが含まれている。また、データの品質についても一様ではないため、全てのデータを同じレベルの信頼度で評価するのが適切かどうか疑問であり、JNC-SDB に含まれる  $K_d$  の信頼度評価手法を検討することが第2次取りまとめ以降の課題の1つであった。そこで、JNC-SDB に登録されている  $K_d$  の信頼度を定量的に評価するための手法開発の一環として、 $K_d$  取得手法や試験条件の適切性、他の文献値とのデータの整合性などに着目し、データの信頼度を評価するためのガイドライン（指針）を作成した。また、このガイドラインの中で設定した3つのクライテリア（基準）をもとに、 $K_d$  の信頼度を付与するためのクラス分けシステムも考案した。このような手法を用いることで JNC-SDB に含まれるデータの信頼度について客観的な評価を与えられると考えられる。また、今回のガイドライン作成時には、（社）日本原子力学会標準化委員会で提案された「収着分配係数の測定方法—深地層処分のバリア材を対象とした測定

の基本手順（案）」の内容も参考にしており、今後信頼性のある試験データを取得していく上での留意事項としてもフィードバックできると考えられる。

## 2. JNC-SDB に登録された Kd へ信頼度を付与するための検討

高レベル放射性廃棄物処分の性能評価においては、核種移行に対する遅延効果を評価するため、核種の収脱着を水-固相間の分配として単純化してとらえ、分配平衡が瞬時かつ可逆的に起こり収着量は飽和しないと仮定し、その平衡を表す Kd が用いられる（例えば、サイクル機構, 1999）。Kd は、バッチ試験、拡散試験およびカラム試験で測定可能だが、イオン強度、pH 等のさまざまな条件を変えた試験が容易にできるため、バッチ試験で測定される場合が多い（朽山ほか, 1998）。バッチ試験とは、粉碎した試料（ベントナイトや岩石）と、溶液を混合し、注目する溶質を添加して、その濃度比から Kd を算出する方法である。

性能評価で用いる Kd の設定にあたっては、諸外国においてもバッチ試験による Kd が用いられている {例えばスイスの Kristallin-I (Nagra 1994) (Stenhouse 1995), フィンランドの TVO-92 (Hakanen and Holtta 1992) (Muurinen, 1992), スウェーデンの SKB91 (Allard et al. 1991) (Albinsson 1991) など}。しかしながら、バッチ試験で得られた Kd の取得条件（溶液条件など）が想定される処分環境とは異なること、実際にはインタクトな岩盤での収着挙動であること、また、実際の収着現象は、水と固体の接触する界面でゆっくりと起こる不均一反応であり、固体およびその表面近傍の物理・化学的均質性も不確かであるため、実際の処分環境にバッチ法の Kd をそのまま適用することに対して、議論が行われている。このような試験条件と処分環境との違いを補完し、性能評価で用いる Kd を設定する手法として収着モデルの適用についても提案されてきた。1997 年に経済開発協力機構・原子力機関（以下、「OECD/NEA」と記す）主催で開催された Sorption Workshop では、性能評価における Kd 設定の考え方や収着モデルの適用性について、各国の性能評価での取り扱いについて専門家による議論が実施された (OECD/NEA, 2001)。イギリスの Nirex'95 assessment では、「性能評価に Kd を用いているが、Kd は試験条件によって大きく変動するため、試験によって得られた Kd 値を統計学的に処理し、その信頼性を評価している。また、インタクトな岩石中の Kd については、補正ファクターをバッチ法で得られた Kd に掛け合わせることで設定している」(Nirex, 1995)。スウェーデンの SITE-94 Performance Assessment では、「Aspo 仮想処分場の岩石を想定した核種の Kd を設



定しており、海水系の地下水において、酸化条件・還元条件の 2 種類を考慮している。性能評価で用いられた  $K_d$  は、試験値の低い値を基に保守的に設定している」(SKI, 1996)。スイスの Project Opalinus Clay, Safety Report では、「性能評価には公開文献に基づく SDB から設定された  $K_d$  が中心に用いられている。熱力学収着モデルは性能評価に直接用いられるほど十分に完成されていないとの考え方から、SDB からデータを選択するのに用いられている。」(Nagra, 2002), (Bradbury and Baeyens, 2003a, 2003b)。フィンランドの TILA-99, Safety assessment では、「TVO-92 Safety Analysis (Hakanen and Holttta, 1992) における  $K_d$  推奨値をベースにして、新たに  $K_d$  を追加取得し (Vieno and Nordman 1996), 性能評価における  $K_d$  を設定している。また、海水系および非海水系、酸化雰囲気および還元雰囲気、現実的および保守的、それぞれのパラメータを考慮して  $K_d$  を設定している」(Vieno and Nordman, 1999)。性能評価で設定された各元素の  $K_d$  は、整備を行う機関 (国) によって、保守性の考え方、整備状況、設定の時期 (ベースとなる公開文献・データセット) 等が異なっており、同一元素の同一岩石に対する  $K_d$  についても必ずしも同じ値とは限らない。

OECD/NEA での議論の主な結論としては、「熱力学収着モデルを用いて推定した  $K_d$  は直接に性能評価へ適用することはできないとの意見が大勢を占め、性能評価での  $K_d$  設定にあたっては当面バッチ法の  $K_d$  が中心になる。しかし、熱力学収着モデルを用いることによって、処分環境条件の変化に伴う  $K_d$  を推定できることなどもあり、バッチ法の  $K_d$  による設定の妥当性確認などからも、熱力学収着モデルによる評価が重要である」ことが示された (OECD/NEA, 2001) (澁谷・油井, 1998a)。

上記の様な OECD/NEA での国際的な議論も踏まえ、第 2 次取りまとめにおいては、ベントナイトに対しては圧縮ベントナイトにおける実測値を重視するとの観点から、拡散から導出した  $K_d$  を設定し、一方、岩石については、バッチ試験で得られた  $K_d$  をベースに設定した (サイクル機構, 1999)。その際には、バッチ試験で得られた  $K_d$  を収集・整理しデータベース化した JNC-SDB を利用した。岩石に対する核種の  $K_d$  設定にあたっては、JNC-SDB に含まれるデータに対し

- ・ 想定される地下環境条件に比較的近い条件で試験的に得られた値
- ・ 平衡状態におけるデータを基本とするが、収着挙動に経時変化が見られる場合には試験期間内でなるべく平衡状態に近いデータ
- ・ コロイドを形成する元素についてはできる限りコロイドの影響を排除した条件で取得されたデータ
- ・ 初期濃度が地下水中での元素の溶解度以下のデータ

など処分環境に類似した条件への適用を検討し、データ選定を行った（サイクル機構，1999）。しかしながら，設定のためのデータスクリーニングの段階で， $K_d$ の信頼性に疑いがあるデータ（初期濃度が地下水中での元素の溶解度以上のデータなど）も含まれていることが示唆された。また，JNC-SDBに含まれる個々のデータの信頼性については，個々の研究者の判断に基づいており，必ずしも統一的な指針のもとにデータが与えられている訳ではない。そこで，JNC-SDBに含まれるデータに対して，データの信頼度を判断するための統一的な指針（ガイドライン）を考案し，その基準に基づくデータの信頼度を付与する手法を開発することとした。

JNC-SDBに含まれるデータの信頼度について客観的な評価を与えるためのクライテリアとしては，以下の3項目を設定した。各クライテリアにおける評価概要について簡単にまとめる。

#### ① 報告書等に書かれている記述（試験方法，試験条件等）の網羅性の確認

JNC-SDBの入力カラムに含まれる「固相，溶液組成，雰囲気，温度，pH・酸化還元状態（制御方法を含め），核種初期濃度，固液分離方法」について，必要なデータが全て入力されているかどうか（データ入力の有無で評価），また， $K_d$ がどのような形で報じられているか（表形式なのか図式なのか；図の場合，線形なのか対数なのか）に応じてデータの信頼度を評価する。

このクライテリアでは，必要なデータの有無に基づくデータの選定， $K_d$ の報告形態に基づくデータの信頼度評価（クラス1～6の6段階ランク付け）を行う。

#### ② 試験方法・試験条件等に基づく個々の収着データの信頼度確認

試験方法・試験条件等として，JNC-SDBの入力カラムに含まれる「固相，pHの調整・制御，酸化還元状態の制御，最終溶液組成，温度，固液比・粒子サイズ，収着率，核種初期濃度，固液分離方法，反応時間，攪拌方法，反応容器，誤差評価」について，これらに関係するデータの充足，手法の適切さについて確認し，データの信頼度評価（レベルA～Dのランク付け）を行う。

#### ③ データ相互間の整合性の観点からの収着データの信頼度の確認

収着メカニズムに基づけば， $K_d$ にはイオン強度依存性やpH依存性のようなデータ取得条件に応じた傾向性が認められると考えられる。しかしながら，JNC-SDBに含まれるデータには，ある一定の条件でのみ取得された $K_d$ が多く，収着メカニズムから推察される様な傾向性と一致した整合性のあるデータかどうか判断できない（例えば，pH=7の条件でのみ $K_d$ が得られており， $K_d$ の値に

幅があるような場合)。そこで、Kd の傾向性が認められるようなデータとの比較により、データ相互間の整合性について確認し、データの信頼度評価（レベル A～D のランク付け）を行う。

最終的な個々のデータに対する信頼度は、上記①～③の各クライテリアにおけるデータの信頼度評価（レベル A～D のランク付け）結果をもとに総合的に評価される。また、その結果をもとに信頼度に応じてデータをクラス分けする。

次章（3章）では、上記①～③の各クライテリアにおける信頼度評価のための具体的な内容（個々の評価項目において、レベル A～D にランク付けするための基準）、各クライテリアでの信頼度評価結果の一例および各クライテリアでの信頼度評価結果をもとに総合的に評価するための手法、最終的に信頼度に応じてデータをクラス分けする手法について詳細に述べる。

### 3. Kd 信頼度評価のためのクライテリアについて

2章で述べた JNC-SDB に含まれる Kd の信頼度評価のための 3 つのクライテリア (I ~ III) に関する具体的な内容、個々のクライテリアにおける評価項目、評価にあたっての判断基準について、以下にまとめる。

なお、評価にあたっては、JNC-SDB に登録されている個々の Kd に対して実施する (JNC-SDB の中では、個々の Kd の値に対し固有の ID 番号が付与されている)。1 つの文献の中でも、複数の試験条件で取得された Kd を報告している場合もあるが、その場合、各々の試験条件で得られた個々の Kd について評価を行うため、同一の文献中で報告されている Kd でも信頼度評価の結果が異なる場合も有る。

#### 3.1 クライテリア I : 報告書などの記述 (実験方法, 実験条件など) の網羅性の確認

このクライテリアでは、まず、Kd の出展となった報告書 (文献) に書かれている記述 (実験方法, 実験条件等) の網羅性が十分であるか? を確認し、Kd の信頼度評価の対象とするデータを選定する (クライテリア I -a)。この過程で、記述の網羅性が不十分と判断されたデータは、信頼度評価の対象外のデータとなるため、以降の評価作業 (すなわち、Kd の報告形態に基づく信頼度評価、クライテリア II および III による評価) は実施しない。

次に、文献中で Kd がどういう形で報じられているかに応じてデータの信頼度を評価する (クライテリア I -b)。例えば、表形式でデジタル値の Kd が報告されている場合、グラフにより収着量を % 単位で表示されている場合に比べて信頼度は高くなる。これは、後者の場合、収着量をグラフから読み取り、収着量と液固比から Kd を算出する作業が必要であり、グラフからのデータの読み取りの際に誤算が生じる可能性が高いと考えられるためである。

以下にクライテリア I -a および I -b における評価項目、評価にあたっての判断基準について述べる。

##### 1) クライテリア I -a

クライテリア I -a は、各入力カラムや文献における記述の網羅性についての確認 (I -a.1) と単位記述の有無の確認 (I -a.2) からなる。

クライテリア I -a.1 では、JNC-SDB の入力カラムに含まれる以下の項目について、必要なデータが全て入力されているかどうか、出展となった文献に記述があるかどうかについて確認する。

