

2023年 11月 22日

原子力規制委員会 殿

積水メディカル株式会社
代表取締役社長 高橋 栄一

積水メディカル株式会社における放射性同位元素の管理区域外への漏えいについて

放射性同位元素等の規制に関する法律施行規則第28条の3第4号の規定に基づき2022年8月15日付けで報告した標記の件について、原因と再発防止対策をとりまとめましたので、別紙のとおりご報告いたします。

積水メディカル株式会社における放射性同位元素の管理区域外への漏えいについて

2023年 11月 22日
積水メディカル株式会社
創薬支援センター

- 1 発生日時
2022年8月5日 15時24分
- 2 発生場所
積水メディカル株式会社 創薬支援センター 第一実験棟床下（添付1参照）
- 3 件名
積水メディカル株式会社における放射性同位元素の管理区域外への漏えいについて
- 4 状況、原因、対策、環境への影響等

4.1 状況

4.1.1 発生場所施設について

第一実験棟は、1965年に竣工したコンクリートブロック構造の建物である。1階全域および屋上排気設備がRI管理区域に設定されていたが、床下は管理区域外であった。RI管理区域内では新薬候補化合物にトレーサーとして放射性物質（以下RI）を標識する実験等を行っていた。

施設老朽化のため2020年3月にRIの使用を終了し、2022年8月より除染工程を開始、除染完了後RI管理区域設定解除を行い、解体する予定であった。

4.1.2 発見

8月4日に除染工程としてRI排水管位置調査のため、除染業者が第一実験棟床下に立ち入ったところ、RI排水管の破断及び脱落（A、B、計2箇所、添付1参照）を確認した。同日15:41に除染業者からの連絡により放射線取扱主任者が覚知した。

なお、放射線障害予防規程では放射線施設について年2回自主点検を行うと明記しているが、点検対象までは明記されていなかった。点検対象については自主点検帳票にて定めていたが、第一実験棟床下は人が容易に入れる構造ではなかったことから床下RI排水管は点検対象に含めておらず、今まで一度も点検されていなかった。

【発生経緯および経過報告までの状況】

月 日	時 刻	対 応 内 容
8月3日	9:00	第一実験棟の床下に位置する配管の調査を開始
8月4日	15:41	除染業者が排水管の破断及び脱落箇所（A、B、計2箇所）を確認し、放射線取扱主任者が覚知
	16:37	破断及び脱落配管の汚染検査を実施し、検出限界値以上のRIを確認したため、この配管がRI排水管であると判断
	17:19	原子力規制庁へ状況を報告
	17:43	茨城県原子力安全対策課へ状況を報告
	17:54	東海村防災原子力安全課へ状況を報告
	21:12	破断及び脱落箇所周辺土壌及び施設周辺の汚染検査を実施

8月5日	11:00	原子力規制庁に汚染検査の結果を含めた状況を報告
	15:24	放射性同位元素等の規制に関する法律施行規則第28条の3第4号に規定する管理区域外への漏えいに該当することを判断
	19:22	破断及び脱落箇所直下土壌の汚染検査を実施
	20:56	原子力規制庁へ「放射性同位元素等取扱施設における状況通報書」を報告
8月5日 ～ 8月9日	10:00 ～ 15:00	第一実験棟床下排水管の配管状況を目視確認したところ、全配管状況の約90%に破断等が無いことを確認したが、破断箇所Aの下流側は配管が切り離されていたことを発見した。残り約10%については障害物により確認できなかったため、今後確認方法を検討し確認予定（10月末に残り10%について破断等が無いことを確認した） ※なお、第一実験棟と同様のRI使用施設である第三・第四実験棟及びRI排水処理設備の排水管状況については、2022年6月の直近自主点検結果の書面を確認（異常無し）
8月12日	13:59	破断箇所Aの下流側切り離し部分直下土壌の汚染検査を実施

4.1.3 緊急対応

本事象を踏まえ、8月5日～30日に弊社のRI排水管全て（第一実験棟・第三実験棟・第四実験棟・RI排水設備および施設間のRI排水管）について緊急目視点検を実施した。その結果、4.1.2項で発見された2箇所以外で配管破損は確認されなかった。なお、第二実験棟は過去にRI管理区域として使用していたが、2007年に実施したRI管理区域解除に伴いRI排水管を全て除染・撤去していることに加え、第一実験棟と同様に解体する予定であるため緊急目視点検対象には含めなかった。

4.1.4 破断箇所Aの状況、措置、発生時期推定

・状況

配管および継手は塩ビ製であり、破断は継手接続部で発生していた（添付2参照）。また、当配管は下流部で切り離されており（以下、切り離し箇所と記載）、閉止措置はされていなかった。事象発覚後に確認したところ、当配管は1973年に設置され、1975年に廃止された旧RI排水管であることが判明した。

・措置

破断箇所Aおよび切り離し箇所直下の土壌中放射能（ベータ線およびガンマ線）を測定（ベータ線：燃焼法 ガンマ線：ガンマカウンターによる直接測定）した結果、いずれも検出限界値未満であった。なお、³H（トリチウム）と¹⁴C（炭素14）（参考資料1参照）のベータ線のみを排水する運用となっていたが、その他の使用核種^{*1}についても漏えいを確認する目的でガンマ線測定を行った。また、正確を期すために、第三者機関（株）日本環境調査研究所）にも土壌中放射能測定（ベータ線のみ）を依頼したが、結果は検出限界値未満であった（添付3参照）。以上のことから破断箇所A配管系統からのRI漏えいは無かったと判断した。

※1 その他の使用核種：³³P、³⁵S、⁵¹Cr、⁵⁵F、⁵⁹F、⁶⁵Zn、⁷⁵Se、⁹⁰Y、¹¹¹In、¹²³I、¹²⁵I、¹⁵³Ga

検出限界値は、自社内でRI汚染の可能性が無い土壌をサンプリングし、自社および第三者機関でバックグラウンド（BG）として測定（ベータ線：燃焼法 ガンマ線：ガンマカウンターによる直接測定（ガンマ線は自社のみ））し、その測定値から3σ法^{*2}より算定した値を採用した。

※2：参考資料 環境省 検出限界値の考え方

・発生時期推定

破断箇所直下土壌および切り離し箇所直下土壌からは RI が検出されなかったことから、破断時期および切り離し時期については廃止措置をした 1975 年以降である可能性が高いと考えるが、第一実験棟床下配管について点検した記録が残されていなかったことから、結果として破断時期および切り離し時期を推定する事は出来なかった。

4.1.5 脱落箇所 B の状況、措置、発生時期推定

・状況

床上から伸びる配管が塩ビ製の L 字型管（エルボ管）に繋がり、更に水平方向の配管に接続される形の配管であったが、床上配管とエルボ管の接続部のレデュース（参考資料 1 参照）が抉れるように破損しており、また、エルボ管と水平管の接続部ではエルボ管バルブソケット（参考資料 1 参照）が破断していた。エルボ管の上下の接続部がどちらも破損した事により脱落に至ったと考えられた（添付 4 参照）。

事象発覚後確認したところ、当配管は 1975 年に設置され、上流側は 111 室流し、下流側に 111 室床ドレンが繋がる配管であった。脱落部の上流である 111 室流しからは、比較的高濃度の RI 溶液や有機溶媒は排水しておらず、比較的低濃度の RI 実験器具の洗浄液等を排水していた。

・措置

脱落箇所直下の土壌中放射能測定（ベータ線：燃焼法、ガンマ線：ガンマカウンターによる直接測定）を行った結果、 ^3H と ^{14}C が検出され、RI 管理区域外に RI が漏えいしていることを確認した。なお、ガンマ線については検出限界値未満であった。

そこで、脱落箇所直下を含む 111 室床下土壌全面を測定し、RI が確認された土壌は全て回収することとした。土壌中 RI 測定については下記の方法にて行った。

【土壌中放射能測定及び回収方法（添付 5 参照）】

- ① 111 室床下を縦横 30 cm メッシュで区切る
- ② 各メッシュ表面の中央から約 20 g の土壌サンプルを採取し、その一部（約 0.2 g）を燃焼法で測定する
- ③ 検出限界値以上の放射能が認められた箇所については、深さ 30 cm まで土壌を回収する（以後、サンプリングブロックと呼ぶ）
- ④ 基礎コンクリートが途切れたら、その下部土壌についても上記①②③と同様に実施する（第 1 層～第 4 層で途切れたことを確認した）
- ⑤ 上記②③④を土壌中放射能濃度が検出限界値未満^{※3}になるまで繰り返し実施する

※3：検出限界値は、破断配管 A と同様に算出した

・措置の結果

土壌中放射能濃度の測定結果は添付 6 に記載した。各サンプリングブロックの土壌中放射能濃度の最大値は ^3H で $2.9 \times 10^3 \text{ Bq/g}$ 、 ^{14}C で $2.1 \times 10^3 \text{ Bq/g}$ であり、放射能の広がり方は縦 3.3 m、横 3.6 m、深さ 1.5 m と確認された。 ^3H と ^{14}C の土壌中の広がり方は、ほぼ同等であった。

また、自社測定において検出限界値未満となったサンプリングブロック（放射能の広がり方の境界ブロック）を第三者機関（株）日本環境調査研究所）で測定した結果、全て検出限界値未満であることを確認した（添付 7 参照）。

回収したサンプリングブロック数は計 309 ブロックとなり、1 つのサンプリングブロック重量が約 30 kg

であったため、回収した土壌の総重量は約 9,270 kg となった。これら回収した土壌は管理区域内で適切に保管し、放射性廃棄物として委託廃棄する予定である。

現場の土層および土質は、2022 年 2 月に実施した地質調査より、地表から 0.55 m 程度は粘性土による埋土層、0.55 m 程度から 1.9 m 程度は黒ボク土による黒ボク層であることが判明している。放射能の広がりには深さ 1.5 m と確認されたため、漏えいした放射能は黒ボク層で停止していた。

なお、土壌中放射能の広がりについて以下のように考えた。

弊社で使用する RI は全て医薬品候補化合物である有機化合物由来であり、土中への拡散沈降のメカニズムは、有機化合物あるいはその分解物が漏えい水に溶けるあるいは懸濁状態で移動し、土壌中の粘土鉱物や土壌有機物など土壌構成物質に吸着されて静止し、また新たな漏えい水によって一部が溶け出したり流されたりして更に移動する、の繰り返しであったと推測される（参考文献 1 参照）。そのため RI を含む有機化合物が移動した土壌には RI が必ず残留するため、検出限界値未満となった土壌境界の先に検出限界値以上の RI が検出される可能性は無い。

・漏えい放射能量算出

排水管が脱落した上位室である、111 室の RI 使用量から漏えい放射能量を求めようとしたが、111 室の RI 使用量とそこから排水された放射能量及び漏えい時期が明確でないため、漏えい放射能量は求められなかった。そのため土壌に確認された放射能量を漏えいした放射能量とした。

下記の算出式で計算し、 ^3H で $5.01 \times 10^8 \text{ Bq}$ 、 ^{14}C で $4.11 \times 10^8 \text{ Bq}$ と算出した（添付 8 参照）。なお、漏えい時期が明確でないため、半減期補正は出来なかった。

$$\text{放射能量 (Bq)} = \frac{\text{サンプリングブロック上部放射能濃度} + \text{サンプリングブロック下部放射能濃度 (Bq/g)}}{2} \times \text{土壌重量 (g)}$$

・発生時期推定

第一実験棟床下配管について点検した記録が残されていないこと、脱落箇所から RI 排水処理施設までの配管において、排水の放射能濃度を測定するシステムになっておらず、正確な脱落時期の推定は出来なかった。一方、添付 9 前提②の基、仮定した 111 室での RI 使用量と漏えいした総放射能量の関係から脱落時期の推定を試みた（添付 9 参照）。あくまでも前提を置いた推定ではあるが、脱落時期は 2010 年～2015 年頃であると推定された。

4.2 原因

4.2.1 直接的原因

(1) 現場状況の確認

①破断面の調査結果

積水化学工業（株）環境・ライフラインカンパニー総合研究所に所属する評価分析の専門家に調査を依頼した。調査の結果（添付 10、11 参照）、破断箇所 A・脱落箇所 B 共に破断面に凹凸の激しいギザギザした波面を確認した。これは脆性破壊の特徴であり、外部応力によってほぼ瞬間的に破壊されたと推測した。

なお、塩ビ配管のカタログ値の曲げ強度から 80 Mpa 以上の応力加わったと考えられた。

②吊り金具の調査結果

破断箇所 A・脱落箇所 B 共に、前後にある吊り金具（添付 10、11 参照）が、両方とも同じ方向（西北西から東南東方向）へ変形していた。そのため、この方向に大きな変異が発生したと推測した。

③吊り金具・振れ止め支持の設置状況調査結果

第一実験棟の RI 排水管の吊り金具の設置状況は、第三・第四実験棟および現在の参考基準より間隔が広がった。また、振れ止め支持（参考資料 1 参照）は設置されていなかった（下記表 1 参照）。第一実験棟建設当時は、吊り金具・振れ止め支持に関する明確な建築基準が無く、施工業者の計画に依存して建築されていたことが要因であると推測した。

その他の RI 管理区域である第三・第四実験棟の RI 排水管は、第三実験棟が耐火二層管（参考資料 1 参照）、第四実験棟が塩ビ管であるが、配管の損傷はなかった。その理由は下記表 1 に示す通り、吊り金具と振れ止め支持の間隔が現在の参考基準と同等であったからと推測した。

なお、破断箇所 A の報告書（添付 10）ではソケット単層となる部分が存在していたことが確認されたが、振れ止め支持の設置が現在の基準であれば、揺れの幅も半減され例えソケット単層部分が存在していても応力の集中は無く破断には至らなかったと推測した。

表 1 吊り金具と振れ止め支持の間隔

	吊り金具の設置間隔	振れ止め支持の設置間隔
第一実験棟	1.7 m	設置なし
第三・第四実験棟	1.0～1.5 m	3.2～5.1 m
参考基準※4	1.0 m (80Φ以下)、2.0 m (100Φ以下)	8.0 m

※4：公共建築工事標準仕様書より。第三・第四実験棟は公共建築でないため参考値とする

(2) コンピューター解析によるシミュレーション

現場状況の確認の結果、変位に対して外部応力が集中しやすい箇所破断に至っているものと推察された。そこで、そのような変位が地震の影響によるものかを検証する目的で、コンピューター解析によるシミュレーションを専門機関も交えて検討した。

検討の結果、この検証のためには第一実験棟全体を解析しなければならないことが判明した。第一実験棟全体での解析はモデル規模が大きくなり、計算規模も膨大になること、さらには、基礎、壁、床、天井などに現実に忠実な剛性（形状と材料物性値）を入力しなければ配管における実現象（割れ）と一致した結果が得られないが、これらの数値を全て正しく求めることは不可能であることから、正しい結果を得られる可能性は低いため、結果として検証は不可能であると判断した。

(3) 要因解析

現場状況の確認結果から要因解析（添付 12 参照）を行い、破断の主要因を推測した。

現場調査の結果から、破断箇所 A・脱落箇所 B 共に外部応力よってほぼ瞬間的に破壊されたと推測されたことから、瞬間的な強い力が発生する要因を推測した。結果、「8 月 4 日に立ち入った除染業者による人為的な力」「過去に立ち入った人物による人為的な力」「侵入した動物による力」「地震による力」の 4 つの要因を推測した。

①8 月 4 日に立ち入った除染業者による人為的な力

8 月 4 日に立ち入った除染業者により破断させた可能性が考えられたが、破断面に埃が付着していたことから、破断してからある程度の時間が経過していると判断できるため、8 月 4 日に立ち入った除染業者による力ではないと推測した。

②過去に立ち入った人物による人為的な力

第一実験棟床下に立ち入る可能性がある人物は、社内では工務課員および放射線管理課員、社外では工事業者が該当する。これらの人物が破断させたという過去の記録は存在しなかった。