- ・ 元素
- ・ 固相
- ・ 溶液組成
- ・ 試験雰囲気
- ・ pH（または pH 緩衝性に関する情報：例えば、portlandite equilibrium）
- ・ pe/酸化還元状態（酸化還元に敏感な系の場合のみ）
- ・ pe 制御方法（酸化還元に敏感な系で還元条件を必要とする場合のみ）
- ・ 初期放射性核種濃度（溶解度制御を必要としない放射性核種は除く）
- ・ 固液分離方法
- ・ 試験のタイプ（バッチ試験と異なる試験の場合のみ）

仮に、必要なデータが入力されていない場合や文献中に記述が無い場合、対象となる  $K_d$  の信頼度は無いものと判断され、以降の評価作業は実施されない。全ての必須項目に対する情報が網羅されていれば、次の評価であるクライテリア I -a.2 による評価を実施する。

クライテリア I -a.2 では、単位に関する記述の有無の確認を行う。単位に関する情報が無い場合、対象となる  $K_d$  の信頼度は無いものと判断され、以降の評価作業は実施されない。

## 2) クライテリア I -b

ここでは、文献中での  $K_d$  の報告形態をもとに、データの信頼度評価を以下の判断基準に基づき行ない、クラス 1～6 の 6 段階にランク付けする。信頼度はクラス番号が小さいほど相対的に高い。

- ・ クラス 1：表形式で  $K_d$  の値が与えられている場合
- ・ クラス 2：表形式で収着%として与えられている場合、または表形式で残留濃度が与えられている場合
- ・ クラス 3： $K_d$  が線形グラフで与えられている場合
- ・ クラス 4：収着%が線形グラフで与えられている場合、または残留濃度が線形グラフで与えられている場合
- ・ クラス 5： $K_d$  が対数グラフで与えられている場合
- ・ クラス 6：収着%が対数グラフで与えられている場合、または残留濃度が対数グラフで与えられている場合

### 3.2 クライテリアⅡ：実験方法・実験条件などに基づく個々の収着データの信頼度の確認

このクライテリアは、 $K_d$ の信頼度評価にあたり技術的および科学的観点から最も重要な評価である。ここでは、実験方法・実験条件として、JNC-SDBの入力カラムに含まれる「固相、pHの調整・制御、酸化還元状態の制御、最終溶液組成、温度、固液比・粒子サイズ、収着率、核種初期濃度、固液分離方法、反応時間、攪拌方法、反応容器、不確実性評価、パラメータ変化」について、これらに関係するデータの充足、手法の適切さについて確認し、データの信頼度評価を行なう。評価にあたっては、それぞれの $K_d$ の出展となった元文献に遡り、情報をチェックすることが必要である。その際には、JNC-SDBに登録されている $K_d$ が1点1点のデータが単独に測定されたものなのか？それとも収着等温線のようなデータ群として取得されたものなのかもチェックされる。以下に各項目に対する評価にあたっての判断基準についてまとめる。

#### Ⅱ-a：固相

固相の同定および固相の表面特性の把握が十分に行なわれているかを評価する上での注意点を以下にまとめる。この信頼度評価は、測定された $K_d$ 値の使用のためだけでなく、適切な試験条件等を検討する上でも重要である。固相の特性の把握が十分かどうかの判断にあたっては、以下の3つの重要な情報が必要である。

- ・ 主要な構成鉱物の組成に関する情報。
- ・ 随伴鉱物或いは不純物に関する情報。
- ・ 表面特性に関する情報：最低でも、陽イオン交換容量（以下、「CEC」と記す）の様な固相の単位重量当り収着容量の測定値、或いは単位重量当りの異なるサイト密度測定値が必要。

しかしながら、固相の特性を十分に把握するために必要となる情報は、固相の複雑さにも依存する。

固相の同定は、単一・単純な固相の場合は容易であるが、複合・複雑な固相では難しい。以下に固相情報が十分かどうかを判断する際の注意点をまとめる。

- 1) 単一・単純な固相であるか、或いは不純物や随伴鉱物を含んでいるかどうかを確認する。ちなみに、固相の表面特性に関する情報（例えば、CEC）は、

試験条件等を検討する際、適切な核種添加量を決定する上でも必要な情報である。

- 2) 単一・単純な固相である場合、固相の同定という観点では、他に補足する情報は無い。
- 3) 複合・複雑な固相の場合（例えば、多量の不純物を含む場合や幾つかの異なる鉱物から構成されている場合）、構成鉱物に関する補足情報が必要である。この場合には、天然の固相試料などが該当する。
- 4) 固相試料に対し、粉碎や篩い分けといった処理が行なわれている場合、粒子サイズに関する情報も必要となる（II-f参照）。また、化学的な処理が施されている場合（例えば、方解石を除去するための酸洗浄および酸化還元に鋭敏な固相の場合における酸化還元状態の変化など）、施された処理方法や処理後の鉱物に関する情報も必要である。
- 5) 商用的に幅広く用いられている固相（例えば、MX-80, Kunigel V1, 粘土鉱物学会により標準的粘土鉱物とされている SWy-1, Min-U-Sil SiO<sub>2</sub> 等）については、この様な固相に関する詳細情報は広く知られており、文献で確認することができる。従って、JNC-SDB の中に含まれるこの様な固相の場合、もし文献中に固相情報の記述が無い場合でも、そのデータはレベル A またはレベル B と評価する。但し、この判断は、この様な固相が一般的に標準とされている状態で用いられている場合にのみ適用される。固相の洗浄などが行われた場合は、その方法やその結果どの様な変化が生じたかについての情報が必要である。

以上の様な注意点を踏まえ、収着試験における固相情報の記述の適切性に関しては、以下の基準をもとに3つの信頼度レベルを付与する。

- A) 固相の表面特性に関する情報だけでなく主要・微量の鉱物に関する情報も判っている場合。例えば、単一・単純な固相の場合。或いは複合・複雑な固相で、固相の同定が十分に行なわれている場合。いずれの場合についても、固相試料に対して何の処理も施されていないか、処理が施されていても処理方法や処理後の鉱物に関する情報が記述されている場合。
- B) 固相の表面特性に関する情報だけでなく主要鉱物に関する情報も判っている場合。例えば、単一・単純な固相であるが、不純物を含む可能性がある場合（例えば、未精製の粘土などで情報が記述されていない場合）。或いは、複合・複雑な固相であり、付随する不純物を含む可能性がある場合。また、固相試料の処理が施されていて、鉱物組成にマイナーな変化が生じている可能性がある場合。

C/D) 主要鉱物もしくは固相の表面特性に関する情報が欠けている場合。例えば、CEC の情報が無い場合（或いは収着能力を示す様な他の測定値が無い場合）、或いは天然の粘土試料の様に含まれる粘土鉱物がスメクタイトなのかカオリナイトなのかイライトなのかについて不明な場合。固相の同定が行なわれていない土壌試料・粉碎された岩石試料の場合。また、固相試料の処理により、鉱物組成に顕著な変化が生じていると考えられ、そのことが記述されていない場合。

## II-b : pH の調整と制御

核種の収着試験における pH の調整と制御に関する情報を評価する上での注意点を以下にまとめる。

放射性核種の収着を制御する重要な溶液パラメータの1つは pH である。収着試験における pH は、Kd の評価や試験条件の適切性を確認する上で重要なパラメータであり、炭酸塩鉱物の安定性や放射性核種の溶解度を評価する上でも重要である。また、pH は、収着反応を平衡に保つため、試験期間中ほぼ一定に保たなければならない。収着試験における pH の調整と制御の方法としては、以下の2通りの場合が挙げられる。

- ① pH の制御は行なわれていないが、試験系は平衡状態であり、試験の最後に pH が測定されている場合。この場合、試験後の pH が試験前の値と比べて大きく変化していないことが重要である。
- ② 酸-塩基や pH 緩衝液の添加により、試験期間中、pH が制御されている場合。この方法は、pH を関数とし、複数の Kd を測定したい場合に用いられる。この場合、用いられる酸-塩基や pH 緩衝液が放射性核種の化学形、固相表面での放射性核種の収着挙動に影響を与えないことが記述されていることが必要である。仮に、Kd に影響を与える可能性がある緩衝液（不活性ではない緩衝液）が添加量の記述も無く用いられている場合、この様な方法で得られた Kd の信頼度は低いと判断する。

収着試験における pH の調整と制御に関する記述情報の適切性については、以下の基準をもとに4つの信頼度レベルを付与する。

A) 平衡に達していること、または少なくとも準平衡で安定した状態に達しており、pH の値が試験後に測定されている場合。または、pH 調整のために用



いられた緩衝液が不活性である（すなわち  $K_d$  に影響を与えない）ことが判っている場合や緩衝液が放射性核種の収着挙動に影響を与えないことが溶存化学種計算により示されている場合。或いは緩衝液の使用の有無にかかわらず、同じ  $K_d$  が得られている場合。なお、不活性ではない pH 緩衝液が添加されている試験系でもレベル A に該当する場合もあり得る（レベル C のチェックポイントにおける  $K_d$  が炭酸濃度を関数として測定されている場合の記述を参照）。

- B) 試験後の pH 値を記述しているが、pH の範囲（1 pH 単位以内）で記述されている場合。または、pH の測定は試験前のみだが、試験系の pH が良く緩衝されている場合（すなわち、不活性な緩衝剤が用いられている場合）。
- C) pH の制御が行われておらず、試験前の pH だけが記述されている場合。または、不活性ではない pH 緩衝液が添加されている場合（例えば、酢酸塩の様に錯体形成を引き起こす緩衝液が添加された場合）。但し、 $K_d$  が炭酸濃度の関数として測定されており（ $K_d$  への炭酸塩の効果が記述されている）、炭酸濃度が、同時に pH を制御するために用いられている場合、結果として、試験系の pH が炭酸により制御されているため、レベル A に評価される。
- D) pH の制御が行われておらず、試験前の pH の範囲（1 pH 単位以内）だけが記述されており、試験後の pH に関する情報が記述されていない場合。

注釈) レベル D で要求される条件にも適していない場合、 $K_d$  データの信頼性は低いと判断し、unreliable なデータとして、信頼度評価の対象データから除外する。また、もし  $K_d$  に影響を与える可能性がある緩衝液（不活性ではない緩衝剤：例えば、酢酸塩や炭酸塩）が添加量の記述も無く用いられている場合も、この様な試験条件で得られた  $K_d$  の信頼性は低いと判断し、unreliable なデータとして、信頼度評価の対象データから除外する。

## II-c : 酸化還元状態

核種の収着試験における酸化還元状態に関する情報の記述の適切性について判断する上での注意点を以下にまとめる。

- まず、試験系が酸化還元状態に鋭敏な系なのかどうかに着目する必要がある。酸化還元状態に鋭敏な系の場合、試験対象となる放射性核種のみが酸化還元状態に鋭敏なのか、或いは他の成分（例えば、固相や溶存化学種）も酸化還

元状態に鋭敏なのか確認する必要がある。

- 上記の様な観点で言えば、このチェックポイント (II-c) では、収着性核種の酸化還元状態のコントロールについて対象とするものであり、試験系全体の酸化還元状態のコントロールについて言及するものではない。
- もし試験系に酸化還元状態に鋭敏な溶存成分 (例えば、有機物) や固相 (例えば、Fe, Mn を含む固相) が含まれている場合、最初の状態と酸化還元状態が異なることにより、同時に、多数の酸化還元平衡に影響を与える可能性がある。その様な場合、平衡状態を確認することや、どの様な固相が存在しているかを判別することは困難である。なお、固相や溶液組成への影響については、II-a や II-d のチェックポイントで確認する。
- このチェックポイントにおいて、“試験のために強いられた酸化還元状態”は、必ずしも還元剤を加えたことにより強いられた酸化還元状態だけを意味するのではなく、例えば天然で還元状態にあった堆積物を室内に持ち込むことによる酸化 (酸化還元状態の変化) といった強いられた酸化状態の意味も含んでいる。
- 先にも述べた様に、このチェックポイント (II-c) では、収着性核種の酸化還元状態のコントロールに着目しており、データの品質に関しては、以下の2つの要求事項が挙げられる。信頼度レベルは、次の2つの情報の信頼性に対する記載レベルの違いにより付与する。
  - ① 収着性核種の酸化還元状態のコントロールおよび酸化還元状態の確認に関わる情報の信頼性。
  - ② 還元剤を加えることによる放射性核種の speciation 変化の様な影響が生じていないことに関わる情報の信頼性。