念のため、退職者を含む過去の工務課員および放射線管理課員（計 7 名）に聞き取り調査を行ったところ、そのような事象は発生していなかったことを確認した。

以上により、過去に立ち入った人物による人為的な力の可能性は低いと推測した。

③侵入した動物による力

第一実験棟床下に侵入した動物が配管に力をかけて破断させた可能性が考えられたが、第一実験棟床下入口は扉によって常時閉止されていたため、そこから動物が侵入する可能性は除外した。動物の種類によっては、地中や隙間から侵入することも考えられるが、第一実験棟床下土壌に動物の足跡や糞が確認されなかったことから、侵入した動物による力の可能性は低いと推測した。

④地震による力

地震の揺れによって力がかかり破断した可能性が考えられる。第一実験棟自体はコンクリート構造で地震の揺れに強い構造であるが、コンクリート壁や床に連結する形で配置されている塩ビ配管は、コンクリートの揺れのはざままで力が集中し、結果として脆弱な部分が損傷する可能性はあると推測した。また、専門家による現場調査からも、吊り下げ金具の変形状況については地震の揺れによる変形の可能性が高いと推測したことから、同様の力が塩ビ配管にもかかっていたことが判明している。

以上の事から、地震により配管が想定していた位置より大きく変位したことにより配管に変形が生じると共に、その応力が破断する箇所に集中したため、配管の破壊強度を超え破断・脱落に至ったと推察された。

(4) 結論

現場状況および要因解析の結果、振れ止め支持のなかった RI 排水管の破断または脱落の原因は、地震による強い揺れによって強い力が一気にかけたことによる可能性が最も高いと推測した。

4.2.2 間接的原因

所内で知見者を交えて間接的要因を考えたところ、下記 2 点が挙げられた。

(1) 自主点検において当該配管が対象外であったこと

当該配管が設置された第一実験棟床下は、人が容易に入れる構造では無かったことから点検を行っていなかった（第三・第四実験棟は点検できる構造であり点検が実施されていた）。また、放射線障害予防規程では、自主点検の実施や頻度については規定されていたが、点検項目や具体的な内容までは規定されておらず、放射線取扱主任者以外の者が見直すような仕組みが無かった。結果として第一実験棟床下配管は建設当初から事象発覚まで自主点検項目に含まれなかった。従って、配管の劣化や損傷状況を把握し予防保全対策を講ずることや、劣化や損傷状況を早期に発見することが出来なかった。

(2) 第一実験棟の床下を RI 管理区域に設定していなかったこと

第一実験棟の床下土壌にコンクリート舗装等の防水措置を施していなかった。つまり、施設構造において配管破断の可能性を考慮しておらず、フェイルセーフ構造（参考資料 1 参照）となっていなかった。

4.3 対策

4.3.1 直接的原因（地震等の揺れ）の対策

第一実験棟については、2022 年 12 月までに RI 排水管を全て撤去しており、対策は不要である。

第二実験棟については、2007年2月28日のRI施設廃止に伴い、排水管を全て撤去しており、対策は不要である。

その他のRI使用施設である第三・第四実験棟について対策を講じる。第三・第四実験棟は東日本大震災で被災したが、目視による点検の結果、配管の損傷は確認されなかった。その理由は4.2.1項(1)③の表1に示す通り、吊り金具と振れ止め支持の間隔が適切であったからと推測される。

しかしながら、より万全を期すため、第三・第四実験棟のRI管理区域外にあるRI排水管については、耐震性のある吊り金具を追加するといった更なる地震等の揺れ対策を講じることとする。

上記の内容を、2023年度の設備更新計画として2023年度中に実行する。

4.3.2 間接的原因の対策

(1) 自主点検帳票の定期的な見直し

自主点検の帳票は実施毎に放射線取扱主任者が見直し、実施前に社内の設備管理担当者および自主点検実施者へ公開し検討することによって、設備に関する専門知識を有する者の評価や意見を取り入れる仕組みとする。また、放射線取扱主任者は適切な見直しが行えるよう、常に最新の知見を取り入れるように努めることもルール化する。

上記の内容およびその実施手順を2022年下期に実施した業務改善活動で2023年3月に取り纏めた。その成果を放射線障害予防規程の下部規程にあたる標準操作手順書に2023年6月末に定めた。

(2) RI排水管が存在する非RI管理区域のRI管理区域化

第三・第四実験棟については、万が一漏えいが発生しても十分に回収できるフェイルセーフ構造に変更した後にRI管理区域化する。(2023年6月時点でRI使用施設の変更申請書作成中)構造上等の問題ですぐにRI管理区域化出来ない部屋については、RI排水管に漏水検知器を設置する等、漏水が発生したら直ぐに確認できるようなシステムを導入する。将来的には構造上等の問題を全てクリアし、RI排水管が通るエリアは全てRI管理区域化する(添付13参照)。

さらに万全を期すため、点検が出来なかった埋設されているRI排水管は、全て地上化すると共に、RI排水管の通るエリアは万が一漏えいが発生しても十分に回収できるフェイルセーフ構造に変更した後にRI管理区域化する(2023年6月時点で地上化する業者の選定及びRI使用施設の変更申請書を作成中である)。上記の内容は、2023年度の実行計画に定めており、2023年度末までに実行する。

4.4 環境への影響等

4.4.1 環境への影響

以下の評価結果から、環境への影響はない。

<土壌回収結果からの評価>

土壌中放射能濃度が検出限界値未満となった深さ1.5mから湧水が確認されなかったことから、漏えいしたRIは全て土壌に留まり、地下水に流入していないことを確認した。なお、2022年2月に実施した敷地内ボーリング調査により、敷地内地下水は一番浅いところで深さ5.53m~5.81mにあると確認されている。また、第一実験棟床下は、コンクリートと土壌に囲まれた床下空間という閉鎖的な場所のため、風雨により周辺に拡散する可能性はない。

<空間線量率からの評価>

事象発覚から土壌の回収が完了した2022年12月まで週1回、第一実験棟周辺の空間線量率を測定した結

果は全て 0.07 $\mu\text{Sv/h}$ ～0.09 $\mu\text{Sv/h}$ であり、自然界に存在する放射線と同程度であった。

<井戸水からの評価>

事象発覚以前から実施している半年に一度の近隣井戸水中放射能測定（事業所境界から約 200 m）において、記録が残っている 1999 年から現在までの測定結果、および事象発覚後から 2023 年 2 月まで月 1 回実施した測定結果は全て自然界に存在する放射能と同程度であった（添付 14 参照）。また、事象発覚から 2023 年 2 月まで週 1 回、事業所内の井戸水中放射能を測定した結果は全て自然界に存在する放射能と同程度であった（添付 14 参照）。

<土壌に漏えいした放射能濃度からの評価>

破断箇所 A 直下の土壌から RI は検出されなかった。

脱落箇所 B の土壌中放射能濃度は ^3H で $2.9 \times 10^3 \text{ Bq/g}$ 、 ^{14}C で $2.1 \times 10^3 \text{ Bq/g}$ であり、科学技術庁告示第 5 号の下限濃度（RI と認められる濃度、 ^3H : $1.0 \times 10^6 \text{ Bq/g}$ 、 ^{14}C : $1.0 \times 10^4 \text{ Bq/g}$ 、（参考資料 1 参照））以下であった。

<参考：漏えいした放射エネルギーの比較参考>

環境への評価ではないが、土壌に漏えいした放射エネルギーの比較参考として、当事業所が法令に準じて 1 週間に環境へ放出した RI 液体廃棄物の放射エネルギーと原子力安全協定に定めた RI 液体廃棄物年間放出量管理目標値を記載する。

下記の通り、脱落箇所 B から土壌に漏えいした放射エネルギーは、RI 液体廃棄物年間放出量管理目標値の 0.2% 未満であり、この値は当事業所が 1 週間で処理する液体廃棄物の放射エネルギーとほぼ同等であった。

漏えいした放射エネルギーと通常環境へ放出している放射エネルギーの比較参考	^3H	^{14}C
脱落箇所 B から土壌に漏えいした放射エネルギー	$5.01 \times 10^8 \text{ Bq}$	$4.11 \times 10^8 \text{ Bq}$
1 週間に放出した RI 液体廃棄物の放射エネルギー（2023 年 3 月 2 週目実績）	$7.40 \times 10^8 \text{ Bq}$	$3.26 \times 10^8 \text{ Bq}$
原子力安全協定に定めた RI 液体廃棄物年間放出量管理目標値	$8.0 \times 10^{11} \text{ Bq}$	$2.6 \times 10^{11} \text{ Bq}$

4.4.2 人体への影響

以下の評価結果から、人体への影響はない。

(1) 内部被ばく

<土壌回収の結果からの評価>

漏えいした RI は全て第一実験棟地下の土壌に留まっていたため、地下水による内部被ばくの影響はない。また、第一実験棟床下はコンクリートと土壌に囲まれた床下空間という閉鎖的な場所のため、蒸発した気体による内部被ばくの影響もない。

<漏えい量からの評価>

漏えいした総放射エネルギーは ^3H で $5.01 \times 10^8 \text{ Bq}$ 、 ^{14}C で $4.11 \times 10^8 \text{ Bq}$ であった。この 1% が蒸発してそれを一人の人間が吸入したと仮定すると、内部被ばくにおける被ばく量である預託実効線量（参考資料 1 参照）は ^3H で 0.205 mSv 、 ^{14}C で 0.027 mSv 、計 0.232 mSv となる。なお、実効線量係数は ^3H で $4.1 \times 10^{-8} \text{ mSv/Bq}$ 、 ^{14}C で $6.5 \times 10^{-9} \text{ mSv/Bq}$ を採用した。

これは公衆被ばくの実効線量限度（ 1 mSv/年 、参考資料 1 参照）より低い値である。

<現場対応者の内部被ばく評価の結果からの評価>

現場発見及び汚染検査対応を行った除染業者及び弊社放射線取扱主任者の内部被ばく評価（評価方法：バイオアッセイ法（参考資料1参照））において、有意な値を示した者はいなかった。

＜放射線業務従事者の内部被ばく評価の結果からの評価＞

過去の放射線業務従事者の内部被ばく評価（評価方法：バイオアッセイ法）において、有意な値を示した者はいなかった。

(2) 外部被ばく

脱落箇所 B の空間線量率を測定した結果は 0.07 $\mu\text{Sv/h}$ ～0.09 $\mu\text{Sv/h}$ であり、自然界に存在する放射線と同程度であったため、外部被ばくの影響はない。なお、当施設の排水は、 ^3H と ^{14}C のみを流す運用だが、 γ 線核種の漏えいが無いことを確認する目的で測定を行った。

5 今後の対応

今後は、再発防止のために上げた 4.3 項に示した対策を計画的に進めると共に、対策が有効であることを定期的に評価し、有効性が確認できなかった場合は改善に努めていくこととする。また、再びこのような事故を起こさないよう、放射線施設の適切な維持管理に努める。

6 添付書類

添付 1：発生場所図面等（創薬支援センター全体、第一実験棟外観、破断等確認箇所）

添付 2：破断箇所 A 状況

添付 3：第三者機関による破断箇所 A 直下および切り離し部土壤測定結果

添付 4：脱落箇所 B 状況

添付 5：測定回収状況図

添付 6：脱落箇所 B 土壤測定回収結果

添付 7：第三者機関による 111 室床下土壤境界測定結果

添付 8：サンプリングブロック計算方法

添付 9：脱落時期推定

添付 10：破断箇所 A 調査結果

添付 11：脱落箇所 B 調査結果

添付 12：要因解析図

添付 13：RI 管理区域化予定箇所図面

添付 14：井戸水測定結果

参考資料 1：用語類の解説

参考文献 1：中野正詩（1993）「土壤中における溶解物質の移動予測のシナリオ」土壤の物理特性、第 67 号、P,51～57

以上

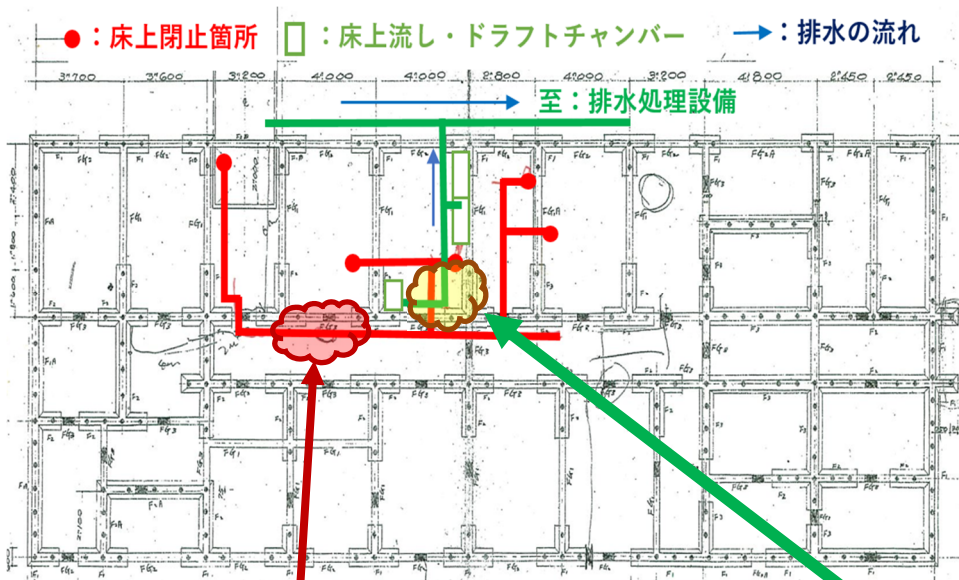
添付 1：発生場所図面等（創薬支援センター全体、第一実験棟外観、破断等確認箇所）



創薬支援センター 全体写真（標高約 30m）



第一実験棟外観写真



破断等確認箇所



破断箇所 A



脱落箇所 B

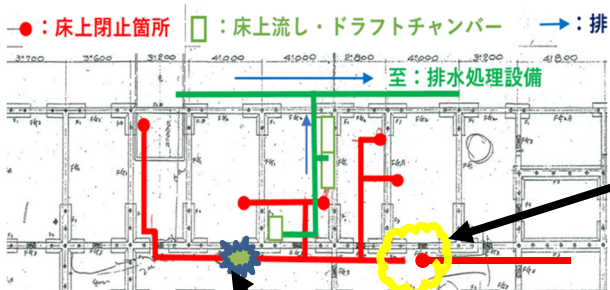
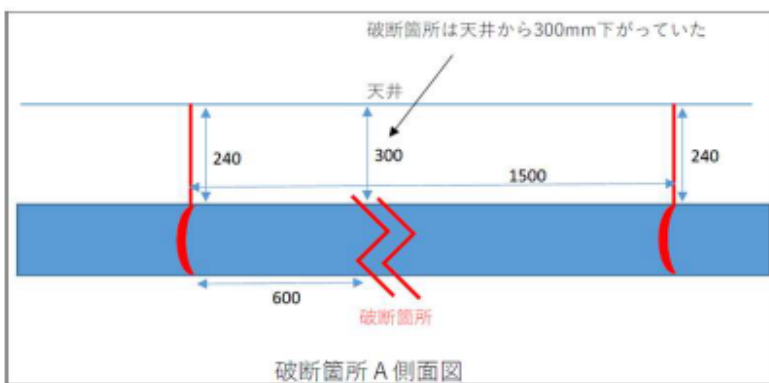
添付 2 : 破断箇所 A 状況

【破断箇所 A : 残置配管】

配管 : 塩ビ管 内径 50φ (テーロン製)
➡ 直管を吊り金具で固定

破断部位 : ソケット継手接続部

使用期間 : 施工 1973 年から 75 年の 3 年間



切り離し部直下土壌から
放射能は検出されなかった



破断箇所 A 直下土壌から
放射能は検出されなかった

添付3-1: 第三者機関による破断箇所A直下および切り離し部土壤測定結果

測定機関: (株)日本環境調査研究所

1. 測定結果概要

試料名	領域	放射性物質濃度 (Bq/g)	検出限界濃度 (Bq/g)
A	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.1E+00
A切り離し	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00

2. 分析・測定方法

2-1. 試料調整方法

受け取った土壤試料は分析前に全体が均質になるように、よく混合しておく。

2-2. ³H・¹⁴C 分析・測定方法

³H・¹⁴Cの分析は、酸素気流中燃焼法により行う。燃焼装置を図1に示す。

測定は、液体シンチレーション測定装置で、外部放射線に対して十分な遮蔽能力を有するものである。

以下に H-3・C-14 分析及び測定手順を示す。

- 1) 酸化銅の触媒用電気炉の温度を800℃に、試料用電気炉の温度を900℃に昇温する。
- 2) 2-アミノエタノール2ml を入れた H/C トラップ管を燃焼管出口と接続し、エアポンプを稼働する。
- 3) 試料0.5g の入った燃焼ポートを試料用電気炉燃焼管内にセットし、100ml/min の流量で酸素ガスを流して60分間捕集を継続する。
- 4) 捕集終了後、トラップ管はメタノール8ml で管内部に付着した2-アミノエタノールをバイアル容器に洗淨回収し、乳化シンチレータ8ml を添加して、測定試料とする。
- 5) 測定バイアル容器を液体シンチレーション測定装置にセットし測定する。測定時間は10分とする。

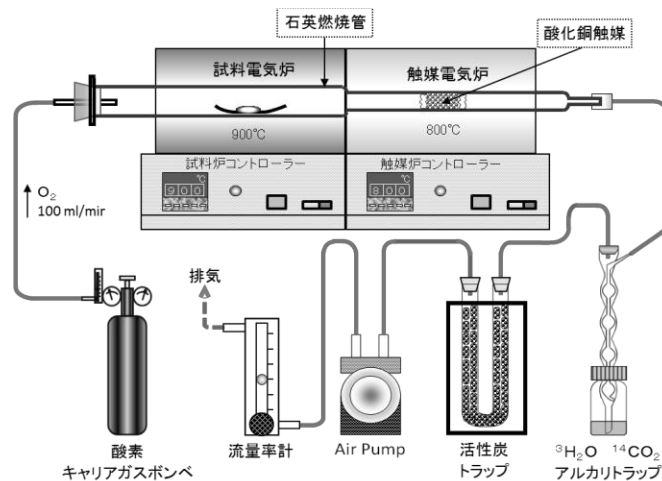


図1 酸素気流中燃焼装置

3. 検出限界計値の算出

自然計数率 (cpm) と測定時間 (min) から領域の検出限界計数率 (cpm) を求め、この値と領域の計数効率から検出限界値 (dpm) を算出する。なお、検出限界計数率 (cpm) は次式により算出する。

$$nd = \frac{k}{2} \left\{ \frac{k}{ts} + \sqrt{\left(\frac{k}{ts}\right)^2 + 4nb \left(\frac{1}{ts} + \frac{1}{tb}\right)} \right\}$$

nd : 検出限界計数率 (cpm) nb : 自然計数率 (cpm)
 tb : 自然計数率測定時間 (min) ts : 試料測定時間 (min)
 k : 3