以上の様な観点を踏まえ、収着試験における酸化還元状態に関する記述の適切性について、以下の基準をもとに2つの信頼度レベルを付与する。

A/B) 上記の①および②に関する情報が網羅されている場合。これは以下の様な場合を含んでいる。

- 試験系が収着の観点で酸化還元状態に鋭敏でなく、還元剤も使用されていない場合 (すなわち、収着性の放射性核種はある1つの酸化還元状態のみである場合)。
- 酸化還元鋭敏な試験系は、(試験前から既に) 平衡状態にあり、周囲の状態により維持されている場合。
- 酸化還元状態に鋭敏な放射性核種に対して酸化還元状態をコントロールした試験であり、複数の還元剤により、同様な結果が得られている

場合。

C/D) 上記の①および②に関する情報が評価できる場合。これは、以下の様な場合を含んでいる。

- ・1種類の還元剤を用いて酸化還元状態に鋭敏な放射性核種に対する酸化還元状態のコントロールを行っても効果的であることが試験や文献等で評価できる場合、また、放射性核種の収着挙動への影響も十分に小さいことが評価できる場合。
- ・複雑な（影響を及ぼす可能性のある）還元剤が用いられているが、還元剤による放射性核種の speciation への影響が評価できる場合。
- ・レベル A/B ほど、還元状態が明確に定義されていないが、核種の酸化還元状態が別途測定されている場合。放射性核種の酸化状態が、独立して測定されている場合（例えば、放射性核種の酸化状態を確認した低酸素条件の試験）。このような測定における酸化還元状態の信頼度評価については、評価者 (operator) のエキスパートジャッジが必要である。

注釈) 酸化還元状態に関する記述が C/D のレベルを満たしていない場合、unreliable なデータとして、信頼度評価の対象データから除外される。例えば、酸素の存在を最小にすることによってのみ還元状態を達成しようとする場合（例えば、窒素雰囲気で行う試験）は、一般的に unreliable なデータとして分類する（レベル C/D に記述があるように核種の酸化状態がある程度確認できるような場合を除く）。また、（多くの有機酸に認められる様な）非常に錯形成能の高い還元剤が濃度を特定すること無く用いられている場合、このような条件で得られたデータは、unreliable なデータとして、信頼度評価の対象データから除外する。

## II-d : 最終の溶液組成

溶液が炭酸を含んでいる場合、試験条件が炭酸分圧で示されているケースもある。試験系の pH や酸化還元状態を調整・制御している場合、用いられた酸一塩基、pH 緩衝液や還元剤に関する情報も溶液組成に影響を与えるため重要である。

収着試験における溶液組成に関する情報の記述の適切性について、以下の基準をもとに2つの信頼度レベルを付与する。

A/B) 最終の溶液組成が明確であり（直接分析されている場合、或いは初期

の試験条件と **speciation** の計算により評価されている場合), 平衡状態に達しているか, 試験系が良く制御されている場合。溶液組成には, 主要成分が全て含まれており, また溶液中に収着挙動に影響を与えると考えられる微量成分(炭酸塩や他の錯形成塩など)が含まれている可能性がある場合, それらが評価されていることが必要である(微量成分の中には不明なものも含まれている可能性はある)。天然の地下水試料が用いられている場合, 溶液の電荷バランスは  $\pm 5\%$  以内に収まっていることが必要である。最終の溶液組成情報が次の①または②を使って得られる場合。① 実際の収着試験サンプル溶液の分析結果。② 実際の収着試験前の平衡前溶液についての分析結果。

C/D) クリティカルな主要溶液組成が分かっているか, 若しくは, 概ね評価することが可能であるが, 溶液組成の一部が不明確である場合。例えば, 溶液の主要成分の一部が分析されていない場合や溶液中に収着挙動に影響を与えると考えられる微量成分が含まれている可能性があるにも拘らず, 評価がされていない場合。天然の地下水試料が用いられている場合, 溶液の電荷バランスは  $\pm 10\%$  以内に収まっていることが必要である。

注釈) 溶液組成に関する記述がC/Dのレベルを満たしていない場合, その様な条件で得られた **Kd** の信頼性は低いと判断し, **unreliable** なデータとして, 信頼度評価の対象データから除外される。

## II-e : 温度

ここでは, 収着試験における温度に関する情報の記述の適切性について, 以下の基準をもとに2つの信頼度レベルを付与する。

A/B) 温度が特定され, 一定である場合(例えば, 室温など)。または, 試験系の温度が調整・制御されている場合。

C/D) 温度が特定されていない場合。

## II-f : 固液比と粒子サイズ

核種の収着試験における固液比と粒子サイズに関する情報の記述の適切性について評価する上での注意点を以下にまとめる。

- 容器壁面への核種の収着による  $K_d$  への影響を防ぐため (II-m 参照), また, 粒度分布範囲が広い固相試料に対する再現性 (reproducibility) と代表性 (representativeness) を確保するためにも, 試料の粒子サイズにも依存するが少なくとも 100 mg の固相試料が用いられていることが必要である。

ここでは, 収着試験における固液比と粒子サイズに関する情報の記述の適切性について, 以下の基準をもとに2つの信頼度レベルを付与する。

A/B) 十分な量の固相試料がそれぞれの反応容器に加えられており,

- a) 固相の表面積が容器壁面の表面積よりはるかに大きい場合 (少なくとも固相の表面積は  $5 \text{ m}^2$  以上であること)。なおかつ,
- b) 固相試料の再現性と代表性が確保されている場合。十分な量の固相試料とは, 表面積と均一性に明らかに依存する。上記の2つの要求を満足することは, 大きな表面積を持ち, 比較的均一な粘土やベントナイトのような固相では, 特に問題にはならない (ここで, “十分な量”とは少なくとも 100 mg の固相試料を用いていることを意味する)。一方, 岩石 (表面積, 粒子サイズ, 固相試料の複雑性にもよるが) の場合は“十分な量”とは 1 g から数 g を意味する。

C/D) 上記A/Bに該当しない場合。

## II-g : 収着率

核種の収着試験における収着率に関する情報の記述の適切性について評価する上での注意点を以下にまとめる。

収着率が小さ過ぎる場合および大き過ぎる場合 (収着量が 0% や 100% に近い場合) は, 測定誤差が大きくなるため, これを避けるような適切な試験条件が選定されているかどうか確認することが必要である。収着率に関しては, 適切な固液比 (II-f 参照) や適切な初期濃度 (II-h 参照) に設定することで, 調整することも可能である。しかしながら, 放射性核種の選定によっては, 核種の溶解度や分析下限により, 制約を受けることもある。

ここでは、収着率に関する情報の記述の適切性について、以下の基準をもとに3つの信頼度レベルを付与する。

- A) 収着率が5～95%の範囲に入る場合。
- B) 収着率が2～98%の範囲に入る場合。
- C/D) 上記AおよびBに該当しない場合。

## II-h : 核種の初期濃度

核種の初期濃度のチェックポイントは、収着試験において、核種の沈殿による影響の有無を確認する上で重要な項目である。ここでは、収着試験における核種の初期濃度に関する記述の適切性について、以下の基準をもとに3つの信頼度レベルを付与する。

- A) 放射性核種の濃度が溶解度により制限されない場合。または、核種の初期濃度が明らかに溶解度以下である場合(少なくとも溶解度の1/5以下の濃度である場合)。例えば、ある核種の溶解度が $10^{-6}$ から $10^{-8}$  Mの幅で不確実性がある場合、核種の初期濃度が $2 \times 10^{-9}$  M以下であることが必要である。
- B) 核種の初期濃度は明らかに溶解度以下であるが、溶解度の1/5以上の濃度である場合。
- C/D) 核種の初期濃度が非常に低く、かつ、核種の溶解度制限固相に関する熱力学データが無く、溶解度が確認できない場合。

注釈)

- ・溶解度は熱力学計算、または、収着試験と同じ試験条件下で得られた溶解度試験のどちらかで定めることができることに注意する。
- ・核種の初期濃度が溶解度を越えている場合、得られたKdの信頼性は低いと判断されるため、unreliableなデータとして、信頼度評価の対象データから除外される。

## II-i：固液分離方法

収着試験において、コロイドやフィルターへの収着等の影響がある場合、固液分離方法の違いにより異なった結果が得られる。従って、異なった固液分離方法で同一、或いは非常に近い結果が得られれば、コロイドやフィルターへの収着等による影響が無いことが確認できる。その様な研究はレベル A にランクされる。コロイドの影響が取り除かれていると推定されるが、レベル A の様な直接的な証拠が無い場合、レベル B にランクされる。ここでは、収着試験における核種の固液分離方法に関する記述の適切性について、以下の基準をもとに3つの信頼度レベルを付与する。

- A) 異なった固液分離方法を用いて、同一、或いは非常に近い結果が得られている場合。この場合、少なくともコロイドを取り除く方法の1つとして、限外濾過または高速遠心分離といった方法が適用されている必要がある。従って、限外濾過と高速遠心分離といった2つの効果的な方法でデータが比較されている場合が最適である。なお、このような固液分離方法の比較がそれぞれの  $K_d$  値に要求されているわけではない。例えば、効果的な固液分離方法と標準的な固液分離方法を比較する試験が代表的なサンプルで行われ、コロイドの様な小さな粒子が無いことが確認されている場合、固液分離方法が標準的な方法のみであったとしても、全データについてレベル A を付与する。
- B) 固液分離方法としては、1種類の方法だけが適用されているが、超遠心分離や限外濾過といった方法が用いられ、コロイドの様な小さな粒子による影響やフィルターへの収着の影響が無いことが確認されている場合。
- C/D) 固液分離方法としては、1種類の方法だけが適用されており、遠心分離や公称  $0.01\sim 0.45\mu\text{m}$  のメンブランフィルターといった通常の固液分離方法であり、コロイドの様な小さな粒子による影響やフィルターへの収着による影響が無いことが確認されていない場合。なお、岩石を対象とした高イオン強度溶液での試験の様にコロイドの影響がないことが明らかな場合、通常の固液分離方法が適用されていてもレベル A とする。

注釈) 固液分離方法についての具体的記述が無い場合やコロイドやフィルターへの収着等の影響があると考えられる場合、その  $K_d$  の信頼性は低いと判断されるため、unreliable なデータとして、信頼度評価の対象データから除外する。

## II-j : 反応時間

収着試験における反応時間が適切に設定されているかどうかを評価する。収着試験における反応時間に関しては、以下の基準をもとに 2 つの信頼度レベルを付与する。

- A/B) 異なる反応時間で同等もしくはそれに近い結果が得られている試験の場合。または、試験系が平衡に達していることが、別途、速度論的な試験により示されている場合。
- C/D) 反応時間の設定は 1 ケースであるが、十分に長い反応時間が設定されている場合。一般的に試験系が平衡に達したと考えられる反応時間は、収着する固相の複雑さと収着の強さによって異なる。イオン交換反応による純粋な粘土鉱物への Sr の収着挙動は、1 日程度で平衡に達すると見積もられる。一方、複雑な固相への 3 価のアクチニドの収着挙動は、平衡に達するまでに数日から数週間の時間を要する場合も想定される。従って、速度論的なデータが無い場合、このチェックポイントには、評価者 (operator) によるエキスパートジャッジが必要になる。

注釈) レベル C/D の要求に合わない場合、すなわち、反応時間がリーズナブルに長く、試験系が平衡に達したと考えられない場合、unreliable なデータとして信頼度評価の対象データから除外される。