添付3-2

4. 測定機器

液体シンチレーション測定器 PerkinElmer Tri-Carb 5110TR

5. 分析日

令和 4年 10月 24日

6. 測定日

令和 4年 10月 25日

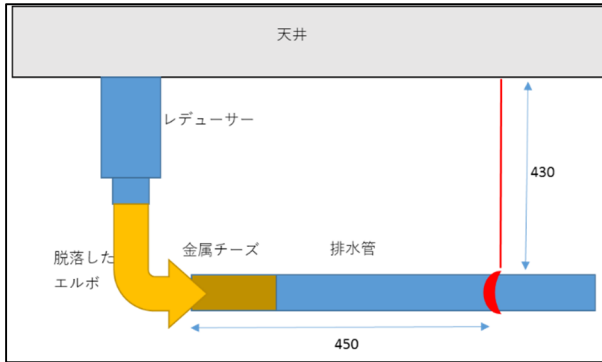
添付4：脱落箇所B状況

配管：111室床ドレンであるレデューサーから
エルボ、金属チーズを通して排水管に接続

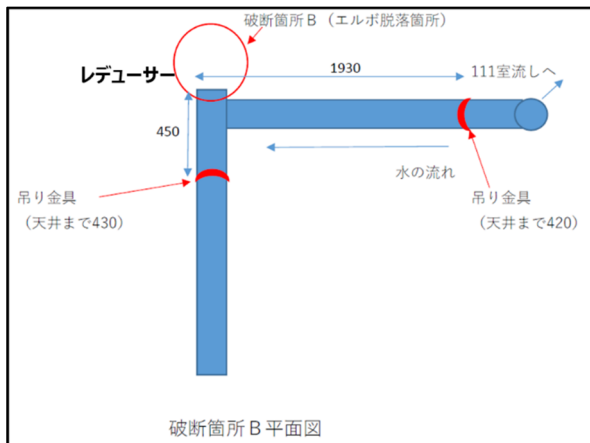
破断部位：レデューサー下部（塩ビ製）

エルボ管バルブソケット部（塩ビ製）

使用期間：1975年～2020年3月



【脱落箇所B 立面図】



【脱落箇所B 平面図】

レデューサー



【脱落箇所B】

脱落したエルボ

金属チーズ



【レデューサー破損部】

破断したバルブソケット

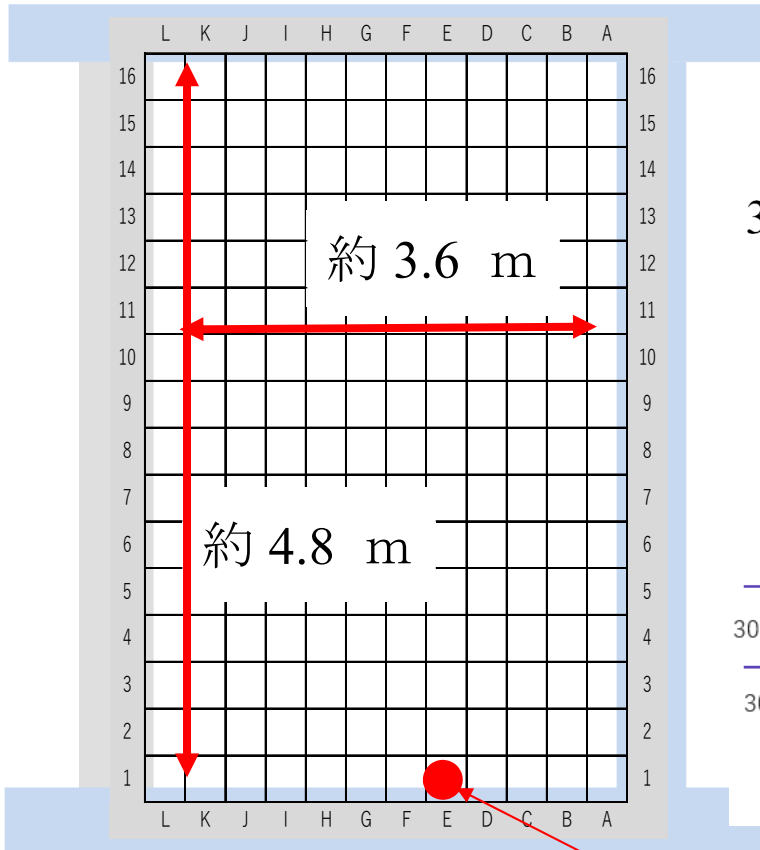


【エルボ管バルブソケット破損状況】



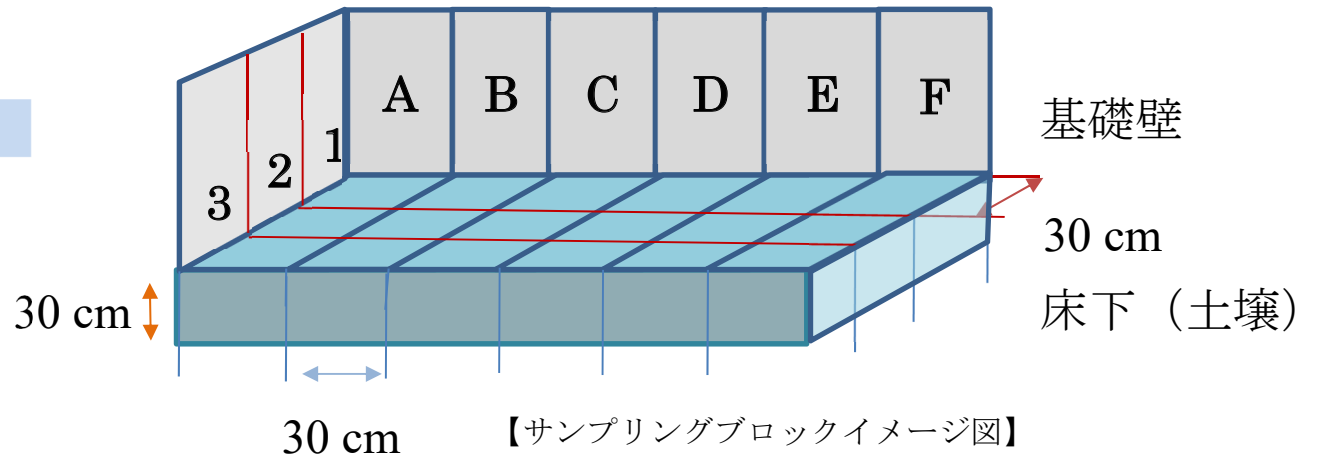
【金属チーズ接続部】

添付5：測定回収状況図

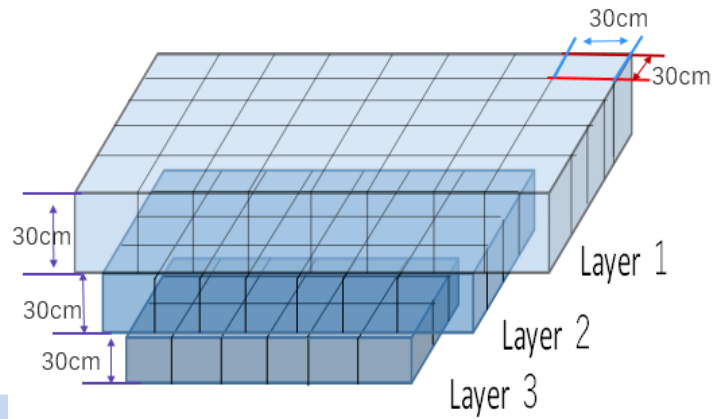


【111室床下メッシュ状況】

脱落箇所



【サンプリングブロックイメージ図】

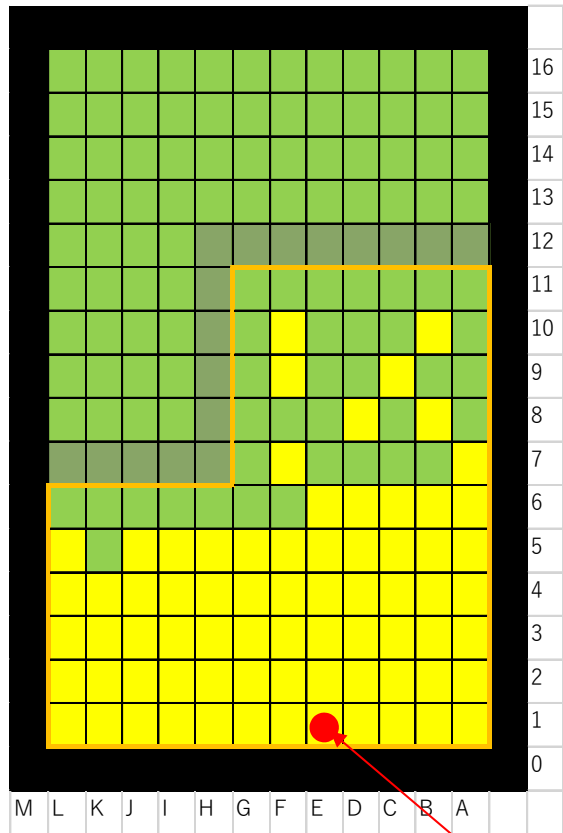


【深さ方向イメージ図】

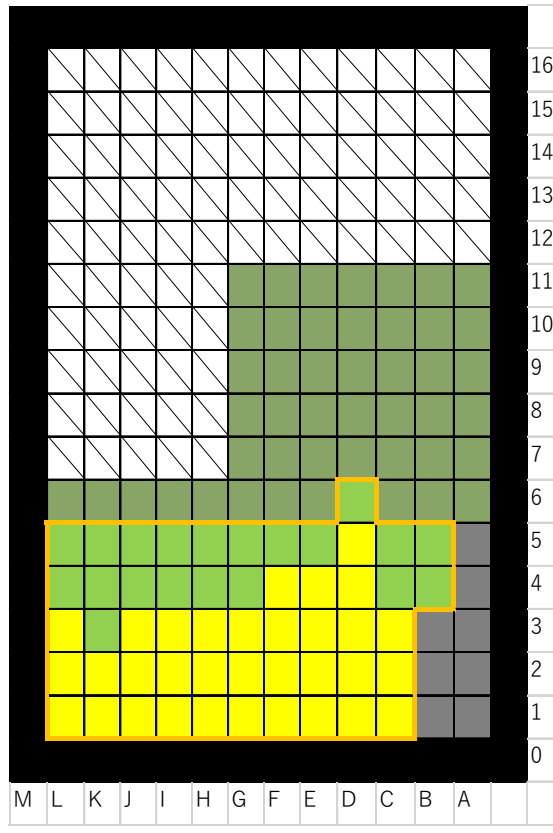


【土壌サンプル採取状況】

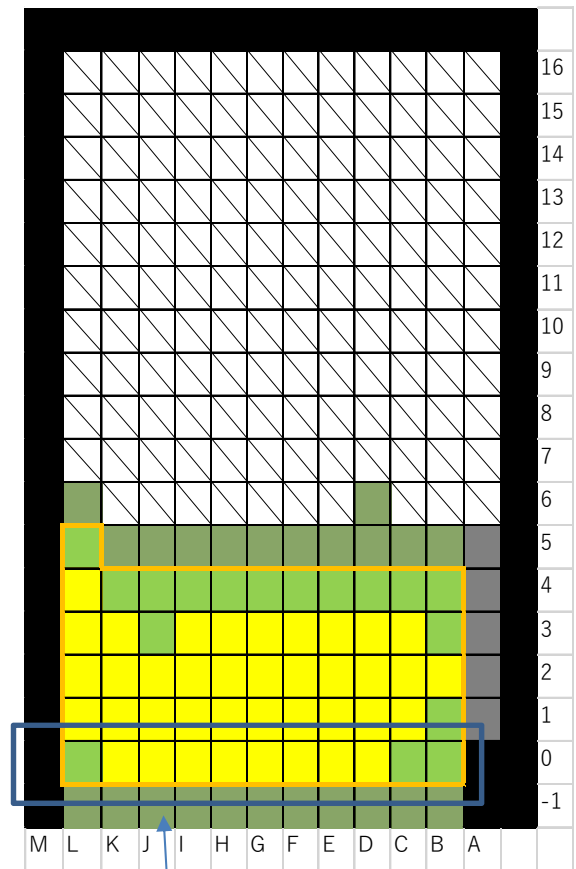
添付6-1：脱落箇所B 土壌測定回収結果



【第1層表面】 脱落箇所



【第2層表面】



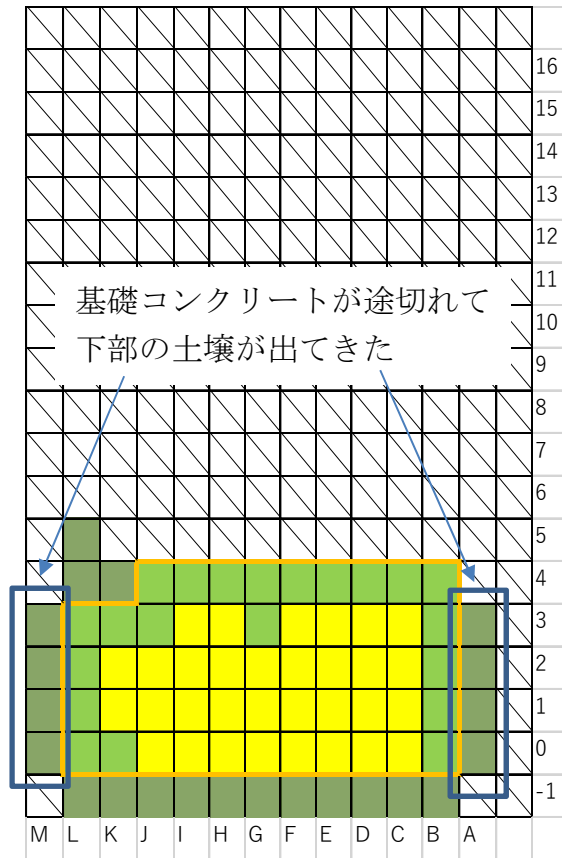
【第3層表面】

- 検出※
- 不検出
- 基礎コンクリート
- コンクリート塊
- 境界線（内側の土壌を回収した）
- 不検出(第三者機関測定)
- 境界線の外側

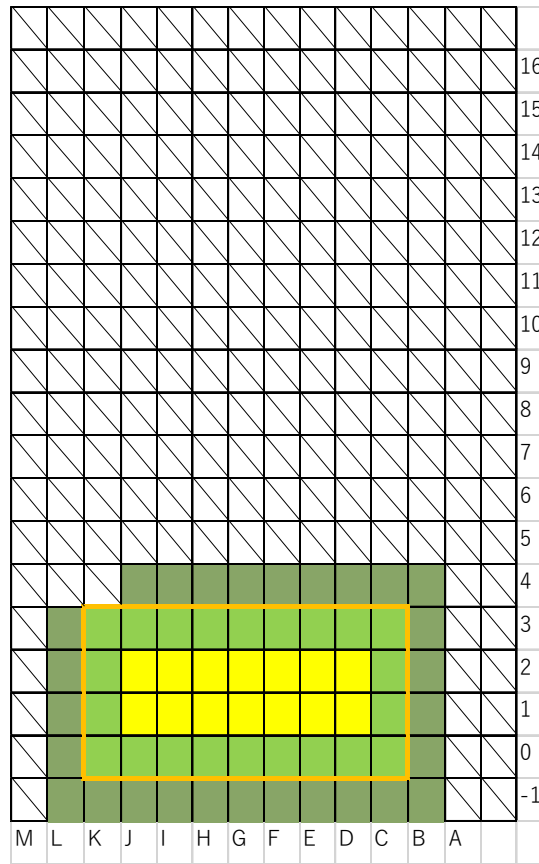
基礎コンクリートが途切れて下部の土壌が出てきた

※： ^3H か ^{14}C のどちらか片方でも検出限界値以上となったら検出とした

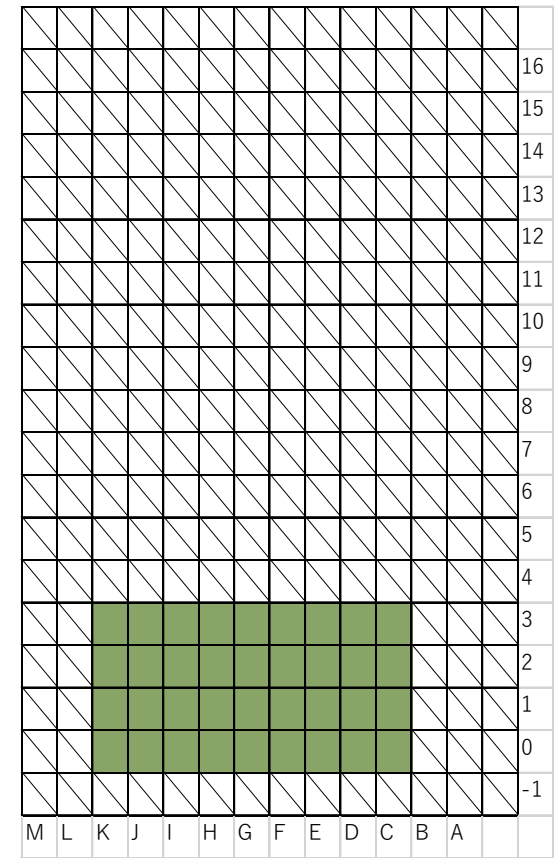
添付6-2



【第4層表面】



【第5層表面】



【第6層表面】

- | | | | |
|------------------|--------------|----------|---------|
| 検出※ | 不検出 | 基礎コンクリート | コンクリート塊 |
| 境界線 (内側の土壌を回収した) | 不検出(第三者機関測定) | 境界線の外側 | |

※： ^3H か ^{14}C のどちらか片方でも検出限界値以上となったら検出とした

添付6-3



【111室地下土壤回収後状況写真】

添付 7-1 : 第三者機関による脱落箇所B土壌測定結果

測定機関：(株)日本環境調査研究所

1. 測定結果概要

試料名	核種	放射性物質濃度 (Bq/g)	検出限界濃度 (Bq/g)
1層 A-12	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.1E+00
1層 B-12	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
1層 C-12	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
1層 D-12	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
1層 E-12	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
1層 F-12	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.1E+00
1層 G-12	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
1層 H-7	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
1層 H-8	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
1層 H-9	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
1層 H-10	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
1層 H-11	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
1層 H-12	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
1層 I-7	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
1層 J-7	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
1層 K-7	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.1E+00
1層 L-7	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 A-6	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 A-7	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 A-8	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 A-9	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 A-10	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00

試料名	核種	放射性物質濃度 (Bq/g)	検出限界濃度 (Bq/g)
2層 A-11	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.1E+00
2層 B-6	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.1E+00
2層 B-7	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 B-8	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 B-9	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 B-10	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.1E+00
2層 B-11	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 C-6	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 C-7	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 C-8	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 C-9	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 C-10	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 C-11	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 D-7	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 D-8	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 D-9	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 D-10	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 D-11	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.1E+00
2層 E-6	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 E-7	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 E-8	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 E-9	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00

試料名	核種	放射性物質濃度 (Bq/g)	検出限界濃度 (Bq/g)
2層 E-10	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 E-11	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 F-6	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 F-7	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 F-8	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 F-9	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 F-10	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 F-11	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 G-6	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 G-7	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 G-8	³ H	検出限界未満	2.9E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.1E+00
2層 G-9	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 G-10	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 G-11	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 H-6	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.1E+00
2層 I-6	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 J-6	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
2層 K-6	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.1E+00
2層 L-6	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 B - (-1)	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 B -5	³ H	検出限界未満	2.2E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	9.9E-01
3層 C - (-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00

試料名	核種	放射性物質濃度 (Bq/g)	検出限界濃度 (Bq/g)
3層 C -5	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 D -(-1)	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 D -5	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 D -6	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 E -(-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 E -5	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 F -(-1)	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 F -5	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 G -(-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 G -5	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 H -(-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 H -5	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 I -(-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 I -5	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 J -(-1)	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 J -5	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 K -(-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 K -5	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 L -(-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
3層 L -6	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 A -0	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 A -1	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00

試料名	核種	放射性物質濃度 (Bq/g)	検出限界濃度 (Bq/g)
4層 A -2	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 A -3	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 B - (-1)	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 C - (-1)	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 D - (-1)	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 E - (-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 F - (-1)	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 G - (-1)	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 H - (-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 I - (-1)	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 J - (-1)	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 K - (-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 K -4	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 L - (-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 L -4	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 L -5	³ H	検出限界未満	2.2E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 M -0	³ H	検出限界未満	2.2E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	9.9E-01
4層 M -1	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 M -2	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
4層 M -3	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 B - (-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 B -0	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00

試料名	核種	放射性物質濃度 (Bq/g)	検出限界濃度 (Bq/g)
5層 B-1	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 B-2	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 B-3	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 B-4	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 C-(-1)	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 C-4	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 D-(-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 D-4	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 E-(-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 E-4	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 F-(-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 F-4	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 G-(-1)	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 G-4	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.1E+00
5層 H-(-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 H-4	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 I-(-1)	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 I-4	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 J-(-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 J-4	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 K-(-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
5層 L-(-1)	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00

試料名	核種	放射性物質濃度 (Bq/g)	検出限界濃度 (Bq/g)
5層 L-0	^3H	検出限界未満	2.4E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
5層 L-1	^3H	検出限界未満	2.4E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
5層 L-2	^3H	検出限界未満	2.4E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
5層 L-3	^3H	検出限界未満	2.4E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 C-0	^3H	検出限界未満	2.4E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 C-1	^3H	検出限界未満	2.3E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 C-2	^3H	検出限界未満	2.4E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 C-3	^3H	検出限界未満	2.3E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 D-0	^3H	検出限界未満	2.4E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 D-1	^3H	検出限界未満	2.3E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 D-2	^3H	検出限界未満	2.5E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 D-3	^3H	検出限界未満	2.4E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 E-0	^3H	検出限界未満	2.4E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 E-1	^3H	検出限界未満	2.4E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 E-2	^3H	検出限界未満	2.3E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 E-3	^3H	検出限界未満	2.4E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 F-0	^3H	検出限界未満	2.5E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 F-1	^3H	検出限界未満	2.4E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 F-2	^3H	検出限界未満	2.4E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 F-3	^3H	検出限界未満	2.4E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 G-0	^3H	検出限界未満	2.3E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00
6層 G-1	^3H	検出限界未満	2.4E+00
	^{14}C	検出限界未満	1.0E+00

試料名	核種	放射性物質濃度 (Bq/g)	検出限界濃度 (Bq/g)
6層 G-2	³ H	検出限界未満	2.5E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 G-3	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 H-0	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 H-1	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 H-2	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 H-3	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 I-0	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 I-1	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 I-2	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 I-3	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 J-0	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 J-1	³ H	検出限界未満	2.3E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 J-2	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 J-3	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 K-0	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 K-1	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 K-2	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00
6層 K-3	³ H	検出限界未満	2.4E+00
	¹⁴ C	検出限界未満	1.0E+00

2. 分析・測定方法

2-1. 試料調整方法

受け取った土壌試料は分析前に全体が均質になるように、よく混合しておく。

2-2. ^3H ・ ^{14}C 分析・測定方法

^3H ・ ^{14}C の分析は、酸素気流中燃焼法により行う。燃焼装置を図1に示す。

測定は、液体シンチレーション測定装置で、外部放射線に対して十分な遮蔽能力を有するものである。

以下に H-3・C-14 分析及び測定手順を示す。

- 1) 酸化銅の触媒用電気炉の温度を800°Cに、試料用電気炉の温度を900°Cに昇温する。
- 2) 2-アミノエタノール2ml を入れた H/Cトラップ管を燃焼管出口と接続し、エアープンプを稼働する。
- 3) 試料0.5g の入った燃焼ボートを試料用電気炉燃焼管内にセットし、100ml/min の流量で酸素ガスを流して60分間捕集を継続する。
- 4) 捕集終了後、トラップ管はメタノール8ml で管内部に付着した2-アミノエタノールをバイアル容器に洗浄回収し、乳化シンチレータ8ml を添加して、測定試料とする。
- 5) 測定バイアル容器を液体シンチレーション測定装置にセットし測定する。測定時間は10分とする。

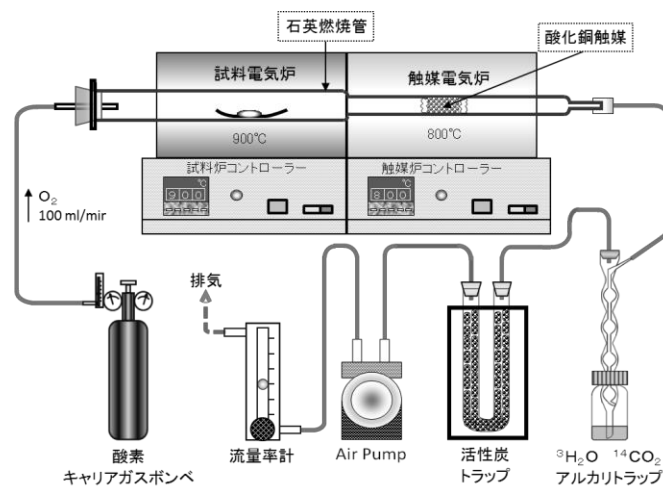


図1 酸素気流中燃焼装置

3. 検出限界計値の算出

自然計数率 (cpm) と測定時間 (min) から領域の検出限界計数率 (cpm) を求め、この値と領域の計数効率から検出限界値 (dpm) を算出する。なお、検出限界計数率 (cpm) は次式により算出する。

$$nd = \frac{k}{2} \left\{ \frac{k}{ts} + \sqrt{\left(\frac{k}{ts}\right)^2 + 4nb \left(\frac{1}{ts} + \frac{1}{tb}\right)} \right\}$$

nd : 検出限界計数率 (cpm) nb : 自然計数率 (cpm)
 tb : 自然計数率測定時間 (min) ts : 試料測定時間 (min)
 k : 3

出典 : JAERI-5002保険物理部の活動1960年

4. 測定機器

液体シンチレーション測定器 PerkinElmer Tri-Carb 5110TR

5. 分析日

令和4年12月1日～令和5年2月7日

6. 測定日

令和4年12月3日～令和5年2月8日

添付8：サンプリングブロック計算方法

サンプリングブロック（以下ブロック）：土壌を 30 cm×30 cm×30 cm で区切ったもの

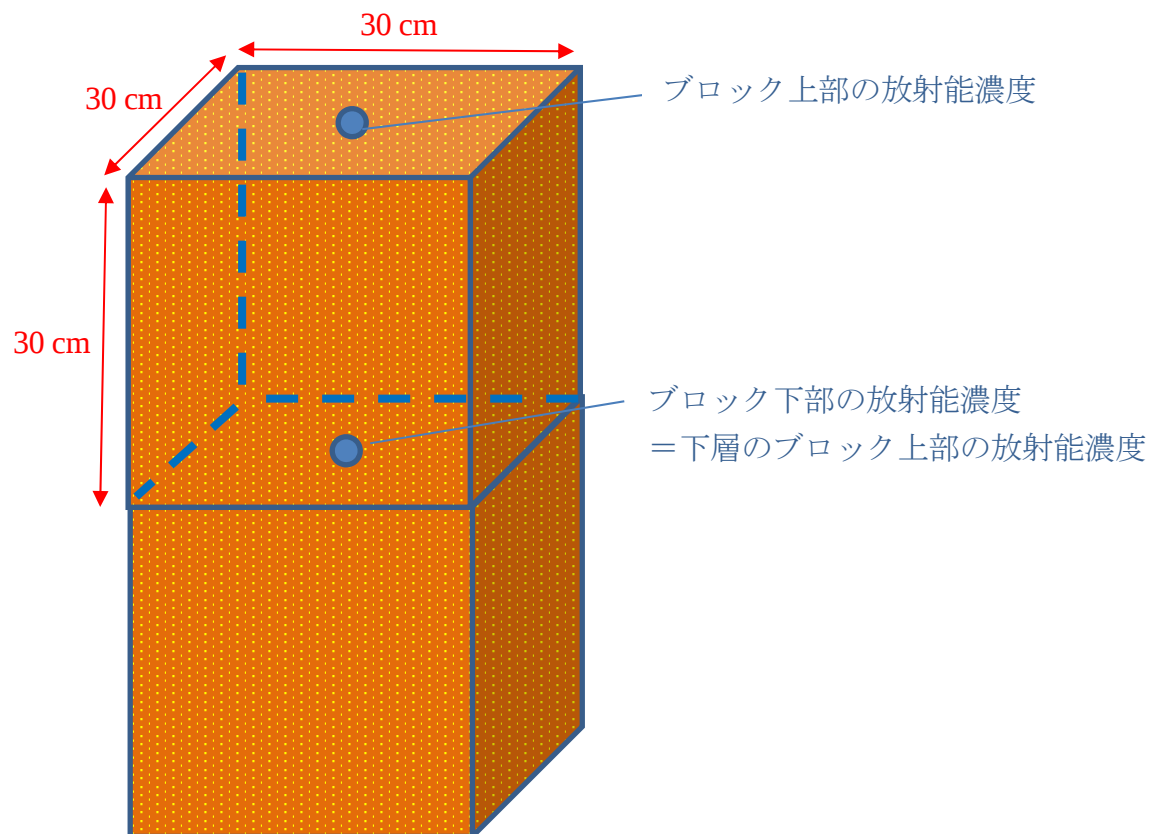
ブロック上部の放射能濃度：上部表面の中心で採取した土壌の放射能濃度

ブロック下部の放射能濃度：直下のブロック上部表面の中心で採取した土壌の放射能濃度

土壌重量：30 kg（1つのブロックの重量を計測した結果）

ブロックの放射能量＝（ブロック上部の放射能濃度＋ブロック下部の放射能濃度）÷2×土壌重量

なお、漏えい時期が明確でないため、半減期補正は出来なかった。そのため土壌中に確認された放射能量を漏えいした放射能量とした。



添付 9 - 1 : 脱落時期推定

これまで第一実験棟床下配管について定期的に点検した記録が残っておらず、脱落時期について正確な時期は明らかに出来なかったため、漏えいした総放射エネルギーと第一実験棟 111 室から排水した RI 量の関係性から、脱落した時期を以下の方法で推定した。

【脱落時期の推定方法】

- ①脱落箇所の上流側にある排水口は 111 室流しのみのため、漏えい放射能全量が 111 室流しから排水された RI 由来であると仮定して、RI の最終使用時期である 2020 年 3 月から過去に遡って、111 室からの総 RI 排水量を累計する。
- ②累計した 111 室からの総 RI 排水量が、漏えい放射エネルギー (^3H で $5.01 \times 10^8 \text{ Bq}$ 、 ^{14}C で $4.11 \times 10^8 \text{ Bq}$) に達した時期を脱落時期と推定する。なお、 ^3H については減衰を考慮する。

*前提①：111 室からの総 RI 排水量

第一実験棟における各部屋からの RI 排水量を記録する仕組みではなかったため、111 室での RI 使用量に「排水への RI 混入率=0.01」を乗じて、111 室からの総 RI 排水量を算出する。なお RI 混入率は許可申請書の排水設備能力計算条件に記載した値とする。

*前提②：111 室での RI 使用量

RI 使用申請は部屋毎に申請される仕組みであるが、実験に使用後排水される部屋は記録しない運用であるため、第一実験棟全体及び隣接する 315 室で使用申請^{*5}された RI 総量を、RI を排水していた部屋数 (^3H で 6 部屋、 ^{14}C で 7 部屋) で除して、111 室での RI 使用量を算出する。

※5： ^3H に関しては、1 件 1 件使用申請された日を基準放射能とし、2022 年 12 月 31 日までに減衰補正した。

【脱落時期の推定結果】

漏えいした総放射エネルギーと第一実験棟 111 室から排水した RI 量の関係性を表 2、3 及び図 1、2 に示した。その結果、 ^3H 漏えい放射エネルギー ($5.01 \times 10^8 \text{ Bq}$) に達した時期は 2010 年、 ^{14}C 漏えい放射エネルギー ($4.11 \times 10^8 \text{ Bq}$) に達した時期は 2015 年となった。

表 2 111 室の ^3H 排水量累計計算表 (減衰補正有)

年度	第一実験棟・315室の ^3H 使用量($\times 10^8 \text{ Bq}$)	111室での ^3H 使用量($\times 10^8 \text{ Bq}$)	111室の ^3H 排水量($\times 10^8 \text{ Bq}$)	111室の ^3H 排水量 累計($\times 10^8 \text{ Bq}$)
2019	77.33	12.89	0.129	0.129
2018	91.95	15.32	0.153	0.282
2017	862.66	143.78	1.438	1.720
2016	760.89	126.81	1.268	2.988
2015	178.59	29.77	0.298	3.286
2014	165.60	27.60	0.276	3.562
2013	99.88	16.65	0.166	3.728
2012	190.67	31.78	0.318	4.046
2011	250.36	41.73	0.417	4.463
2010	821.21	136.87	1.369	5.832
2009	183.91	30.65	0.307	6.138
2008	255.39	42.56	0.426	6.564

直近



添付9-2

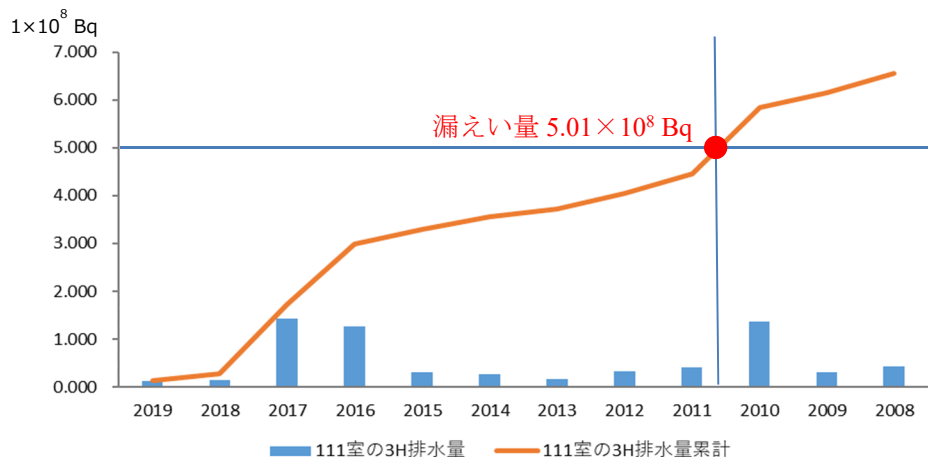


図1 111室の³H排水量および排水累計量

表3 111室の¹⁴C排水量累計計算表

直近
↓
過去

年度	第一実験棟・315室の ¹⁴ C使用量(×10 ⁸ Bq)	111室での ¹⁴ C使用量(×10 ⁸ Bq)	111室の ¹⁴ C排水量(×10 ⁸ Bq)	111室の ¹⁴ C排水量累計(×10 ⁸ Bq)
2019	293.70	41.96	0.420	0.420
2018	508.75	72.68	0.727	1.146
2017	789.75	112.82	1.128	2.275
2016	885.12	126.45	1.264	3.539
2015	579.57	82.80	0.828	4.367
2014	1132.94	161.85	1.618	5.985
2013	709.64	101.38	1.014	6.999
2012	885.83	126.55	1.265	8.265
2011	805.48	115.07	1.151	9.415
2010	2256.19	322.31	3.223	12.639
2009	1860.54	265.79	2.658	15.296
2008	2335.26	333.61	3.336	18.633

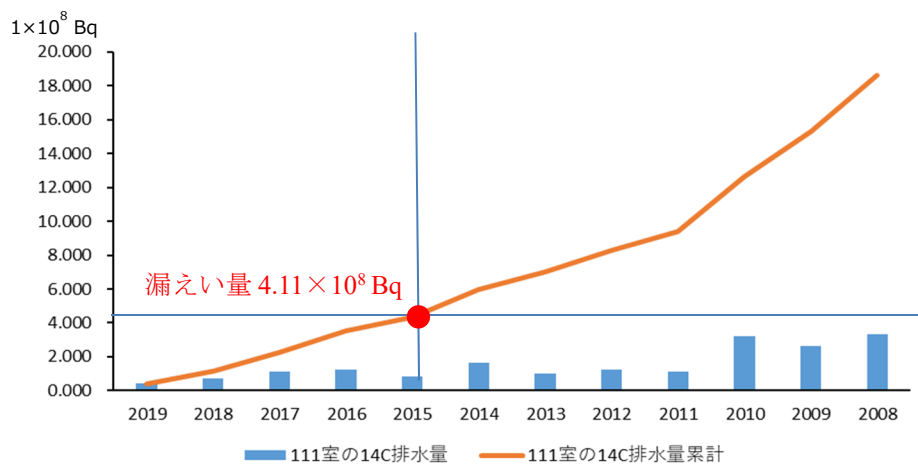


図2 111室の¹⁴C排水量および排水累計量

3. 破断箇所A 調査結果

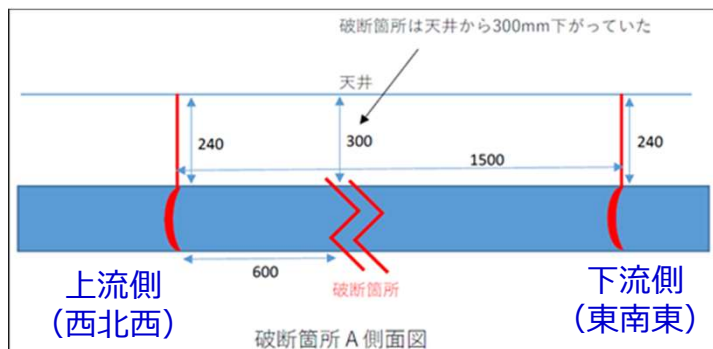
床下破断箇所の状況調査（写真）

前述したように、割れは塩ビ管ではなく、ソケット継手で発生している。

現場写真から、当該配管は、破断箇所であるソケットの上流側60cm、下流側90cmで、吊り下げ金具で固定されているが、この吊り下げ金具がいずれも、床壁面に沿って上流側配管から下流側配管の方向（西北西から東南東方向）へ変形しており、吊り下げ金具間で管のたわみが発生し、ソケット部が屈曲する形で下向きに大きな変形が発生したと推察された。

塩ビ管は、長尺延長する場合、塩ビ管端部に接着剤を塗布し、このようなソケット継手の両端より、管が突合せとなるまで差し込み、接着接合する。接着面は、管と継手の2層構造となり、通常はこのように屈曲するような変形は起こりえない。ただし、挿入不足で、突合せ部分にソケット単層となる部分が存在すると、自重を含め、負荷がかかった場合にはこの部分に応力が集中し、割れの起点となる可能性がある。

この吊り下げ金具の変形が発生した時期（施工時、割れ発生時、割れ発生後）が不明であるが、破断箇所の状況から、当該配管は床壁面に沿って西北西から東南東方向に、大きな変位が発生したことで、ソケット部が屈曲する形で下向きに大きな変形が生じ、これが割れに繋がったものと推察された。



破断配管 A 平面図



破断配管A全景



破断配管A 上流側吊り金具



破断配管A 破断部



破断配管 A下流側吊り金具



破断配管A 抜管サンプル状態

ソケット継手

抜管サンプルの破断状況調査（現地調査）

破断箇所においては、塩ビ管本体に割れや破損は確認できず、破断はソケット継手中央部のソケット単層部分、上流配管の端部（ソケット継手単層部との境界）での割れが原因であった。

本来、ソケット接合部分で突合せとなる上流側配管と下流側配管、特に上流側配管が突合せ位置となるソケット中央部まで挿入されておらず、ソケット単層となる部分が存在したことが確認された。

なお、ソケット破断面は、凹凸の激しいギザギザした波面をしており、外部応力によって、ほぼ瞬間的に生じる脆性破壊の様相を呈していた。

以上のことから、ソケット部が屈曲する形で下向きに大きな変位が発生した段階で、上記ソケット単層部に応力が集中し、挿入長さが短い（接着面積が小さい）、上流側配管と継手の2層構造の境界で、脆性的に破壊したと推測された。



破断配管A 配管名称



破断配管A ソケット破断面



破断配管A 上流側ソケット破断面



破断配管A 下流側ソケット破断面



破断配管A 割れ方向のサンプルの状態再現

4. 脱落箇所B 調査結果

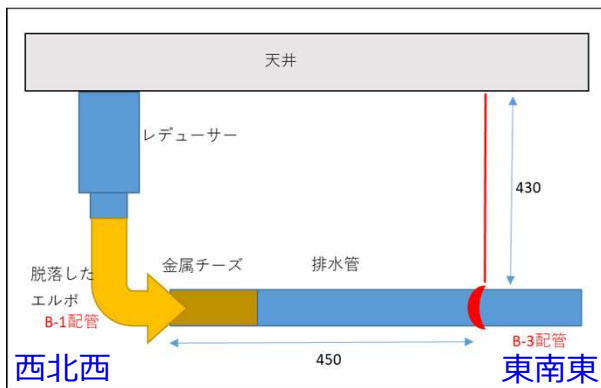
床下脱落箇所の状況調査 (写真)

割れは床部からのレデューサー端面と、エルボを介して鋳鉄のチーズと接続されているバルブソケットの接続端部のいずれも塩ビ樹脂部分で発生している。

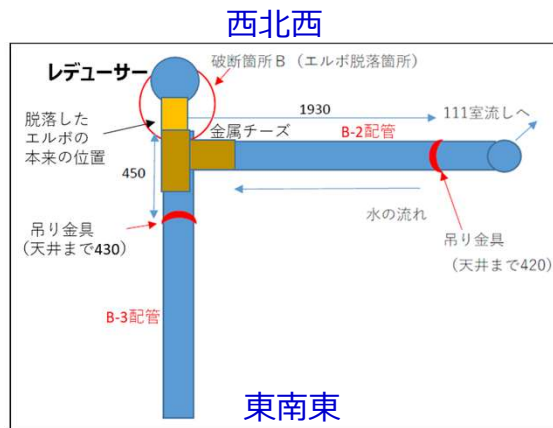
説明のため、脱落箇所周辺の塩ビ配管を下記のように、B-1、B-2、B-3配管とした。

レデューサー接続部分は接続されていたB-1配管には割れが確認できず、レデューサー縮径部が床壁面に対して垂直にえぐり取られる形で、また、バルブソケットは鋳鉄チーズ端面で同じく床壁面に対して垂直に破断し、脱落している。

現場写真から、B-2配管の上流側の吊り下げ金具は、床壁面にはほぼ垂直（西北西から東南東方向）に変形しており、B-1配管においても同様に、この方向に大きな変位が加えられた可能性が示唆された。



脱落配管Bを横から見た 平面図



脱落配管Bを上から見た 平面図



脱落配管B
上流側吊り金具部分



脱落配管B 脱落状況



脱落配管B 脱落前状況 (再現)



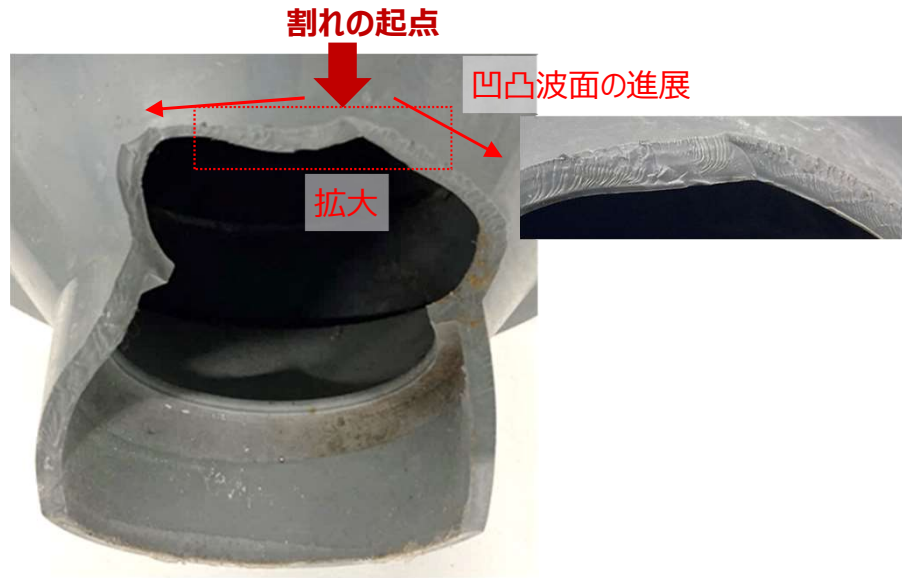
脱落配管B 鋳鉄チーズ破断部

抜管サンプルの破断状況調査（現地調査）

レデューサーの破断面は、凹凸の激しいギザギザした波面をしており、外部応力によって、ほぼ瞬間的に生じる脆性破壊の様相を呈していた。レデューサーにおいては、縮径部はレデューサー単層となり、配管との二重構造となる他の部分に比べて変形に対する強度は弱くなること、縮径部の波面の中央付近から、脆性破壊の凹凸破面が、両サイドに進展している様相が確認されることから、下記に示す部分が起点となった可能性が高いと思われる。