## II-k : 攪拌方法

収着試験における攪拌方法が適切かどうかを評価する。収着試験における攪拌方法に関しては、以下の基準をもとに 2 つの信頼度レベルを付与する。

- A/B) 速度論的情報により十分平衡に達していることが示されている場合以外は、すべてのケースで適切な攪拌が要求される。攪拌の方法としては、振とうによる方法が最も好ましい。攪拌棒による攪拌は、試料の摩耗が起こるため好ましくないが、アルミナのような単一・単純な結晶化した固相や容易に懸濁する非常に小さい粒径の固相の場合は問題ない。
- C/D) 上記 A/B に該当しない場合。



## II-I : 核種の添加量

収着試験における核種の添加量が適切かどうかを評価する。

収着試験において、理想的には、核種の添加量に応じて  $K_d$  の値が求められている場合や核種の添加量が少ない場合が望ましい。一般に、収着サイトが過剰に存在し、核種の収着しているサイトの影響が小さい場合、ラングミュア一型の収着等温線（線形収着）で収着挙動の評価が可能である。単純な固相（ある種のベントナイトも含まれる）では、かなり高濃度の核種添加量の領域まで、線形な収着等温線が適用可能である。一方、他のケースでは、 $K_d$  は核種添加量に大きく影響される。

ここでは、収着試験における核種添加量の適切性について、以下の基準をもとに3つの信頼度レベルを付与する。

- A) 溶液組成および固液比が一定の条件で、少なくとも1つの収着等温線が決定されており、かつ、少なくとも幾つかの試験データは微量の放射性核種濃度において取得されている場合（すなわち、少なくとも幾つかのデータは線形収着領域に含まれる場合）。
- B) 収着等温線は求められていないが、少なくとも放射性核種の初期濃度や固液比を変えた試験が行われている場合。そして、幾つかのデータは微量の放射性核種濃度において取得されている場合（すなわち、幾つかのデータは線形収着領域に含まれる場合）。
- C/D) 上記A, Bの様に条件を変えた試験が行われていない場合。

## II-m : 反応容器

収着試験において、反応容器として適切な材質の容器が選定されているか、また容器に核種が収着した場合の補正が正しく行なわれているかを評価する。以下に、幾つかの代表的な材質を例に収着試験における容器材質としての適切性や容器へ核種が収着した場合の補正の重要性および注意点について述べる。

収着試験における反応容器の材質としては、高密度ポリエチレン樹脂 (HDPE) やテフロンが最も好ましい。次いで、ポリエチレン樹脂 (PE) が好ましい。ガラスは、高 pH や低 pH 条件では溶解する可能性がある。但し、ガラスは、ポリエチレンよりも気密性が高いという特性がある。

容器壁への核種の収着量の補正は、もし、ブランク試験によってその補正が

無視できることが示されれば、必ずしも必要なことでは無い。但し、以下の様な場合、正確に  $K_d$  を測定するためには、容器壁への核種の収着量の補正が必要になる。

- ・ 容器への収着が固相への収着より強い場合。
- ・ 固相の表面積に比べ、容器の表面積の方が大きい場合。

上記の様な場合を除けば、固相への収着の方が容器への収着より、はるかに大きい。

また容器への収着が i) 固相が存在しない場合：ブランク試験（固相と放射性核種との間で競合が無い場合）と ii) 固相が存在する場合（固相と放射性核種との間で競合が有る場合）で同じではない。容器壁面への収着は、通常、固相が存在しない場合より、固相が存在する場合の方が小さい。従って、ブランク試験での容器壁面への収着量をもとに、容器壁面への収着が補正された場合、容器壁面への収着を無視した場合よりも誤差が大きくなる可能性がある。

もし、容器壁への収着の影響を正確に把握するなら、試験後に（例えば、酸による洗浄により）容器壁に収着した放射性核種を脱離し、試験前後でのマスバランスを確認することが必要である。

ここでは、収着試験における反応容器に関する情報の適切性について、以下の基準をもとに3つの信頼度レベルを付与する。

- A) 適切な反応容器が使用されている場合（試験によっては、収着性だけでなく  $O_2$  や  $CO_2$  に対する密閉性も考慮されている）。反応容器壁への核種の収着量の補正が行われているか、或いは、反応容器壁への収着が無視できることが示されている場合。もし、容器壁への収着の影響が補正される場合、試験後に容器壁に収着している放射性核種を（例えば、酸洗浄で）脱離し、試験前後でのマスバランスを確認していることが必要である。なお、反応容器壁への核種収着量の影響が明らかに  $K_d$  値に比べ低いため（ $K_d$  に換算して、少なくとも2桁程度低い）、反応容器壁への核種の収着量の補正が行われていない場合もレベル A とする。
- B) 適切な容器が使用されているため、容器壁への収着補正が行われていない場合。
- C/D) 適切な容器が使用されていない場合（これは、試験条件によるが、しばしばガラスの場合にあてはまる）。或いは、容器壁への収着の補正がブランク試験のみに基づいて行われている場合（すなわち、固相が存在した場合の容器壁への収着量の影響について確認していない場合。この場合、容器壁への収着を過剰に見積もることになる）

## II-n : 不確実性の評価

一般的に、繰り返し行われた収着試験に基づく不確実性は、誤差に伴う不確実性よりも好ましい。従って、ここでは、信頼度レベルの違いは、主に、繰り返し測定により得られた実際の情報量の違いに基づき判断する。例えば、レベルAでは、全ての試験がそれぞれ繰り返されている場合；レベルBでは、サンプリングと分析が繰り返されている場合；レベルCでは、繰り返し試験が行われていない場合である。

繰り返し行われた試験に基づく  $K_d$  値は、1回のみの試験で得られた値よりも信頼性が高い。但し、この項目で対象とする試験値は、ある一点の条件で得られた  $K_d$  値 (single-point  $K_d$  Value) であるため、「再現性が良く、系統的な誤差が明確に示される様な pH エッジ, 等温線, 速度論データを求める試験の場合」においては、この項目は実質的に不要になると考えられる (II-o 参照)。

ここでは、収着試験における不確実性の評価について、以下の基準をもとに4つの信頼度レベルを付与する。

- A)  $K_d$  の不確実性が繰り返し行われた収着試験に基づき求められている場合。  
(繰り返し数は、少なくとも  $n=2$  以上)。
- B)  $K_d$  の不確実性が繰り返し数  $n=1$  の収着試験で、繰り返しサンプリングおよび分析に基づき求められている場合。この場合の不確実性は、測定および分析の誤差に起因するものであると考えられる。
- C)  $K_d$  の不確実性が分析または試験方法の不確実性に基づき評価されている場合。
- D) 誤差の評価、繰り返しサンプリングが行なわれていない場合。

## II-o : パラメータ変化

収着挙動に影響を与える主要なパラメータ (例えば、放射性核種の濃度, pH, 炭酸分圧, 液固比, 固相を粉砕した場合の粒径など) を系統的に変化させた試験により得られた  $K_d$  は、単にある一点の条件で得られた  $K_d$  よりも信頼度が高い。特に、主要なパラメータを変化させることで、試験上の問題点や系統的な誤差 (systematic errors) を見出せる。系統的な誤差は、同一条件での繰り返し試験では、見出せないため、パラメータを変化させた試験が有効である。

収着試験の信頼度評価にこの項目を適用する場合、対象とする試験系の特性

について注意を払わなければならない。例えば、複雑な試験系で明確な傾向性を示すためには、単純な試験系と比べて、より多くのパラメータ変化が必要になる。一方、方解石が共存する試験における pH や炭酸濃度は、方解石によりコントロールされるため、変化できるパラメータが限られてくる。

ここでは、収着試験におけるパラメータ変化に関する適切性について、以下の基準をもとに 4 つの信頼度レベルを付与する。

- A) pH, 炭酸分圧および Na 濃度 (イオン交換反応の場合) の様な化学的なパラメータだけでなく、放射性核種の添加量 (収着等温線) も系統的に変化させた試験も実施している場合。
- B) 化学的なパラメータ (例: pH, 炭酸分圧, Na 濃度など) あるいは放射性核種の添加量 (収着等温線) のうち、少なくとも 2 つのパラメータを変化させた試験を実施している場合。これらのパラメータの変化は、レベル A の場合よりも系統立てて行なわれていなくても良いが、パラメータ変化により、傾向が把握できることが必要である。
- C) 上記 B と同様の要件であるが、変化させているパラメータが 1 つの場合。
- D) パラメータを変化させた試験が行われていない場合。

### 3.3 クライテリアⅢ：データ相互間の整合性の観点からのランク付け

前述の2つのクライテリアが、JNC-SDBに登録されたKdの信頼度を報告書（文献）に書かれている記述の網羅性の確認や記述内容の技術的および科学的観点から信頼度を評価することに対し、クライテリアⅢでは、データ相互間の整合性の観点からKdの信頼度を評価する。類似の試験条件でKdと不整合があれば、出典となった元文献に遡って十分にその信頼度を検討しなければならない。

“データ相互間の整合性がある”とは、他の類似した試験条件の文献におけるKdと比較し、JNC-SDBに登録されたKdの値が大きく異ならないで、同様な傾向が見られるということである。例えば、KdのpH依存性のある放射性核種の場合、類似する試験条件に対して同じ様な試験結果（Kd）になることである。また、複数の文献においてTh(IV)の収着よりU(IV)の収着の方が強いことを示している場合、それに反対の試験結果を示している報告があれば、その理由が適切に説明されている必要がある。その理由が適切に説明されていない場合には、評価対象のKdの信頼度は低くなり、unreliableと判断される。

→クライテリアⅢの評価結果はコメント形式で記述する。クライテリアⅢの評価対象には、「各チェックポイントでレベル付けした一覧表」と「クライテリアⅡに基づく信頼度のクラス分け結果」も含まれる。

→もし、評価しているKdが信頼できる類似した試験条件の試験結果（文献）としてのKdと明らかに整合性がなく、かつ、その理由が説明されていない場合は、評価対象のKdはクライテリアⅢにおいてunreliableと判断される。

### 3.4 クライテリアⅠ、クライテリアⅡおよびクライテリアⅢの評価例

クライテリアⅠおよびクライテリアⅡの信頼度評価例として、Torstenfelt et al.(1988) : Pu/Bentonite, JNC-SDB データ No.61486～No.61498 について以下に示す。

I -a.1 : 全ての必須項目が満たされている。→Yes

I -a.2 : 全ての必須情報（単位）が記述されている。→Yes

I -b : Kdが線形グラフで与えられている。→クラス3

II-a : 固相

データ No.61486～No.61492 : SWy-1 Na モンモリロナイトで、詳細情報は広く知られている。→A

データ No.61493～No.61498 : イライトで、詳細情報は記述されていない。→C/D

II-b : pH の調整と制御

最終 pH が記述されており、pH は、HCl または NaOH で調整されている。→A

II-c : 酸化還元状態

全ての測定試験は、大気中で行われている。試験地下水の O<sub>2</sub> レベルが記載されている。→A/B

II-d : 最終の溶液組成

初期の溶液組成 (SWy-1 Na モンモリロナイト) が与えられている。最終の溶液組成は、初期の溶液組成から評価することが可能である。→C/D

II-e : 温度

室温で試験が行われている。→A/B

II-f : 固液比と粒子サイズ

液固比は、50mL/g (固体 0.5g および溶液 25mL) である。固相の特性を考慮すると、レベル A/B が相当である。→A/B

II-g : 収着率

全てのデータで収着率は 52～83% の範囲に入ることが計算された。→A

II-h : 核種の初期濃度

Pu の初期濃度は、1.E-07 M である。Guillaumont et al.(2003) による熱力学データを用いて、大気雰囲気下で化学種の計算をすると Pu(VI) と Pu(V) となる。→A

II-i : 固液分離

高速遠心分離 (10000～60000 rpm) が実施されている。Torstenfelt et al.(1988) によれば、Pu の収着は高速遠心分離速度に少しばかり依存し、このことは、ポリマーの化学種を形成する可能性を示唆していると報告している。イライトとベントナイト試料の実験の場合には、上記の依存性は、有意で系統だったものには見えない。→A