脱落配管B レデューサー破断状況



脱落配管B レデューサー破断面

铸铁チーズとの接続部であるバルブソケットにおいては、負荷を受けた場合、铸铁管とのソケットとの接合端面で、オスねじのねじ切り部に応力が集中することになるため、接合端面での割れとなったと考えられるが、異種管での接合であること、ねじ切り部は切り欠きの影響もあり、波面での破壊形態は特定できなかった。



脱落配管B バルブソケット破断面



脱落配管B バルブソケット铸铁チーズ側破断面

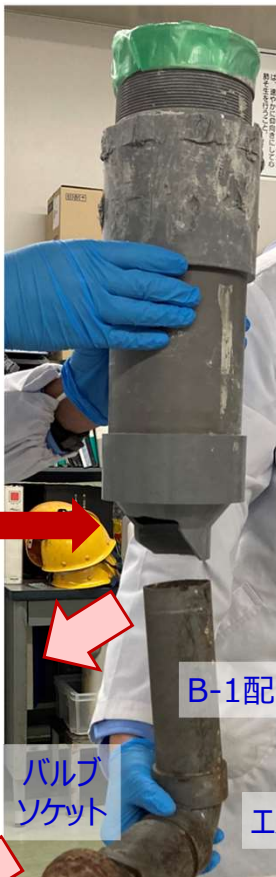
破断状況調査による脱落箇所Bの割れ要因についての所見

以上の各箇所の割れの状況（現場写真）と破断面の状態観察を実施した結果、レデューサー部分は床壁面と垂直方向（西北西から東南東の方向）に、吊り下げ金具が変形するレベルの大きな変位が発生し、鑄鉄チーズを介して接続されたB-2配管が床壁面と垂直に移動するに伴い、B-1配管も移動し、レデューサー接合部分で強度が弱い縮径部に応力が集中した結果、脆性破壊し、破断に至ったものと推定される。

バルブソケット部の破断、脱落については、波面観察での特定は困難であったが、レデューサーの破断状況から推察すると、同様の変位が発生したことで、鑄鉄管とのソケットとの接合端面には応力が集中し、引き裂かれる形でほぼ同時に破断、脱落に至ったか、もしくは、その段階で生じたクラック等の影響で、その後、B-1配管の自重によって破断、脱落が生じたと推察されるが、脱落の時間的な経緯を判断するには至らなかった。



脱落配管B 脱落前状況
(現場写真)



割れの起点



変位の方向



脱落配管B 脱落前状況
(床壁面を背面して観察したものを再現)



変位の方向



脱落配管B 脱落前状況
(上流側より観察したものを再現)

添付12：要因解析図

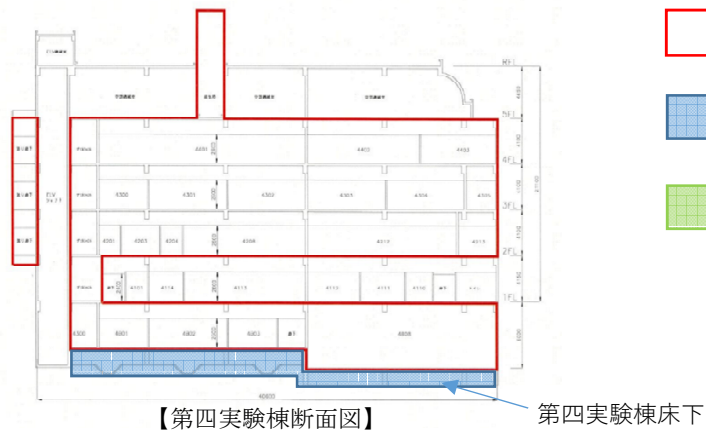
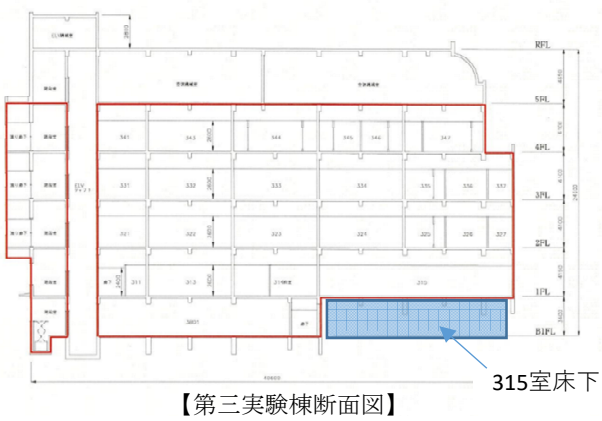
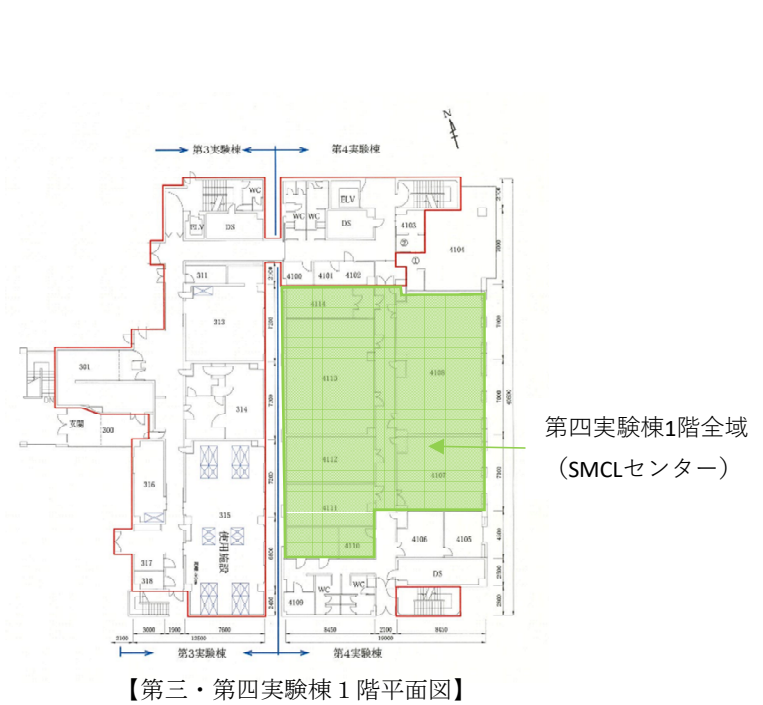
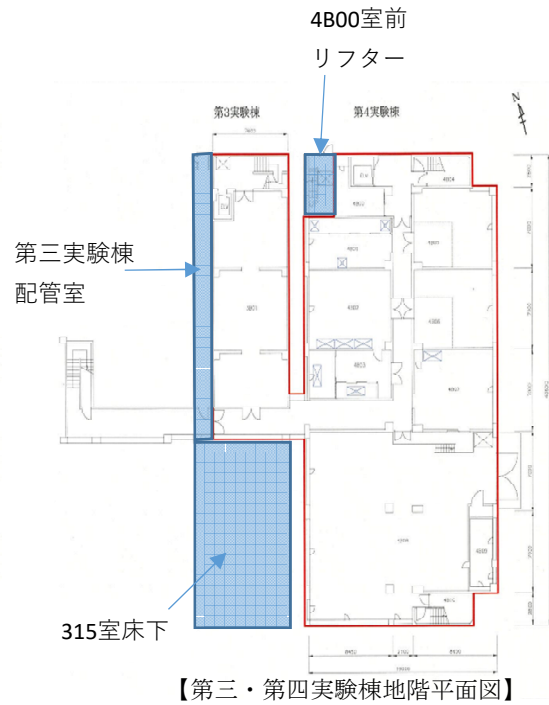
事象	原因	調査項目	調査結果	破断に至る可能性	破断面調査結果との一致 (瞬間的な強い力)	総合判断	考察	
破断	配管の経年劣化	排水管の状態	表面に劣化は確認されず	×	×	×		
	不適切な排水	排水管の状態確認	排水管の下に細かい横筋、および膨張が認められた聞き取り調査から、熱湯、洗浄に使った少量のメタノールを流した可能性があるが主要因ではないと判断した	△	×	×	破断面調査結果より排水管の状態異常による破断ではない	
	放射線	塩ビの耐放射線性	1.5MGy (胸部レントゲン : 400億回照射分) 放流した放射性物質では明らかに達しない	×	×	×		
	過剰な応力	建屋のゆがみ	建屋の傾き、ゆがみは計測されなかった	×	×	×		
		人為的な圧力		除染業者：破断面に埃が堆積していたので、今回の確認によるものではない	×	○	×	除染業者によるものではない
	過去：聞き取り調査を実施したが事象の発生は確認できず			△	○	×	判断不能	
	動物による圧力		動物が容易に入れない糞や足跡も確認できない	×	○	×	動物によるものの可能性は低い	
	施工不良		接続部呑み込み不足	呑み込み不足の箇所があるが接続部の強度は十分であり主要因ではないと判断した	×	×	×	
			接着剤の塗りすぎ	余分な接着剤の痕、確認できず	×	×	×	
			傾斜不足(長期滞留)	顕著な傾斜不足は確認できず	△	×	×	傾斜不足によるものではない
			排水管支持体不足	現在の一般的な基準より間隔が広がった	△	×	○	揺れによって、振幅が増幅され破断につながった可能性がある
	支持体脱落による配管のたわみ		支持体脱落は無かった	×	×	×		
	地震などによる揺れ		1965年以降、地震は何度も発生している	○	○	○	破断・脱落に至った直接の原因の可能性大	

○：可能性大
 △：可能性あり
 ×：可能性なし

○：尖った破断面になる事象
 ×：尖った破断面にならない事象

○：主要因
 ×：影響なし

添付13：RI管理区域化予定箇所図面



- : RI管理区域
- : 2023年度中の管理区域化を目標
- : 2024年度中の管理区域化を目標

添付 1 4 - 1 : 井戸水測定結果

近隣井戸水中放射能測定（半期毎・事象発覚後は毎月・ ^3H のみ）および事業所内の井戸水中放射能測定（週次・ ^3H および ^{14}C ）結果のグラフを以下に記載する（図3、4、5）。BG 試料は水道水を使用した。なお、本測定は測定試料と BG 試料を比較して放射能の有無を確認する測定のため、両試料共に測定結果に影響を及ぼす不純物を含んだまま測定しており、 ^3H および ^{14}C の値は過大に評価されている。

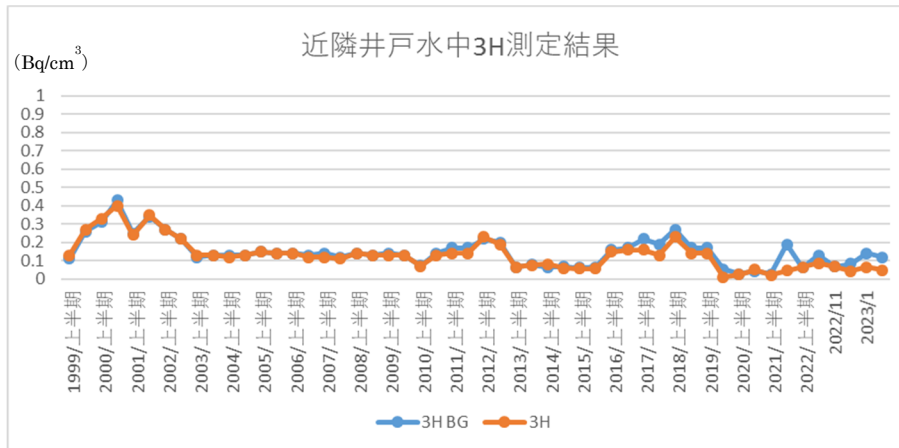


図3 近隣井戸水中放射能測定

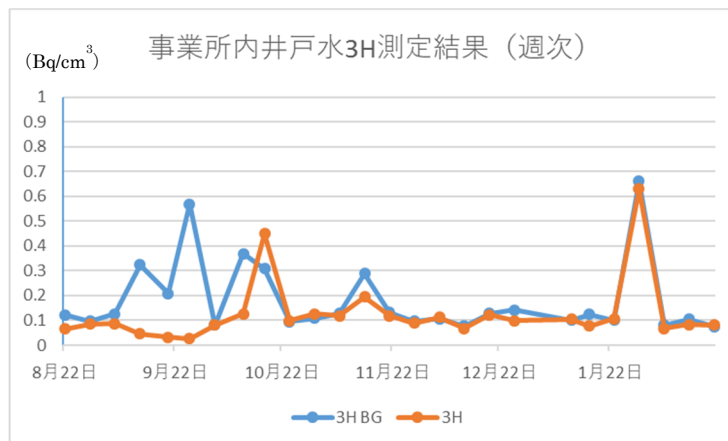


図4 事業所内の井戸水中放射能測定 (^3H)

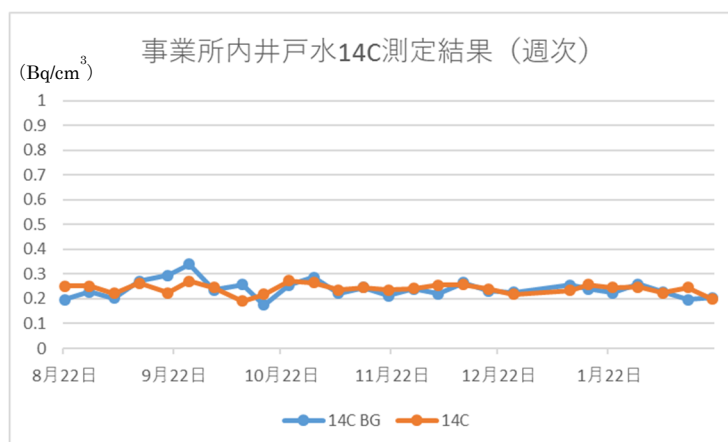


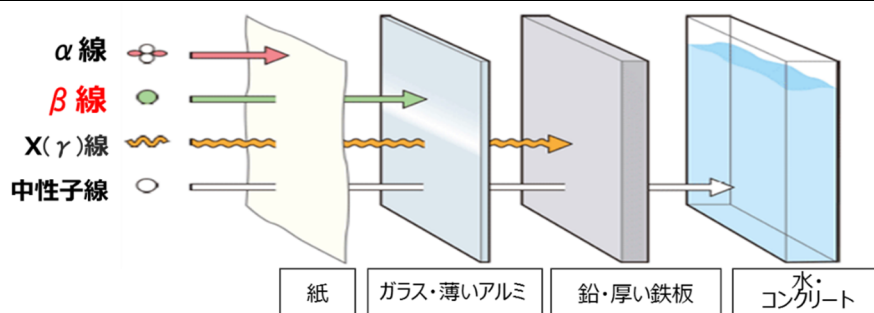
図5 事業所内の井戸水中放射能測定 (^{14}C)



図6 井戸水採水場所

参考資料 1 - 1 : 用語類の解説

^3H (トリチウム)	自然界にも存在する放射性核種で、水の中に僅かに含まれている。半減期約 12 年。 β 線を放出するが、その空気中の最大飛程は数 mm 程度であり、外部被ばくの要因となることは無い。
^{14}C (炭素 14)	自然界にも存在する放射性核種で、あらゆる有機物に僅かに含まれている。半減期 5730 年。 β 線を放出するが、その空気中の最大飛程は 25 cm 程度であり、ある程度の距離があれば外部被ばくの要因となることは無い。
レデューサー	異なる径の配管を接続させるための、漏斗のような形状の部品。写真 1 参照。
バルブソケット	塩ビ配管のネジ部。金属管などねじ込み式の配管と接合させる際に使用する部品。写真 2 参照。
吊り金具	天井から配管を吊り下げる際に使用する金具。写真 3 参照。
振れ止め支持	配管を壁や床などに固定するための金具。写真 4 参照。
耐火二層管	外層にセメントモルタル管、内層に塩化ビニル管の二層構造からなる排水管。
フェイルセーフ構造	故障・破損・操作ミスなどが発生した際、必ず安全側に移行することで被害を最小限に抑える仕組みを持つ構造。多重防護。ここでは配管が破断してもコンクリート床で漏水を受け止め環境に広がらないような構造を指す。
科学技術庁告示第 5 号の下限濃度(放射性同位元素と認められる濃度)	IAEA (国際原子力機関) 国際基本安全基準 (BSS) の規制免除レベルであり、当線源についてその使用や処分に伴う全ての被ばく経路を考慮して、その被ばくが年間 $10 \mu\text{Sv}$ になるよう科学的に算出された数値。
預託実効線量	放射性物質を摂取した場合に、それ以降の 50 年間 (小児は 70 歳まで) にその放射性物質によって被ばくする線量の合計値。
公衆被ばくの実効線量限度	ICRP (国際放射線防護委員会) 2007 年勧告に定められた、職業上で被ばくすることのない一般公衆の被ばくの限度。
バイオアッセイ	生物材料を用いて生物学的な応答を分析するための方法。ここでは尿中の放射性物質濃度を測定することで内部取り込みの有無を確認した。



参考資料 1 - 2



【写真1 レデューサー】



【写真2 バルブソケット】



【写真3 吊り金具】



【写真4 振れ止め支持】

解 説

土壌中における溶解物質の移動予測のシナリオ

中 野 政 詩*

Material transport in soils

M. Nakano

Faculty of Agriculture, The University of Tokyo

Summary

It is essential to make clear a system analysing material transport in soils, in order to increase food production and to conserve the natural environment. This report describes a quantitative concept of physical, chemical and biological phenomena making up a system of material transport in soils, such as pore structure in soil, absorption of ions to soil particles, capture of solid particles in pores, decomposition of organic matter, and dissolution and precipitation of chemical materials in soil water. In conclusion, it is stated in detail that prediction of material transport in soils will be successful after such actions are quantitatively described by using mathematical equations and after they are combined with material transport equations.

Keywords: Soil, Mass transport, Ion exchange, Particle migration, Material degradation, Material desolution, Precipitation
(Soil Phys. Cond. Plant Growth, Jpn., 67, 51-57, 1993)

1. はじめに

土壌の中では、多種多様な物質、たとえば土壌鉱物や農業・肥料由来の無機イオン、無機化合物、懸濁微細固形粒子、あるいは生物体由来の炭水化物、タンパク質、油脂、あるいは炭酸ガス、メタンガスのような各種ガス成分などが集積したり、あるいは消失したりする。それは、土壌を構成する土粒子や有機物が移動中の物質を吸着したり、吸着していた物質を放出し土壌中の移動にゆだねるからにはかならない。人類は、古くから、植物の栽培、汚水の処理、施設の建設などにこうした現象を巧みに使いこなし、豊かな生物生産や快適な生活環境作りをすすめてきた。最近では、さらに、砂漠の緑化、土壌劣化の防止、水質の浄化など自然環境の保全のために、この現象を上手に活用しようという考え方が定着している。

その際にいつも求められている事は、物質がどのような原理によって土壌中を移動するのか、土壌中での物質の吸着や放出がどのような規則にしたがっておこなわれ

るのか、という事である。それは、とりもなおさず、溶解物質の移動予測のシナリオを求める事にほかならないと思われる。しかし、そのシナリオは、完成されているとはまだまだいい難く、詳しい研究を待たなければ正確に描きつくせない現状にあらう。しかし、現代におけるその必要性和重要性を思い、あえてここに、いま研究に努力が払われている事項¹⁾を概観してみたい。それは移動予測シナリオのデッサンと言ってもよいものである。

2. 溶解物質の移動・集積・消失のシステム

土壌中における物質の移動は、ひとつには、物質が水に溶けて、水の中を拡散するか、水の動きに乗って土壌の間隙網をたどって発生する分散流および水のフラックスにより運ばれる移流によって行われる。ふたつ目には、ガス体として土壌空気中に存在し、土壌間隙を拡散する事によって行われる。ガスの分散流や移流による移動は、全圧を変化させるような特別な事情がないかぎり発生しないであらう。

*東京大学農学部

キーワード: 土中物質移動、土壌のイオン交換、粘土粒子の捕獲、有機物の分解、溶解と析出

土壌中の物質の集積や消失について、まず岩石の風化過程に生成された無機物質や土壌に投入された農薬・肥料物質について言えば、土壌中に集積することは、水に溶けて移動していた物質が粘土鉱物や土壌有機物など土壌構成物質に吸着されたり、固体状の塩を生成して静止する事である。また、土壌の外部からの投入が多くなったり、土壌鉱物の結晶中から溶け出して液相中の濃度が濃くなることでも行われる。土壌から消失する事は、水に溶けていた物質が水と一緒に土壌体の外部に流出する事であり、土壌の構成物質に吸着されていた物質が離脱して水中に放出されたり、固体状の塩や土壌鉱物から水に溶けだしたものが、水の土壌外流出により土壌外に排出される事でもある。

生物体由来する有機物質について言えば、土壌中で集積は、第一には生物体の分解によるところが大きい。しかし、注目する有機物質によっては、やはり水に溶けて移動してきた物質が土壌構成物質に吸着あるいは捕獲されたり、腐植物質を形成し土粒子の表面に付着して静止することによって行われる。有機物質の消失は、土壌微生物の働き等によって分解をうけてしまったり、やはり水に溶けて移動し水と一緒に土壌の外に流出する事によって行われる。有機物質については、つねに分解をうけて消失する方向が大きいと考えてよい。

ガス状物質について言えば、その集積は、固体状の無機物質の生成や分解、あるいは有機物の分解、土壌微生物や植物根の呼吸などがきわめて急激に進むときに発生する。その消失は、やはり水に溶けて水の移動により土壌外に流出することでも行われるし、水に溶解していた物が土壌空气中に析出して土壌間隙をガス体で移動し、土壌の外に消散していくことで行われる。

こうしてみると、土壌中の各物質の振る舞いは、移動・集積・消失の連鎖と、くわえて固相成分としての存在・液相に溶解した存在・気相成分としての存在および有機物相成分としての存在の連鎖という二重の連鎖の中にある、いわば一つのシステムを形成していると言うことができる。そこで、土壌中のある部位におけるある一つの物質の振る舞いは、次のようなシナリオの下に追跡されることになるだろう。

まず、注目したある物質が、液相中にも気相中にも固相中にも存在する場合を仮想しよう。そこで、注目した物質の液相・固相間のやりとりがなく、液相・気相間のやりとりもない、かつ液相や気相そして固相内では分解・生成もなく物質が土壌中を移動するような単純移動ケースを想像しよう。土壌中では、こうした単純移動ケースはまず有り得ない。この場合、単純に、液相中の移動追跡と気相中の移動を追跡し、液相および気相中に存在す

るものを追跡することで目的は万事達成される。

たとえ、液相中や気相中でのその物質の分解・合成が発生しても、なお液相・固相間のやりとりもなく、液相・気相間のやりとりもない、かつ固相内での分解・生成もないような場合には、まだ液相・気相における移動計算によって液相中・気相中にあるものの追跡をおこなうことでよい。このケースで、液相と気相間のやりとりが併発しても、そのやりとりを移動計算のさいに考慮すれば、追跡の型はこれと変わることはない。

さらに、物質の液相・固相間のやりとりが併発する場合でも、化学的反應を受けて液相中に存在したときに持っていた性質を固相中では失ってしまうといった性格のものである場合には、その追跡はまだ単純移動ケースの場合と同じ形式ですむ。

しかし、それ以外の場合、つまり、物質が液相から消失しても、たとえば固相に吸着されてもなおその性質を維持し続ける場合であるとか、固相中で、次々に新しく生産され、かつ水に溶解し続けるような場合には、液相中や気相中に存在するものについて追跡することと平行して、固相中に存在するものの量的な変化を追跡しなければならない。言うまでもなく、この場合、移動は気相と液相それぞれについて計算し、集積や消失は液相、気相、固相のそれぞれに存在するものの総和として示すことになる。もちろん、三相それぞれの移動速度の比率や存在比率を示すことがきわめて重要で、かつ必要である。土壌では、このケースが普遍的なケースである。

このようなやり方で物質を土壌中で追跡する事は、その移動・集積・消失が土壌の中のどのような所で行われているかを明らかにする事に他ならない。ところが、土壌のミクロな構造は土壌ごとに異なり、多様なものがある。そこで、土壌中の物質追跡を試みるには、追跡を試みようとしている土壌の構造をあらかじめ把握する事が要求される。ついで、追跡しようとしている物質の物理的、化学的、生物的变化あるいは変質、さらに固相や液相、それに気相の中での形態についてまえて理解しておく事が要求される。

3. 土壌の間隙特性と水・ガス移動

物質の移動は、土中水や土中ガスが移動する土壌間隙の中で行われる。従って、その移動追跡は、土壌の間隙構造の特徴に応じて発生する水とガスの移動を適切に追跡しうる数理モデルを構成しなければ適正に行われない。

土壌には、マトリクス間隙とマクロ間隙がある。それらの大きさの境界は小さいところで取れば径75 μm ぐらい、目視の範囲で言えば、1000 μm ぐらい²⁾にあるとい

う。マトリクス間隙は、土粒子が集合してできたすきまであり、土壌が持つ基本的な間隙である。それは、団粒構造がない土壌では単純に不規則な網目形状をとって広がっている。団粒構造が発達した土壌では、このマトリクス間隙は、さらに2種類に分かれる。すなわち、団粒内マトリクス間隙と団粒外マトリクス間隙に分かれる。マクロ間隙は、植物の根跡、土壌動物の活動跡、乾燥亀裂、力学的なせん断跡などである。その大きさ、長さ、形状は、土壌によってまちまちである。

土壌中の水の移動は、従って、マトリクス間隙を移動するものとマクロ間隙を移動するものに分かれて行われる。砂の水移動は単純な網目形状をとるマトリクス間隙をたどるものだけである。しかし、通常、土壌では、ほぼ確実に団粒構造が存在し、マクロ間隙も形成されているので、水移動はその形態によって異なった状況になる。すなわち、地表から雨水やかんがい水が浸潤するような場合の水移動では、団粒構造下のマトリクス間隙を経由する水移動と、マクロ間隙を経由する水移動とが共存する。とはいえ、マクロ間隙を通る移動が最も早く、しかも大きい。ついで団粒外マトリクス間隙を通る移動、そして団粒内マトリクス間隙を通る移動の順に遅く、かつ小さくなる。大雨の土中への浸透のような場合の水文学的スケールでは、マクロ間隙が主役となることがあろう。それも、空洞のように大きいもの、たとえば通路空隙とも言うべきものが主役であろう。それに対して、蒸発により地表に向かう水移動や蒸散による植物根に向かう水移動では、マトリクス間隙を通る水移動が主役になる。この場合、団粒外、団粒内の水移動の区別を重みを付けることは困難であり、両者がどうじに複合して働くものと考えられる。

ガスの移動は、土中空気が存在する間隙、つまり空気間隙の中で行われる。概して言えば、土中水分が多い状態ではマクロ間隙がその主役となり、土中水分が減少するにつれてさらに団粒外間隙が加わり、さらに土中水分が減少すれば団粒内間隙もガス移動を行うようになろう。ただし、この際の空気間隙は決して気相率で表される間隙ではない。正確には、通気空気率といった用語を用いて言うような土中空気が連通している間隙である。言うまでもなく、これは気相率より小さくなる。土中水分が多いほどその差は大きく、土中水分が小さくなるにつれその差は殆ど無くなるような性質のものであろう。

ところで、粘性土、それもモンモリロナイトを50%以上も含むような土壌では、もう一つの間隙の形態がある。モンモリロナイトは8枚前後の薄い板状の鉱物が積み重なってあたかも一つの粒子のように振る舞う粒子構造をとっている。これは層状体と言われる。この層状体の間

には水を持つ事が出来る。モンモリロナイトを含む粘性土の土壌では、そのため、層状体がまた幾つか集合して団塊を作り、この団塊が集合してマトリクス間隙を作ると考えられる。従って、この土壌では、マクロ間隙やマトリクス間隙の他に、マトリクス間隙よりさらに小さい、板状の鉱物の間にある間隙、すなわち層間間隙が存在する。そして、この層間間隙も水分量が多いときは水が通る隙間になっているとみられている。水分量が小さくなったときにもこの層間間隙が水の通路となっているかという疑問には、そうになっているとはわかには答えにくい現状にある。

粘性土におけるガス移動では、層状体を作る団塊間にある間隙がその通路であり、層間間隙はまずその通路となる事はない。粘性土で空気間隙が発生するのは相当に土中水分の少ない乾燥状態になっているときであろうと思われるが、その通気空気率は、一つ一つの間隙が極めて小さいことから、間隙ネックのいたるところに水が凝集していわゆる液島が形成され、間隙の連続が分断されていると想像されるので、気相率よりかなり小さいものとなるであろうと考えられる。それで、粘性土のガス移動もやはりマクロポアが主役を果たすものと見られる。

4. 土壌中における物質の物理・化学・生物的な挙動

(1) 粘土粒子や有機物による物質の吸着・離脱

物質の吸着と離脱は、土壌中では一種の物質交換反応である。しかし、液相からみても固相からみても両者はただ方向が反対向きで生じる現象で、物質の保存を移動学的に見る場合、離脱は数式の上では負の記号を取る吸着項として処理してよい。粘土粒子の表面には、負荷電が並んでいる。正荷電も持っているが、それは負荷電の1/10程度である。腐植も負荷電を持っている。そのため、無機化学物質やタンパク質、脂質の一部などの電解質との間では静電力が働く。また土壌中の微細間隙に残された生物由来の有機化学物質との間には、共有結合ないしは水素結合が行われる可能性がある。こうして吸着が生じるが、それは瞬時的に行われるものとみなされている。そのため、吸着されている物質の量と水に溶けている物質の量との間に平衡が常に成立していると考えられている。吸着する物質と吸着される物質との間に働く力の大きさは、その組み合わせによってことごとく異なっている。粘土粒子と無機イオンの関係についていえば、陽イオンでは、2価のイオンの方が1価のイオンよりも強い静電力が働き、一価のイオン同士ではイオン半径の大きいセシウムのほうが半径の小さいナトリウムに比べて大

きな静電気が働く。また、陰イオン同士では、珪酸イオンの方が硝酸イオンよりも強く吸着される。そのため、粘土粒子あるいは有機物とイオンとの間には物質の組み合わせのことごとくに特有の関係式が成立していると思われる、これは吸着平衡曲線と呼ばれている。吸着平衡は、また、注目した物質のみの量的な状態だけでなく、液相中に共存する多種物質や吸着されている多種物質の種類や量、それらの総量などによってもことごとく異なっている。例えば、グラフの上の一方の軸に吸着されている全ての物質に対する注目している物質の分率をとり、もう一方の軸に土中水中に溶解している注目物質の濃度分率を取ってこの吸着平衡曲線を描いてみると、直線で表される物もあり、上向きに凸の曲線になるときもあり、下向きに凸の曲線になる事もある。今のところ、この吸着平衡曲線をケース毎に一つ一つ測定して、土壌中での吸着の状況が見積もられている現状である。しかし、注目した物質が複雑な構造を持つ高分子物質であるとか、土壌構成物質との間に働く作用がよく把握しえないような物質である場合には、単に吸着される量が液相中の濃度の関数となるとするとフロイドリッヒ式、あるいはラングミュア式のような単純な物理式を利用することもよく行われてきた。