II-j : 反応時間

反応時間は、1, 7, 30 日であるが、それぞれの Kd がどれに対応するかは記述されていない。→C/D

II-k : 攪拌方法

攪拌方法については、情報が無い。→C/D

II-l : 核種の添加量

固液比や Pu の初期濃度について変化させた試験は、実施していない。→C/D

II-m : 反応容器

試験は、遠心分離管が用いられている。それぞれの材料については、明確に記載されていない。反応容器壁への収着および補正に関する情報は、記述されていない。→B

II-n : 不確実性の評価

試験は、繰り返し行われている。しかし、誤差は、記載されていない。記述されている値が、平均値であるか、明確ではない。→D

II-o : パラメータ変化

pH のみ、パラメータ変化を行っている。→C

クライテリアⅢの信頼度評価として、Pu/Bentonite に対する検討結果の一例について記載する (図-1)。

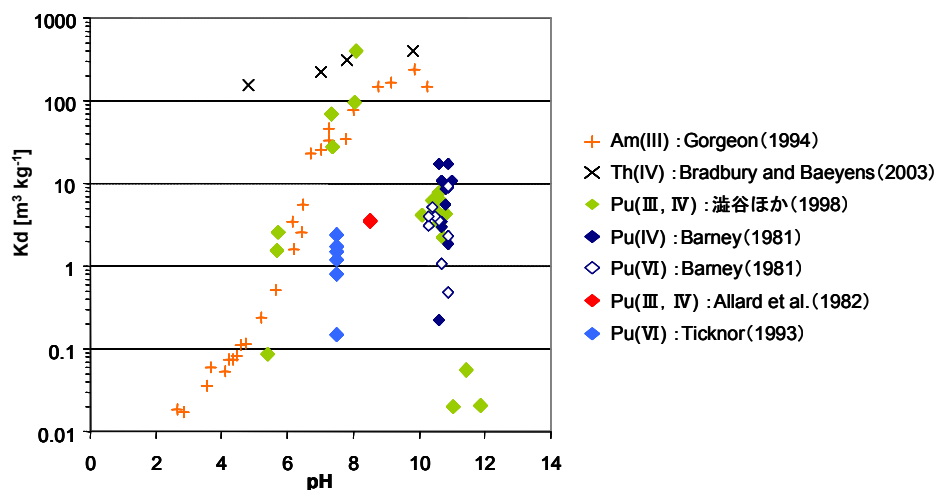


図-1 データ相互間の整合性の観点に基づく  $K_d$  の信頼度評価の一例  
( $K_d$  の pH 依存性の傾向をもとにした他のデータとの整合性に関する検討例)

JNC-SDB に含まれるベントナイトに対する Pu の収着データとして、澁谷ほか (1998b) , Barney (1981) , Allard et al. (1982) , Ticknor (1993) が挙げられた。澁谷ほか (1998b) は Pu(III)および Pu(IV), Barney (1981) は Pu(IV) および Pu(VI), Allard et al. (1982) は Pu(III)および Pu(IV), Ticknor は Pu(IV) のデータとして報告している。これらのデータは、澁谷ほか (1998b) を除くと、各々、ある特定の pH 条件で Kd を求めたものであり、また同一の pH 条件においても Kd の値に幅があり、データの信頼度評価が難しい。そこで、Pu(IV)のアナログとして、Am(III)や Th(IV)で比較的幅広い pH 条件で Kd が取得され、pH に対する傾向が得られており、収着メカニズムからもデータの信頼度が担保される Gorgeon (1994) や Bradbury and Baeyens (2003a) のデータとの比較をもとに、データ相互間での整合性を確認し、データの信頼度評価を行なった。

その結果、澁谷ほか (1998b) のデータについては、pH 6~8 の領域のデータは Gorgeon (1994) の結果と同様な傾向を示しており、その信頼度は高い (レベル A) と判断された。一方、澁谷ほか (1998b) で pH>10 の領域のデータは、Gorgeon (1994) のデータからも Kd が小さくなる傾向が認められ、傾向としては問題ない可能性があるが、pH 6~8 の領域と同レベルの信頼度で評価することは困難なため、やや信頼度が劣る (レベル B) と判断された。Barney (1981) の Pu(IV)のデータは、澁谷ほか (1998b) の Pu(III)および Pu(IV)のデータと似たプロットを示しており、Pu(IV)については、澁谷ほか (1998b) と同様にやや信頼度が劣る (レベル B) と判断された。一方、Barney (1981) の Pu(VI)のデータについては、Pu(IV)と同様な領域にプロットされており、今回の検討では、信頼度は低い (レベル C/D) と判断した。また、Allard et al. (1982) のデータも他のデータとの整合性がとれないことから信頼度は低い (レベル C/D) と判断した。Ticknor (1993) のデータについては、澁谷ほか (1998b) のデータと比較すると、同程度の pH 条件において、やや低い Kd を示すため、信頼度はやや劣る (レベル B) と判断された。



#### 4. Kdの信頼度を総合的および定量的に評価するためのクラス分けシステム

前述した3つのクライテリアの信頼度評価結果を用いて、以下に示すように信頼度を総合的および定量的に評価するためのクラス分けシステムを開発した。

##### ●クライテリアⅠ：

I-aのチェックポイントは「受理/排除」のふるいわけ形式で、報告書に書かれている記述（実験方法、実験条件等）の網羅性の観点から信頼度を評価される。受理されたKdは、次にクライテリアⅠ-bで、情報のタイプから信頼度の高い順にKdをクラス1～6に割り当てる形で評価される。

##### ●クライテリアⅡ：

a) 最初にチェックポイントⅡ-b, Ⅱ-c, Ⅱ-d, Ⅱ-hを評価する（次ページの表-1において太字で示している）。もし、これらのクリティカルな項目としてマークされているチェックポイントにおいて、評価対象データをunreliableと判定した場合、それ以降の信頼度評価の対象データから除外される。クリティカルなチェックポイントを通過したKdは、順次チェックポイントにて信頼度のレベル付けが行われる。

b) クライテリアⅡにおいて、個々のチェックポイントでの点数の重み付けは、Kd情報信頼度評価の上での重要性に従って、次のページの表-1に示す重み付けファクターによって行う。

c) 全てのチェックポイントの合計評価点を容易に算出するために、点数付けを行う。：A=3, B=2, C=1, D=0（幾つかのチェックポイントでは、A/B=3, C/D=0とする）。

d) KdデータはクライテリアⅡの各チェックポイントの合計点で、6レベルにクラス分けする。この1～6のクラスは、報告書に書かれている記述の技術的および科学的観点から、点数の多い順に信頼度において最高クラスから最低クラスに対応する。品質上の最低限のレベルを保証するために、幾つかのチェックポイントは、クリティカルな項目（次のページの表-1で\*印をつけたチェックポイント）とする。もし、登録されたKd情報の品質がこれらのクリティカルな項目のレベルを満足しないならば、unreliableなデータとして、信頼度評価の対象データから除外される。

表-1 クライテリアⅡにおける個々のチェックポイントの重み付け

チェックポイント	項目	重み付けファクター
Ⅱ-a	固相	A~C/D × 2
* Ⅱ-b	pH	A~D × 8
* Ⅱ-c	<b>酸化還元状態</b>	A/B~C/D × 8
* Ⅱ-d	<b>最終の溶液組成</b>	A/B~C/D × 8
Ⅱ-e	温度	A/B~C/D × 1
Ⅱ-f	固液比と粒径サイズ	A/B~C/D × 2
Ⅱ-g	収着率	A~C/D × 2
* Ⅱ-h	<b>核種の初期濃度</b>	A~C/D × 8
* Ⅱ-i	固液分離	A~C/D × 8
* Ⅱ-j	反応時間	A/B~C/D × 2
Ⅱ-k	攪拌方法	A/B~C/D × 1
Ⅱ-l	核種の添加量	A~C/D × 2
Ⅱ-m	反応容器	A~C/D × 1
Ⅱ-n	不確実性の評価	A~D × 2
Ⅱ-o	パラメータ変化	A~D × 8

\* 印は、最低限の信頼度要求としてのクリティカルなチェックポイントを示す。

また、太字は最初に評価すべきチェックポイントを示している。

e) 表-1 に示すクライテリアⅡのチェックポイントの合計点は、信頼度評価のクラス分けに使用する。この評価システムは、合計点の最大値が183になるように、以下の表-2 に示す6クラス分けとする。

表-2 クライテリアⅡに対する信頼度のクラス分け

点数	該当クラス
183~151	クラス 1
150~121	クラス 2
120~91	クラス 3
90~61	クラス 4
60~31	クラス 5
30~0	クラス 6

●クライテリアⅢ：

クライテリアⅢでは、類似した試験条件の Kd との整合性について、クライテリアⅡのクラス分け評価結果も考慮して、信頼度を総合評価する。別の類似した試験条件の Kd と明らかに不整合があり、その理由が説明されていない場合には、登録データは **unreliable** と分類される。

- 全体をまとめると、以下の表-3 に示すクラス分けシステムになる。JNC-SDB における登録 Kd データの信頼度の主な根拠として、クライテリアⅡの評価結果が中心となる。

表-3 全クライテリアとクラス分けシステム

クライテリア	クラス分け
I -a	受理もしくは排除
I -b	Kd 情報タイプによる 6 クラス分け
Ⅱ	Kd データの信頼度レベル評価と合計点による 6 クラス分け
Ⅲ	類似試験結果との整合性とクラス分け結果の総合評価

## 5. おわりに

Kd の用いられている背景を調査してまとめ、Kd の信頼度を付与するためのガイドラインの検討を行った。そして、JNC-SDB に登録されている個々の Kd データに対して、3つのクライテリアによって、Kd データに信頼度を付与し、信頼度に応じた評価結果を明らかにする手法を開発した。クライテリアⅠでは、報告書などの記述（実験方法、実験条件など）の網羅性の確認から信頼度の評価を行なう。クライテリアⅡでは、実験方法・実験条件などに基づく個々の収着データの信頼度の確認から信頼度の評価を行なう。クライテリアⅢでは、データ相互間の整合性の観点からのランク付けから信頼度の評価ができるようにした。これら各クライテリアでの信頼度評価結果の一例を記載した。また、クライテリアⅡの各チェックポイントの重要性に応じて重み付けした合計点をもとに、Kd の信頼度を定量的に付与することができるようにクラス分けを行い、クライテリアⅠの情報タイプおよびクライテリアⅢのデータ相互間の整合性も考慮した Kd 信頼度を総合的および定量的に評価するためのクラス分けシステムも構築した。

この様な手法を用いることで JNC-SDB に登録された Kd データの信頼度レベル付けが総合的・定量的に行うことができるようになった。また、今回のガイドライン作成時には、(社)日本原子力学会標準化委員会で提案されている「収着分配係数の測定方法—深地層処分のバリア材を対象とした測定の基本手順(案)」の内容も参考にしており、今後、信頼度の高い試験データを取得していく上での留意事項としてもフィードバックできると考えられる。

今後は、このガイドラインをもとに、JNC-SDB に登録している Kd に対し、信頼度評価を実施していく。

## 6. 参考文献

Abry,D.R.M., Abry,R.G.F., Ticknor,K.V., Vandergraaf,T.T. : “Procedure to determine sorption coefficients on rock coupons under static conditions”, AECL TR-189 (1982)

Albinsson,Y., :“Sorption of Radionuclides in Granitic Rock”, SKB Working Report AR91-07 (1991)

Allard, B., Olofsson, U., Torstenfelt, B., Kipatsi, H. and Andersson, K.: “Sorption of actinides in well-defined oxidation states on geological media”, Material Research Society Symposium Proceedings, Vol.11, pp.775-782. (1982)

Allard,B., Karlsson,F. and Neretnieks,I.:. “Concentrations of Particulate Matter and Humic Substances in Deep Groundwaters and Estimated Effects on the Adsorption and Transport of Radionuclides”, SKB technical Report TR91-50 (1991)