(2) 微細固形粒子や微生物の捕獲とフラッシュ

固形粒子の代表として粘土粒子を見ると、その大きさは単粒では約 $2 \mu\text{m}$ 以下であるが $30 \mu\text{m}$ 程度の団粒をつくっている。微生物は、細菌で代表すれば 5 ないし $0.2 \mu\text{m}$ の大きさである。一方、土壌のマトリクス間隙は $\text{pF}3$ 相当の間隙で $3 \mu\text{m}$ ほどの大きさがある。 $\text{pF}2$ 相当では $30 \mu\text{m}$ である。つまり、微細な固形粒子や微生物を懸濁しているような、いわゆる汚濁水が土壌表面に供給されたとき、あるいは降雨中の雨滴の衝撃による土壌団粒の破壊により土粒子が分散するようとき、水の土壌中への侵入とともに固形粒子も微生物もやはり土壌中を移動し、土壌中のどこかに集積する。この集積は、土壌による捕獲といわれる。

こうした捕獲は、第一に、土壌間隙の径より大きい物質は間隙を通過することが出来ずに間隙の入り口に引っかかり間隙を閉塞するように行われる。これは機械的ふるい作用による閉塞といわれる。第二に、間隙を通過中の物質が間隙の壁に近づいて壁に接触するようとき、物質は壁に付着し間隙径を縮小するようにも行われる。これは運動学的作用による閉塞といわれる。第三に、間隙の中にある水のなかでも物質は沈降運動をすることもあり、間隙がちょうどT字路のようになっている所で沈積するようにも行われる。これは沈積作用による捕獲と

いわれる。もちろん、表面に荷電を持っている微粒子は間隙の壁との間で静電力を働かせて捕獲される。このような捕獲現象は、土壌の透水性を減少せしめることになる。

土壌による微粒子や微生物のこのような捕獲は、やはり、すでに捕獲されている量および水中の懸濁物質の濃度によって左右される。しかしこの場合、更に、水が移動する速さ、すなわち水の移動フラックスによってその程度が左右される。水の移動フラックスは水圧と透水係数によって決められるため、捕獲は水圧の大きさおよび透水係数によって異なるといわれることもある。もちろん、土壌間隙の大きさおよび粒子径が大きく効いている。また、土壌水分量によっても左右される。しかし、捕獲量とこうした諸因子との間の関係は、種々のものが提案されているとはいえ、定説的なものはまだ挙げる事ができない。追跡の目的や土壌条件、微粒子や微生物の特性に応じて、適切な関係を個々に調べて使う現状である。従来、やはり、懸濁粒子の場合やウイルスの場合に、フロイドリッヒ式、ラングミュア式を用いてうまくその移動と集積を追跡した例もあったようである。

微細固形粒子や微生物の土壌からの消失は、フラッシュと言われる。つまり、流速の大きい水の流れが与えられたときに、土壌中に集積していたものが洗い流されるような現象である。フラッシュの程度は、水移動のフラックスの大きさ、従って侵入水にかけられる外部水圧の大きさによって左右される。しかし、フラッシュは、人工的な浄水槽のなかでは見られても、自然界に生じる土壌中の水移動ではまず発生しないと考えられる。

微生物の土壌からの消失では、微生物には自走性があり自ら移動する事でも行われると言われている。しかし、その詳細な現象はまだまだ明らかではない。微生物の消失は、なんとといっても、個体の過増殖、土壌環境の急激な変化や栄養の極端な不足などに見まれて生命活動を終え、生体が分解されるといったような生物学的な原因によるものが大きいとみられる。これは、生物体由来の有機物の分解の範ちゅうで考えられよう。

(3) 有機物の分解と放射性物質の崩壊

生体は、水のほか、でんぷんやセルロース、ペクチンなどの糖質、タンパク質、脂質、リグニン、タンニン、それに灰分などから構成されている。土壌中に残された植物や動物の遺骸は、機械的に細粒化され、微生物により分解され、分解生成物として各種の有機化合物を土壌中に放出する。また、この分解過程では、単糖類の縮合であるとか、アミノ化合物と糖質やリグニンとの反応であるとか、リグニンの解重合等が生じ、腐植物質が合成

される。最終的には、この腐植物質も分解され、生体由来のすべての有機物は炭酸ガス、アンモニア、硝酸塩などに姿を変えてしまう。

この各種有機化合物の分解速度は、その物質の現存量に比例する。従って、注目した有機物の量は、土壌中で時間の経過につれて指数関数的に減少する。その比例係数は、分解係数と言われ、注目した物質毎に異なっている。たとえば、でんぷん、単糖、タンパク質などの分解係数は $3 \times 10^{-1} \text{d}^{-1}$ 、セルロースについては $8 \times 10^{-1} \text{d}^{-1}$ 、リグニンでは $5 \times 10^{-4} \text{d}^{-1}$ 、など¹⁾⁻³⁾が与えられている。この大きさの違いは相当に大きく、そのため糖質やタンパク質は早々に土壌中から姿を消してしまうので、易分解性有機物と言われている。リグニンは長い間土壌中に見られ、難分解性有機物と言われている。一つの物質についてのこの比例係数は、分解者である微生物の生息状況によって変わってくると思われる。しかし、それは物理的には温度の違いにより大きく変わるものと言いついて変えて解釈されている。また、土壌の質たとえば粘土鉱物の種類や量によっても異なる。さらには、分解有機物質の現存量によっても変化すると思われるが、これは定かではない。つまり、気候条件、土壌条件により独特の値を取る。長期間にわたって注目物質の分解・生成を追跡しようとするときには、この比例係数は、温度、経過時間あるいは現存量の関数として扱うことが必要になる。

土壌中の有機化合物は、長い時間スケールでみれば、消失過程のみが行われる。しかも、注目した物質の消失は、化学変化を受けて他の物質に変わってしまうもので文字どおりその場で消えうせるものである。

しかし、注目する有機化合物が有機物の分解過程で生じる中間生成物の場合、注目した物質がまったく性質の異なる親物質から化学変化によって発生する速度がその分解消失速度を上回るときには、土壌中での集積がみられる。

有機化合物の土壌中への集積は、なんといっても、自然的にも人為的にも生物体の土壌への投与がその分解を上回るほどに行なわれることによって進行する。例えば、稲藁を連続的に投与すると300年ぐらまでは年々有機物が蓄積されていくという予測がある⁴⁾。

有機化合物の分解の場合、分解者である微生物は有機物に付着して生息しているであろうので、おそらくその分解は、土粒子に付着しないしは吸着した有機物およびその分解生成物の分解が主体であり、土中水に溶け出した有機化合物の分解現象はかなり少ないと思われる。

さて、放射性物質の移動・集積・消失については、これまで有機化合物に関して述べてきた事項が、ただ有機

化合物を放射性物質と読み変えるだけで、そのまま適用できる。また、電解質について述べた事項もそのようにして適用できる。つまり、放射性物質も、親物質の崩壊から注目する物質が生成され、注目物質は崩壊により性質の異なる異種の物質に変化することは有機化合物のケースと変わりがない。しかし、土中水に溶解した状態であっても、土粒子など土壌構成物質に吸着されていても、それぞれ同等の重みで常に崩壊を起こし、こうした変化を継続し続けるという点は有機化合物の場合と異なると思われる。

(4) 化合物やガスの分解・生成と水への溶解・析出

無機化学物質にしても有機化学物質にしても、またガスにしても、それ自体の分解・合成は言うまでもなく化学反応である。これの土中水への溶解・析出現象も、また、物質は水と化学反応していると考えられる。土壌中に水が停留しているか、あるいは水の移動があってもフラックスが極めて小さい、例えば 10^{-6}cm/s 以下のような場合は、反応物質の供給がないし、物質と水分子との接触時間が長いわけで、その反応は平衡に達していると考えられる。しかし、水移動がそれより速い場合では、反応物質が常に供給され、分解・生成あるいは溶解・析出が発生し続ける。土壌では、これが日常である。この場合の反応は、大方の物質ではやはり瞬間的に生じるものと考えてよいが、遅いものもあることだろう。ちなみに水の解離反応の速度は特別に速くて1マイクロ秒以内と言われているが、金属たとえばクロムや鉄とシアンなどの錯体形成の反応の場合では数日から数十日を要するような極めて遅いものもある⁵⁾と言われている。ガスの溶解・析出の際の水との反応はだいたい瞬間的なものであり、常に平衡状態にあると考えてよい。

そのため、このシナリオで必要な注目する物質の分解・生成あるいは溶解・析出速度はこの反応速度を知ることによって与えられる。この速度は、やはり、注目している物質の現存量に比例する。しかし、注目物質と反応するカウンター物質、あるいは共存する生成物質の現存量にも比例する。その比例係数の大きさは、物質の活性化エネルギー、あるいは物質のイオンの価数、イオン径、イオン拡散係数、などに左右され、物質毎に異なったものになる。また、温度にも大きく左右される。

つまり、物質の液相における分解・生成あるいは溶解・析出の速度は、pH、温度、水の圧力、さらに注目物質の現存量、共存物質の種類と量によって影響される。加えて、土中水の移動フラックスの大きさが、関係する物質の供給に関わるとともに固相や気相との接触時間を左右するので、反応速度に大きな影響を与えている。

5. おわりに、

溶解物質の移動予測のシナリオは、以上の様な事項それぞれについて仮説なり、実験的關係なり、経験的な規則なりに基づいて明らかにした上で、液相中の移動、気相中の移動、そして固相中の変化を数学モデルで表現し、注目した物質の保存則をたてることで完成する。つまり、移動式系は、水の移動式、液相中の物質の移動式それに気相中の物質の移動式の都合3つの移動式に、固相成分の保存式を加えた4個の式の連立系になる。このシナリオの結末は、このように描かれた諸式の連立解を求めることで飾られることになろう。これが移動予測の数理モデル解析と言われるもの姿である。言うまでもなく、このシナリオの結末の章では、土中水の移動予測があらかじめ正しく行われていることが前提となっている。

このシナリオの信憑性、すなわち数理モデル解析結果の信憑性であるが、液相における物質移動に関しては、移動則の中で液相に溶解している物質の濃度勾配に掛け合わされる分散係数の慎重な決定がその信憑性を左右する。また、保存則では、固相から液相に加えられる物質の正負の輸送あるいは気相から液相に加えられる物質の正負の輸送を表現する諸係数の慎重な決定、それに液相中で発生する物質変化を表現する係数の慎重な決定などが予測結果の信憑性を左右する。気相における移動では、移動則では分圧勾配に掛けられる見かけ拡散係数のうちの通気間隙率の慎重な決定が信憑性を高める鍵である。その保存則では、液相からの正負の輸送を表す係数および気相中で発生する物質変化を表す係数の慎重な決定が鍵を握る。また、固相中の変化では、液相への物質の正負の輸送を表す係数の決定、および固相中で発生する物質変化を表す係数の決定が鍵になろう。

数理モデル解析結果の信憑性は、もう一つ、境界条件によって決定される。土壌中の物質移動は土壌の内部だけで外界から孤立して発生することは殆ど無く、土壌外部から物質が表面に投与されて初めて発生するものである。土壌内部で溶け出した物質、内部で発生したガスがあっても、それは土壌表面を通して外部に出ていく。つまり、土壌の物質移動の世界は、大気—植物—土壌—地下水—河川—海の連結体の一部であり、大気や植物それに地下水は、土壌中の物質の吸収や注入にあたって土壌に何らかの作用力を働かせるものと考えておいてよい。人為的な物質投与もこの上に乗って大きな作用を与えていよう。こうした作用力を正しく評価して境界条件として設定しているかどうか、これが信憑性の高いシナリオであるかどうかを判断するもう一つの重要な鍵である。

さらに、もう一つ、信憑性を高めるのに初期の状態の正しい設定が必要である。自然現象は、常に変動している。将来の推測を始めるために現在の状況が実測されなければならない。

参考文献

- 1) 中野政詩 土の物質移動学 東京大学出版会 1991
- 2) 土壌物理性測定法委員会編 土壌物理性測定法 養賢堂 1972
- 3) LYNCH 土のバイオテクノロジー 博友社 1985
- 4) 大滝仁志他 溶液反応の化学 学会出版センター 1989
- 5) CAMPBELL パソコンで学ぶ土の物理学 鹿島出版会 1987
- 6) 藤縄克之 汚染される地下水 共立出版 1990
- 7) 日本土壌肥科学会編 移動現象 博友社 1987
- 8) 日本土壌肥科学会編 土壌の吸着現象 基礎と応用 博友社 1981

(受稿年月日1993年4月12日)

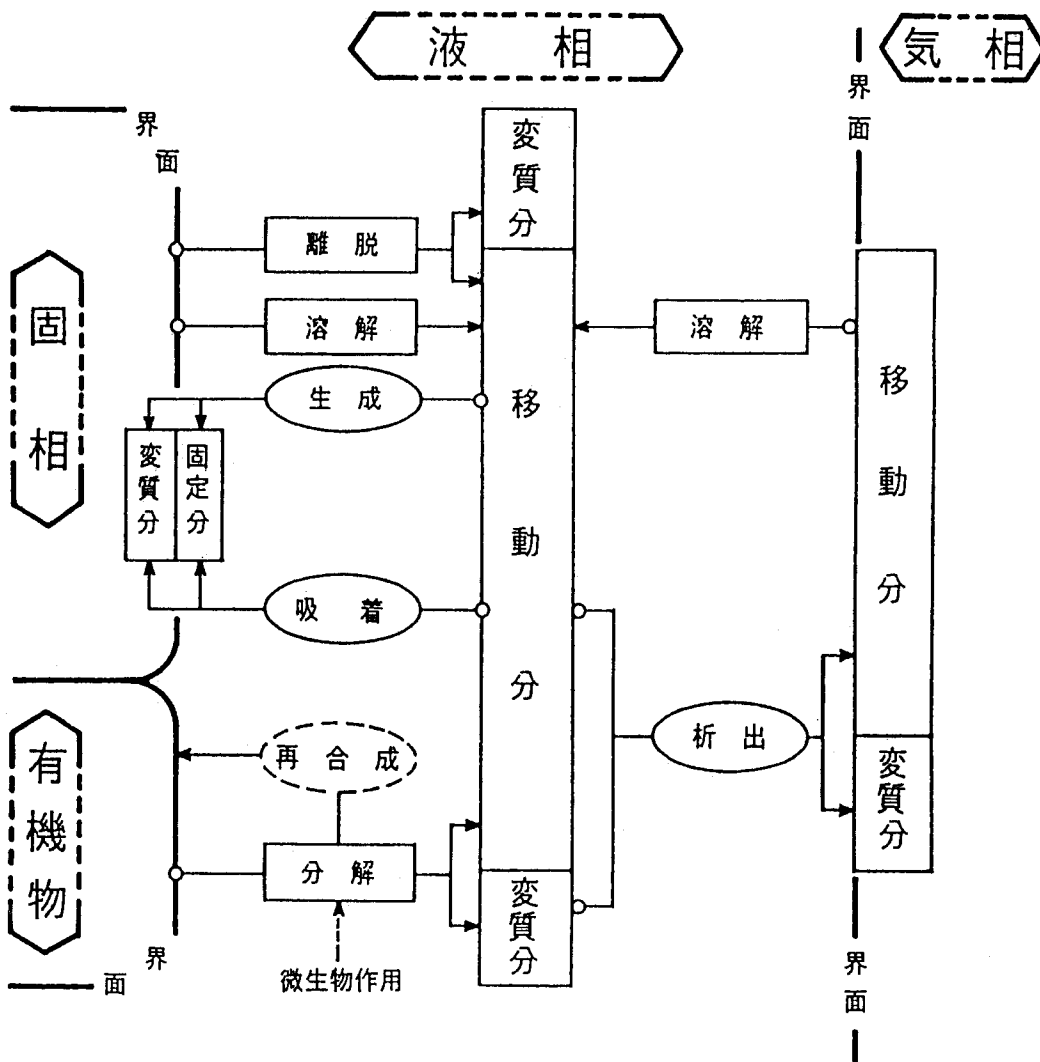


Fig.1 土壤中の溶解物質の交換ルート図

□印は液相に入るもの、 ○印は液相から出るもの