Barney, G.S.: “Radionuclide Reactions with Groundwater and Basalts from Columbia River Basalt Formations”, Rockwell International Corp., Richland, WA (USA). Rockwell Hanford Operations Northwest Regional American Chemical Society Meeting. Bozeman, MT, USA. 17- 19 Jun 1981, RHO-SA-217, p.40. (1981)

Bradbury, M.H. and Baeyens, B.:. “Near Field Sorption Data Bases for Compacted MX-80 Bentonite for Performance Assessment of a High-Level Radioactive Waste Repository in Opalinus Clay Host Rock”, PSI Bericht Nr.03-07, Paul Scherrer Institut, Villigen, (2003a)

Bradbury, M.H. and Baeyens, B.:. “Far Field Sorption Data Bases for Performance Assessment of a High-Level Radioactive Waste Repository in an Undisturbed Opalinus Clay Host Rock”, PSI Bericht Nr.03-08, Paul Scherrer Institut, Villigen, (2003b)

Gorgeon, L.: “Contribution a la Modelisation Physico-Chimique de la Retention de Radioelements a vie Longue par des Materiaux Argileux”, THESE de DOCTORAT de l'UNIVERSITE PARIS 6. (1994)

Guillaumont,R.,Fanghänel,T.,Fuger,J.,Grenthe,I.,Neck,V.,Palmer,D.A.,Rand,M.H., : “Update on the Chemical Thermodynamics of Uranium, Neptunium, Plutonium, Americium and Technetium”, F.J.Mompean, M.Illemassene, C.Domenchi-Orti, K.Ben Said (eds.), Elsevier, Amsterdam (2003)

Hakanen,M. and Holtta,P.:. “Review of Sorption and Diffusivity Parameters for TVO-92”, Nuclear Waste Commission of Finnish Power Companies Technical Report

YTJ-92-14 (1992)

核燃料サイクル開発機構：“わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性 一地層処分開発第2次取りまとめ一 分冊3 地層処分システムの安全評価”，サイクル開発機構技術資料，JNC TN1400 99-023(1999)

Muurinen,A.:. “Transport Processes in the Buffer and Backfill of Spent Fuel Disposal Data for TVO-92 Safety Analysis”, Helsinki, Nuclear Waste Commission of Finnish Power Companies, Report YJT-92-09 (1992)

Nagra,：“Kristallin-I, Safety Assessment Report”, Nagra, Technical Report NTB 93-22. (1994)

日本原子力学会：“収着分配係数の測定方法一浅地中処分のバリア材を対象としたバッチ法の基本手順:2002”，(社)日本原子力学会標準, AESJ-SC-F003 (2002)

日本原子力学会：“収着分配係数の測定方法一深地層処分のバリア材を対象とした測定の基本手順(案)”，(社)日本原子力学会標準, 出版準備中

NAGRA: “Project Opalinus Clay: Safety report. Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste (Entsorgungsnachweis)”, Nagra Technical Report NTB 02-05, Wettingen, Switzerland. (2002)

Nirex'95: “A preliminary Analysis of the groundwater pathway for a Deep repository at Sellafield, Volume 3 一 Calculations of Risk”, United Kingdom Nirex Limited Report S/95/012 (1995)

OECD/NEA：“Radionuclide Sorption from the Safety Evaluation Perspective”, Proceedings of an NEA Workshop (1992)

OECD/NEA：“Using Thermodynamic Sorption Models for Guiding Radioelement Distribution Coefficient(Kd) Investigations”, A Status Report (2001)

澁谷朝紀, 油井三和：“性能評価で用いる分配係数の設定と現象論的収着モデルの適用性について 一 OECD/NEA Sorption Workshop における議論一”，動力炉・核燃料開発事業団技術資料, PNC TN8420 98-014 (1998a)

澁谷朝紀, 黒羽光彦, 乾真一, 岡崎充宏, 油井三和：“還元条件下でのベントナイトに対する Pu(IV) の収着挙動”，日本原子力学会「1998 春の年会」要旨集, p.608 (1998b)

澁谷朝紀, 柴田雅博, 陶山忠宏: “核種のベントナイトおよび岩石に対する収着データベース”, サイクル機構技術資料, JNC TN8410 99-050 (1999)

SKI: “SKI SITE-94 Deep Repository Performance Assessment Project”, SKI Report 96:36, Swedish Nuclear Power Inspectorate, Stockholm. (1996)

Stenhouse, M.J.: “ Sorption Database for Crystalline, Marl and Bentonite for Performance Assessment”, Nagra Technical Report NTB 93-06 (1995)

陶山忠宏, 笹本 広: “JNC 収着データベース (JNC-SDB) の更新: 1998 年~2003 年までに公開された文献データの追加”, サイクル機構技術資料, JNC TN8410 2003-018 (2004)

Ticknor, K.V.: “Actinide Sorption by Fracture-Infilling Minerals”, Radiochimica Acta, Vol.60, pp.33-42. (1993)

Torstenfelt, B., Rundberg, R.S. and Mitchell, A.J.: “Actinide Sorption on Granites and Minerals as a Function of pH and Colloids/Pseudocolloids”, Radiochimica Acta, Vol.44/45, pp.111-117.

朽山修, 高須亜紀, 池田孝夫, 木村英雄, 佐藤正知, 長崎普也, 中山真一, 新堀雄一, 古屋廣高, 三頭聡明, 山口徹治: “核種移行モデルにおける収着分配係数の概念とその適用性”, (社)日本原子力学会, バックエンド部会, 原子力バックエンド研究, Vol. 5, No. 1, P. 3~19 (1998)

Vieno. T. and Nordman, H.: “Interim report on safety assessment of spent fuel disposal TILA-96”, Helsinki, POSIVA 96-17 (1996)

Vieno. T. and Nordman, H.: “Safety assessment of spent fuel disposal in Hästholmen, Kivetty, Olkiluoto and Romuvaara TILA-99”, Helsinki, POSIVA 99-07 (1999)

# 付 録

(英語版)

Evaluation and categorization of the reliability of Kd values in the JNC-SDB



### **Introduction, description of main criteria**

The reliability of  $K_d$  values in the JNC-SDB can be assessed using the following three main criteria. The three main criteria are listed in the expected sequence of application during a classification of entries in the SDB. Criteria Ia and Ib are related to documentation and data entry, whereas the technical and scientific quality of an entry is addressed by criteria II and III.

#### ***I Completeness of documentation and type of $K_d$ information:***

- a) It needs to be verified that the documentation of each entry is detailed enough to allow further examination according to the main criteria II-III. At this point, only the completeness of the documentation is examined; the appropriateness of the reported data and approaches is evaluated under criterion II below.
- b) This point takes also into account that the reliability of data input to the SDB will be substantially high if  $K_d$  values are directly available in table format in comparison to literature that reports e.g. %-adsorbed values in a graph. The latter way of reporting requires the operator to i) manually read values off a graph and ii) to calculate  $K_d$  from the %-adsorbed and Solid/water ratio (s/w) ratio values given, which significantly increases the likelihood of an operator error during data input.

#### ***II Quality of reported data***

This is the most important issue from a technical and scientific point of view. This criterion encompasses an evaluation of the appropriateness of the experimental system to produce reliable  $K_d$  data. The methods used (or lacking) for determining experimental uncertainty are also examined for each literature source. Further, it is considered whether the data represent single-point measurements or are part of e.g. an isotherm, which would provide additional support for their reliability.

#### ***III Consistency of data:***

While the previous two main criteria address the reliability of each  $K_d$  entry in the SDB, criterion No. III requires an examination of the level of support that other  $K_d$  values in similar systems can lend to the entry under consideration. Any disagreement with data from related systems will have to be evaluated as well. It could be argued that this kind of data examination may be left to the

user of the SDB. However, the classification of data entries in the JNC-SDB in terms of reliability adds an aspect of quality that is above that for a pure compilation, and users may expect that the listed  $K_d$  values passed some kind of check for internal consistency.

Internal consistency means that data from different sources should not be in obvious disagreement. An example would be the dependency on pH of  $K_d$  values for a certain radionuclide, which should be approximately similar in all studies. Similarly, if many studies indicate e.g. stronger sorption of U(IV) than of Th(IV), for any study that indicates the opposite an appropriate explanation should be given. If no good reason can be found, such deviations make a study less reliable. These types of considerations will only be possible for sufficiently well researched elements.

## **Description of checkpoints within each main criterion**

### ***General***

Each entry in the JNC-SDB (each  $K_d$  value identified in the SDB by a unique ID) should be evaluated and classified individually. Because many studies report  $K_d$  values under different experimental conditions, it is not sufficient to evaluate all data based on a given reference globally. Depending on conditions, different entries related to a given study may receive a different rating.

### ***I Completeness of documentation and type of $K_d$ information***

The checkpoints under I-a are used for a screening prior to a further classification. Failure to satisfy these checkpoints will not be used (unreliable).

**I-a.1** Are all mandatory fields completed? Here it is only verified that all fields have been completed by the operator; an entry "not reported" is counted, therefore. The following entries are considered mandatory:

- element
- solid phase
- solution composition
- atmosphere
- pH (or other information that allows to derive pH, e.g. portlandite)

equilibrium)

- pe/redox condition (only in case of redox-sensitive systems)
  - method of pe control (only in case of redox sensitive systems and imposed reducing conditions)
  - initial radionuclide (RN) concentration (except for RN that are not solubility controlled)
  - method for phase separation
  - type of experiment, if different from batch
- In case of missing entries, the corresponding  $K_d$  is excluded from further evaluation and classified as unreliable (until remedied by operator). If all fields are completed, proceed to Ia.2.

**I-a.2** Is all mandatory information provided? Here it is evaluated whether critical information is provided or lacking completely. The quality of the information provided is evaluated under criterion II. In addition to the information listed under Ia.1, further mandatory information includes:

- units
- In case of missing mandatory information, the corresponding  $K_d$  is excluded from further evaluation and classified as unreliable. If all fields are completed, proceed to Ib.

**I-b** Does the type of  $K_d$  information provided require manipulation by the operator?

→ The following levels are distinguished:

- class 1: table with  $K_d$  values given
- class 2: table with % sorbed given  
table with residual concentration given
- class 3: linear graph  $K_d$
- class 4: linear graph % sorbed  
linear graph residual concentration
- class 5: logarithmic graph  $K_d$
- class 6: logarithmic graph % sorbed  
logarithmic graph residual concentration

## ***II Technical and scientific quality of reported data***

It is generally assumed that the entries presently contained in the JNC-SDB correspond to a minimum quality standard; i.e. are assumed to be basically reliable. The different checkpoints regarding experimental quality are designed to distinguish different levels of reliability. However, if in case of critical checkpoints even the requirements leading to the lowest rating are not met, the respective entry should be classified as unreliable (indicated for each checkpoint).

### **II-a Solid phase (substrate)**

It is evaluated whether the solid phase has been sufficiently characterized. This is equally important for properly designing experiments, as well as for using the measured  $K_d$  values. In general, three types of key information are required:

- Information about major mineral composition.
- Information about accessory minerals or impurities.
- Information about surface characteristics: Minimum is a measure of sorption capacity per mass of sorbent, such as CEC or a different measure of site density per mass.

However, the amount of information required to sufficiently characterize a given solid phase also depends on the complexity of the substrate:

1. It needs to be known whether a substrate consists of a single pure mineral phase, or whether it contains impurities or additional minerals. In general, some measure of site density per mass (e.g. CEC) needs to be known to properly design experiments, in particular with respect to achieving reasonable surface loading.
2. In case of simple substrates (pure minerals), no further information is necessary.
3. In case of complex substrates (i.e., where significant impurities are present, or where a substrate is composed of several minerals), and in particular in case of natural samples, detailed information on composition has to be provided in addition.
4. In cases where sample treatment (such as crushing or sieving) had been performed, the respective information on particle size also needs to be provided (see II-f). Where any chemical treatments (e.g. acid washing to remove calcite; but also change of redox conditions in case of redox-sensitive substrates, see II-c) had been applied, the applied method and resulting mineralogy should be given as well.

5. In case of many commercially available substrates (e.g., MX-80 or Kunigel-V1 bentonite; standard clay minerals from the Clay Minerals Society, such as SWy-1; Min-U-Sil SiO<sub>2</sub>, etc.) detailed solid phase information is widely known and can be retrieved from a large number of publications. Therefore, characterization of such solids is not required for each entry in the SDB; i.e., level A or B can be reached even if such information is not reported. Note that this holds only when such solids have been used as received. Where washing procedures etc. have been applied, the procedures and resulting changes still need to be documented.

→ Three levels of reliability:

- A) Major and minor mineralogy as well as surface characteristics are known.

For example: The substrate is a single, well-defined mineral; or comprehensively characterized complex mineral assemblage. Either no sample treatment has been carried out, or it is described in detail and the result are documented.

- B) Major mineralogy as well as surface characteristics are known.

For example: The substrate is a single mineral that may contain impurities (such as a non-purified clay mineral) or a complex mineral assemblage where additional impurities could be present. Sample treatment may have led to minor changes in mineralogy.

- C/D) Information on both major mineralogy or surface characteristics is lacking.

For example: There is no information on CEC (or another measure of sorption capacity); or the substrate is a natural clay sample where it is not clear whether it is smectite, kaolinite, or illite; or a non-characterized soil or crushed rock. Sample treatment may have led to major changes in mineralogy that are not documented.

## **II-b** Adjustment and control of pH

One of the most important solution parameters controlling RN sorption is pH. It needs to be known to interpret  $K_d$  values, but also for proper experimentation: The pH needs to be known to evaluate the solubility limits of radionuclides and some major ions, as well as the stability of certain mineral phases (in particular carbonates). Further, pH has to be approximately

constant during a sorption experiment in order to reach equilibrium of sorption reactions. There are two basically different approaches in sorption experiments with regard to pH control:

1. The pH is not controlled, but allowed to reach an equilibrium value according to the experimental conditions and is then measured at the end of the experiment. In this case, it is important that the pH has been verified after experimentation, in order to know its equilibrium value.
2. The pH is controlled during the experiment by acid-base addition and/or buffers. Where it is desired to determine  $K_d$  values as a function of pH, this cannot be avoided. In this case, it needs to be shown (or known from the literature) that the added acids, bases, or buffers do not interfere with RN reactions at the surface (which obviously influence sorption) or with RN reactions in solution (which influence sorption through changing the RN speciation). Therefore, use of a non-inert pH buffer at unspecified concentration levels leads to a classification as unreliable.

→ Four levels of reliability:

- A) To achieve rating A it is sufficient, but required, that the pH is verified at the end of the experiment. This is based on the assumption that equilibrium or at least a stable state of near-equilibrium conditions has been achieved (see also II-a, II-d, and II-j). In such systems, a determination of the experimental end pH will represent an adequate measure of the actual equilibrium pH. Second, rating A is given where the successful use of inert buffers has been demonstrated (e.g. by measuring  $K_d$  in the presence and absence of buffers at some pH, or by showing through speciation calculations that the buffer does not influence RN behavior). In some cases, level A may also apply if a non-inert buffer is part of the experimental setup (see the example of  $K_d$  determination as a function of carbonate concentration under point C).
- B) The final pH is reported, but only a pH range (within 1 pH unit) is given instead of a discrete pH value (the same assumptions regarding equilibrium can be made as for level A above). Rating B also applies in cases where only the initial pH is provided, but the experimental system is well buffered (for example, because a inert buffer is used, or because of the presence of a natural buffer system, such as carbonate).
- C) Only the initial pH is provided, no attempt is made to control final pH.

All cases where non-inert pH-buffers are being added. Note that this refers to the addition of an additional complexing ligand, such as acetate, for the control of pH. On the other hand, if a sorption experiment is carried out where  $K_d$  is measured as a function of carbonate concentration and this is simultaneously used to control pH, level A applies (given that the effect of carbonate on  $K_d$  is documented).

- D) Only a range (within 1 pH unit) of initial pH is provided, no information on final pH is given.
- If a lower quality than required for level D is evident, the respective entry is excluded from further evaluation as unreliable. If a non-inert buffer (e.g. acetate or carbonate) is used at unspecified concentration levels, the respective entry is excluded from further evaluation as unreliable.

### **II-c** Redox conditions

Here it needs to be differentiated between systems that are not redox-sensitive and systems that are. Within the redox-sensitive systems, it needs to be further taken into account whether only the sorbing RN is redox-sensitive or whether other components of the system (such as solid phase or groundwater components) are redox-sensitive as well.

In this sense, checkpoint II-c deals with the redox control of the sorbing RN, not with redox control of an overall redox-sensitive system. If the experimental system comprises a range of redox-sensitive dissolved (e.g. organics) and solid (e.g. Fe- and Mn-phases) components, imposing redox conditions different from the original level may influence many redox-equilibria simultaneously. In such a case it can be very difficult to ascertain equilibrium or to know which solid phases are present. Such effects on solution and solid phase chemistry are addressed by checkpoints II-a and II-d. It also needs to be pointed out in this context that "imposed redox condition" does not necessarily refer only to imposing reducing conditions by adding a reducing agent, it also includes imposing oxidizing conditions by e.g. transferring a reduced natural sediment to the laboratory and exposing it to  $O_2$  (as a matter of fact, the latter may be the more common problem).

Given the focus of this checkpoint on redox control of sorbing radionuclides explained above, two different requirements on data quality can be

distinguished. Levels of reliability reflect the degree to which these two requirements are met:

1. Reliability regarding control and confirmation of the redox status of the sorbing RN.
2. Reliability regarding the absence of unwanted side effects, such as changes in RN speciation induced by the addition of a reducing agent.

→ Two levels of reliability:

A/B) Level A/B applies to entries in the SDB where it is demonstrated that both of the above requirements are met: This includes the following cases:

- Systems which are not redox-sensitive in terms of sorption and where no reducing agents needed to be added (i.e., where the sorbing RN can take on only one oxidation state in aqueous solutions).
- Redox-sensitive systems that have been pre-equilibrated with and are being kept at ambient conditions.
- Experiments where reducing conditions are imposed on redox-sensitive RN (in otherwise stable systems) and where similar results are obtained using several reducing agents.

C/D) Level C/D applies to entries in the SDB where meeting the above requirements may not have been demonstrated, but can be assumed with high certainty. This includes the following cases:

- Reducing conditions imposed on redox-sensitive RN (in otherwise stable systems) using one reducing agent that can be estimated (e.g. from experience or from the literature) to be effective and to be sufficiently inert with respect to influencing RN behavior.
- In cases where complexing reducing agents have been used, level C/D still can be achieved if the influence of the reducing agent on RN speciation has been estimated.
- All cases where redox conditions may be less well defined than for level A/B, but where it can be assumed that no significant artifacts regarding RN behavior are introduced and where the oxidation state of RN has been measured independently (in some cases, this may include low-O<sub>2</sub> conditions with a subsequent confirmation of RN oxidation state). Evaluating the reliability of such measurements is likely to require an expert decision by the operator.

→ If a lower quality than required for level C/D is evident, the respective



entry is excluded from further evaluation as unreliable. For example, cases where it has been attempted to achieve reducing conditions only by minimizing the level of O<sub>2</sub> (e.g., by performing experiments in a N<sub>2</sub> atmosphere) generally should be labeled "unreliable" (except where the oxidation state of a RN somehow has been confirmed, see description of level C/D). Also, if a strongly complexing reducing agent (such as many organic acids) is used at unspecified concentration levels, the respective entry is excluded from further evaluation as unreliable.

#### **II-d** Final solution composition

Note that solution composition includes dissolved carbonate concentration, which may be controlled through, or expressed as pCO<sub>2</sub>. Added pH-buffers or reducing agents are also included, and are addressed in checkpoints II-b and II-c.

→ Two levels of reliability:

A/B) The final solution composition is known (either from direct measurements or from the initial experimental setup and speciation calculations) and corresponds to equilibrium or is otherwise well constrained. All major components are included in the analysis. Relevant minor components (e.g. traces of carbonate or of other complexing ligands) may only be estimated. Some minor components may be unknown. In case of natural water samples, solutions are (or can be) shown to be charge balanced (within 5 %). The information on final solution composition can be obtained from i) analyses of the actual sorption samples or from ii) using pre-equilibrated solutions that had been analyzed prior to the actual sorption experiments.

C/D) The critical major solution components are known, or can be estimated approximately. There may be unknown minor components and/or less critical major components. In case of natural water samples, solutions are approximately charge balanced (within 10 %).

→ If a lower quality than required for level C/D is evident, the respective entry is excluded from further evaluation as unreliable.

#### **II-e** Temperature

Here, it is evaluated whether temperature is specified and kept constant.

→ Two levels of reliability:

A/B) Temperature is approximately specified (e.g. room temperature) and constant, or varied in a controlled fashion.

C/D) Temperature is not specified at all (i.e., it is not clear whether the experiments had been performed at room temperature or not).

#### **II-f** Solid/water ratio (S/W) and grain size

It is evaluated whether enough solid had been added to avoid a significant influence by the vessel walls (see II-m), and to ensure sample reproducibility and representativeness in case of complex substrates, especially in case of large grain sizes: It is estimated that in cases where less than ca. 100 mg of solid (this value depends on grain size) has been added to each experimental vessel, sample reproducibility and representativeness becomes difficult to achieve in case of complex or crushed samples.

→ Two levels of reliability:

A/B) Enough solid had been added to each vessel to assume that

a) [surface area sorbent] » [surface area vessel], i.e. that at least 5 m<sup>2</sup> of sorbent surface had been added to each vessel, and to assume that

b) samples are reproducible and representative.

What is enough substrate clearly depends on specific surface area and homogeneity. Fulfilling the above two requirements is typically not a problem in case of relatively homogeneous sorbents with a high specific surface area (such as clay minerals or bentonite), where "enough" may mean at least ca. 100 mg. On the other hand, "enough" may mean at least one to several grams in case of rocks (depending on specific surface area, grain size and complexity of the sample).

C/D) Any other than the above.

#### **II-g** Sorption value

It is evaluated whether an appropriate experimental design had been employed to avoid sorption values near 0% or 100%, which can lead to higher experimental uncertainty. This problem can be addressed by choosing an appropriate S/W ratio (see II-f) or/and an appropriate initial concentration

of RN ([RN]) (see II-h). However, the choice of [RN] is more restricted by solubility and analytical detection limits.

- A) The sorption value is in the range of 5% - 95% sorbed.
- B) The sorption value is inside the range of 2% - 98% sorbed.
- C/D) Any other than the above.

#### **II-h** Initial RN concentration ([RN])

This parameter is used to evaluate the likelihood of a possible supersaturation of RN-phases:

- Three levels of reliability:
- A) RN is not solubility limited, or initial [RN] was clearly (at least a factor of 5) below the solubility limit. Note that factor 5 does not take into account uncertainties in RN solubility; i.e., if the solubility of a given RN cannot be estimated with more certainty than e.g.  $10^{-6}$  to  $10^{-8}$  M, then initial [RN] has to be  $\leq 2 \times 10^{-9}$  M for rating A to apply.
- B) Initial [RN] was clearly below the solubility limit, but maybe less than a factor of 5 (see above).
- C/D) [RN] was very small, and in all likelihood below their maximum solubility, but the solubility limit cannot be established clearly due to missing information (solution composition) or lacking thermodynamic data.
- Note that the solubility limit can be defined on either thermodynamic calculations or on experimental data obtained under the relevant conditions.
- If initial RN concentration had been clearly above the respective solubility limit, the respective entry is excluded from further evaluation as unreliable.

#### **II-i** Phase separation

Here, the appropriateness of phase separation is evaluated: Note that in cases where colloids or other artifacts are important, different phase separation methods will not lead to the same results. Identical or very similar results with different efficient methods are probably the best direct proof of absence

of important colloid effects; hence such studies are rated A. Rating B would be given for methods that can be presumed to remove colloids, but where no direct proof as in A is given.

→ Three levels of reliability:

A) Identical (very similar) results are obtained with different methods of phase separation, where at least one method needs to be efficient in terms of colloids removal (ultrafiltration or high-speed centrifugation). Accordingly, the best comparison would be between two efficient methods, such as ultrafiltration and high-speed centrifugation.

Note that such a comparison of phase separation methods is not required for each individual  $K_d$  value: For example: If the absence of artifacts has been demonstrated for some representative samples of a study by comparing an efficient and a standard method of phase separation, the rating A may be given to all datapoints of this study, even if they correspond to the standard method only.

B) Only one, but efficient method (high-speed centrifugation, ultrafiltration) is used, and there is no evidence for artifacts such as colloid effects or significant sorption to the filter.

C/D) Only one general method (normal centrifugation, membrane filtration with nominal pore sizes of 0.01-0.45  $\mu\text{m}$ ) is used, and there is no evidence for artifacts such as colloid effects or significant sorption to the filter.

→ If no phase separation is used, or in case of obvious evidence for artifacts (colloid effect, adsorption on filter) the respective entry is excluded from further evaluation as unreliable.

## **II-j** Reaction time

→ Two levels of reliability:

A/B) Identical (similar) results are obtained with different reaction times, or some other demonstration of near-equilibrium is provided (e.g. separate kinetic experiments).

C/D) Only one, but reasonably long reaction time is used. What is “reasonably long” is highly dependent on the experimental system: In general, the time needed to reach equilibrium will increase with the complexity of the sorbing substrate and the strength of sorption. Sorption of Sr onto a pure clay mineral through ion exchange can be

assumed to be complete within a day; sorption of a trivalent actinide onto a complex substrate may need several days to weeks for completion. In the absence of kinetic information, operator expert decisions will be required to assess this point. If possible, reaction times reported for similar systems included in the JNC-SDB could be used to evaluate what is reasonably long. Further, even for the most simple systems a reaction time of 1 day is considered as minimum requirement.

- If the requirement for level C/D is not met (i.e., if the reaction time cannot be assumed to be reasonably long), the respective entry is excluded from further evaluation as unreliable.

#### **II-k** Agitation method

- Two levels of reliability:
  - A/B) Appropriate agitation is required in all cases, except where enough kinetic information is provided to show that equilibrium has been reached. Shaking is the preferred method, as use of stir bars can lead to abrasion of samples. In case of simple and well crystallized substrates (such as Al-oxide) or of substrates with very small grain size that are easily suspended, stir bars can also be accepted.
  - C/D) Any other than the above.

#### **II-l** RN loading

Ideal are values as a function of RN loading (i.e.,  $K_d$  values that form part of an isotherm), otherwise low loading is preferred. RN loading (e.g. in moles RN/kg substrate) refers to the amount of RN adsorbed in relation to the amount of different surface sites available. It is known from classical isotherms (e.g. Langmuir) that a linear sorption can only be assumed if sufficient unoccupied sites are present. In case of simple substrates (including some bentonites), the linear portion of an isotherm extends to fairly high RN loading. There are other cases where  $K_d$  depends significantly on RN loading over many orders of RN concentration.

- Three levels of reliability:
  - A) At least one isotherm has been determined (for a constant solution

composition and S/W), and at least some experiments have been carried out using trace level RN concentration (i.e., at least some data are included within a linear sorption region).

- B) No isotherm is available, but at least a limited variation of initial [RN] or S/W has been carried out, and some experiments have been carried out using trace level RN concentration (i.e., some data are included within a linear sorption region).
- C/D) No variation as in A or B has been carried out.

### **II-m** Reaction vessels

High-density polyethylene (HDPE) or Teflon are preferred over normal PE, which is preferred over glass, which may lead to sorption of radionuclides by the vessel walls. Especially at high or very low pH, glass dissolution and release of dissolved or colloidal silica may also occur. On the other hand, glass is more gas-tight (especially than PE); if that is of experimental relevance. Corrections for sorption on vessel walls should not be necessary if blank tests show that it can be neglected.

Correction for sorption on vessel walls may be needed to estimate  $K_d$  values correctly in some cases, but only in cases where a) sorption on the vessel is much stronger than on the solid sorbent, or b) if the vessel offers a significant surface area in comparison to the sorbent (see II-f). If that is not the case, the sorption on the added solid will be much greater than on the vessel in a system where both solid and vessel are present. It is further an erroneous assumption that sorption on the vessel will be same in i) the absence of the solid (no competition for RN by solid) as ii) in the presence of the solid (strong competition for RN by solid). The sorption on the walls is typically much smaller in ii) than in i). Therefore, the overall mistake is often bigger if sorption on the vessel wall is accounted for than if it is neglected.

If effects of vessel walls are corrected for, it has to be done by extracting any RN sorbed to vessel walls after experimentation (e.g. by acid washing) and establishing a complete mass balance.

→ Three levels of reliability:

- A) An appropriate vessel has been used (taking into account sorption as well as tightness with respect to  $\text{CO}_2$  or  $\text{O}_2$ , where required), and corrections for sorption on vessel wall have been performed or no sorption on vessel wall has been observed by blank tests. If effects of

vessel walls are corrected for, it has to be done by extracting any RN sorbed to vessel walls after experimentation (e.g. by acid washing) and establishing a complete mass balance. If the sorption on vessel wall has been determined as significantly lower (at least two orders of magnitude in terms of  $K_d$ ) than the actual  $K_d$  value and thus corrections for sorption on vessel wall have not been performed, such a case would also correspond to level A

- B) An appropriate vessel has been used, and corrections for sorption on vessel walls have not been performed.
- C/D) The vessel used may have been not appropriate (this is often the case with glass, see above), or corrections for sorption on vessel wall have been performed based on a blank test only (i.e., without verifying that sorption on vessel walls is relevant in the presence of a solid added, thus possibly leading to overcorrection).

#### **II-n** Uncertainty estimates

In general, uncertainties based on repeated experiments (i.e., actual observations of  $K_d$ ) are preferred over uncertainties based on error propagation, as the latter is an estimate based on a type of extrapolation. Thus, the difference between levels of reliability is mainly based on the amount of actual information gained by repetitions: For level A, the entire experiment is repeated; for level B, only sampling and analysis are repeated; for C, no repetitions are carried out.

Values that are based on repetitive experiments are preferred over single experimental data points. Note, however, that this checkpoint refers to single-point  $K_d$  values and may be overruled by data being part of e.g. pH-edge, isotherm, kinetic experiment, etc., which may provide independent evidence of good reproducibility or systematic errors (see checkpoint II-o).

→ Four levels of reliability:

- A) Uncertainties in  $K_d$  are derived based on entire, replicated sorption experiments (i.e., at least duplicate experiments).
- B) Uncertainties in  $K_d$  are derived based on single sorption experiments that are sampled and analyzed repeatedly. This may be supplemented by error propagation.
- C) Uncertainties in  $K_d$  are based on error propagation of estimated analytical and/or procedural uncertainties.

- D) No error estimate is given, no repeated sampling is done.

**II-o** Parameter variation

Studies with a systematic variation of key parameters are much more valuable and reliable than single  $K_d$  measurements. In this context, key parameters are those that influence sorption (for example, chemical parameters such as RN concentration, pH,  $pCO_2$ , but also temperature, S/W, or grain size in case of crushed substrates), but not parameters that only help to determine the experimental framework (such as vessel type or reaction time). In particular, variation of key parameters allows improved detection of experimental problems and systematic errors. Especially the latter are not detected by repeating experiments under identical conditions. In the application of this checkpoint, care has to be taken to take into account the characteristics of the particular system studied. For example, more parameter variation may be required to show clear trends in a complicated system in comparison to a simpler one. On the other hand, the pH and carbonate concentration in experiments with calcite are quite constrained by the solid itself, and only limited variations are possible.

→ Four levels of reliability:

- A) Both RN surface loading (isotherm) as well as a chemical parameter, such as pH or  $pCO_2$  (edge), or e.g. [Na] in case of ion exchange, are varied systematically.
- B) Either RN concentration (isotherm) and/or chemical parameters, such as pH or  $pCO_2$  (edge), or e.g. [Na] in case of ion exchange (i.e., at least two parameters in total), are varied. These variations are less systematic than in A, but still allow to observe trends.
- C) As B, but only one parameter in total is varied.
- D) No parameter variation is done.



### **III Consistency of data**

Here it will be evaluated whether data from a particular study can be supported by other studies. Comparisons should only be made with studies that are at least as (or more) reliable than the study under investigation, based on criteria I and II. In many cases, only approximate consistencies or inconsistencies may be apparent, because of different conditions used in the different studies.

- Therefore, the evaluation of criterion III will only be reported in the form of a comment. Any such comments will be included both in a classification report as well as in the corresponding rating summary sheets.
- If the  $K_d$  values under investigation are *clearly* inconsistent with the majority of related reliable studies, and if the reason for this observation cannot be explained, they may also be labeled unreliable based on criterion III. As this requires an expert decision by the operator, the underlying reasoning needs to be clearly documented.

### **Overall classification**

The above criteria are applied to an overall classification system as follows:

- The three criteria I-III are evaluated separately, the respective results are reported separately as well.
- Criterion I: The checkpoints under I-a are used in a yes/no screening fashion, entries not fulfilling I-a are labeled as unreliable and are not evaluated further.  
Criterion I-b is then used to assign classes 1-6 for documentation.
- Criterion II:
  - a) The datasets that pass Criterion I are again classified according to a 6-level system, where classes 1-6 represent the highest and lowest levels of reliability. To ensure a minimum quality level, certain checkpoints are regarded as critical (marked with \* in Table 1) If the quality of the data does not correspond to the respective minimum requirements, the entries are not to be used and are classified as unreliable.
  - b) To facilitate transparent averaging of all checkpoints, the following numerical system is suggested: A=3, B=2, C=1, D=0 (A/B=3 and C/D=0 in some cases).
  - c) Initially, checkpoints II-b, II-c, II-d, and II-h are evaluated (indicated in bold letters below). If an entry is rated unreliable for any of these checkpoints, it is excluded from further evaluation.

d) Weighting of individual checkpoints at this level is done according to the factors given in Table 1 below.

Table 1: Weighting of individual checkpoints under Criterion II.

checkpoint	description	weighting factor
II-a	solid phase (substrate)	A-C/D × 2
* <b>II-b</b>	pH	A-D × 8
* <b>II-c</b>	redox conditions	A/B-C/D × 8
* <b>II-d</b>	final solution composition	A/B-C/D × 8
II-e	temperature	A/B-C/D × 1
II-f	S/W, grain size	A/B-C/D × 2
II-g	sorption value	A-C/D × 2
* <b>II-h</b>	initial RN concentration	A-/CD × 8
* II-i	phase separation	A-C/D × 8
* II-j	reaction time	A/B-C/D × 2
II-k	agitation	A/B-C/D × 1
II-l	RN loading	A-C/D × 2
II-m	reaction vessel	A-C/D × 1
II-n	uncertainty estimates	A-D × 2
II-o	parameter variation	A-D × 8

\* indicates critical checkpoints with minimum requirements;  
**bold letters** indicate the checkpoints to be evaluated initially

e) The total sum of points obtained for Criterion II is then used to indicate the level of reliability. With the present system, the maximum number of points would be 183, leading to an overall classification as follows (Table 2):

Table 2: Overall classes of reliability for Criterion II

points	rating
183-151	class 1
150-121	class 2
120-91	class 3
90-61	class 4
60-31	class 5
30-0	class 6

- Criterion III: Criterion III is used to qualitatively assess consistency with other studies. In case of clear inconsistencies, an entry may be labeled as unreliable.
- Overall, the following classification system is used, with Criterion II as the main basis for assessing the reliability of entries in the JNC-SDB

Criterion	classification
I-a	accept/reject
I-b	6 classes of $K_d$ information
<b>II</b>	<b>6 classes of data quality and reliability</b>
III	qualitative level of consistency with other studies