

# 幌延地下水を用いたベントナイト—地下水反応試験

—バッチ試験の結果とモデル化—

Experiments of Bentonite-Water Interactions using Groundwater Sampled  
from Horonobe Area

-Results of Batch-type Experiment and Geochemical Modeling-

磯貝 武司 筒本 広

Takeshi ISOGAI and Hiroshi SASAMOTO

地層処分研究開発部門

地層処分基盤研究開発ユニット

Geological Isolation Research Unit

Geological Isolation Research and Development Directorate

本レポートは日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。  
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。  
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)  
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課  
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4  
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency  
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to  
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,  
Japan Atomic Energy Agency  
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan  
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

幌延地下水を用いたベントナイト－地下水反応試験  
－バッチ試験の結果とモデル化－

日本原子力研究開発機構 地層処分研究開発部門  
地層処分基盤研究開発ユニット

磯貝 武司\*、笛本 広<sup>+</sup>

(2009年12月15日受理)

実際の地質環境を対象とした間隙水化学モデルの適用性検討の一環として、幌延における深地層の研究施設設計画で得られた地下水を用いたベントナイト－水反応試験を行い、データを取得した。また、第2次取りまとめで用いられた化学平衡論に基づく間隙水化学モデルによる解析結果との比較を行い、モデルの適用性について考察した。試験では、HDB-10孔の深度500～550[m]から採水された地下水を用い、固液(ベントナイト／水)比を変えたバッチ系でのベントナイト－水反応試験を行った。ベントナイトとしては、クニピアFとクニゲルV1を用いた。以下に結果をまとめる。

- ・試験の結果、間隙水pHと固液比の関係は、固液比が大きくなると(低固液比側に比べて)pHが大きくなる傾向を示した。
- ・一方、間隙水化学モデルによる解析結果では、試験結果とは逆に、固液比が大きくなると(低固液比側に比べて)pHが低くなる傾向を示し、解析により試験結果を適切に再現できなかった。
- ・溶液中の成分に関しては、Na、K、Clについては解析により試験結果をほぼ再現できており、Mg、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>についても固液比の変化に伴うこれらの成分の変化の傾向を解析によりほぼ再現できた。一方、Caについては解析結果と試験結果での整合性は良くなく、解析により試験結果を適切に再現できなかった。なお、溶液組成とも関連する(スメクタイトの層間に含まれる)交換性陽イオン量についても、溶液組成と類似した傾向が認められた。
- ・試験結果と解析結果の差異が生じた要因について、随伴鉱物の溶解や可溶性塩の沈殿による影響、地下水中的共存イオンによる影響(たとえば、イオン交換性のNH<sub>4</sub><sup>+</sup>など)、溶液からのCO<sub>2</sub>(g)の脱ガスによる影響などを想定し、それらによる影響について考察した。

また、今回の試験／解析結果を踏まえ、幌延の地下水のような天然の地下水を用いて間隙水化学モデルの適用性を検討するにあたり、今後検討すべき課題についても抽出した。

核燃料サイクル工学研究所(駐在)：〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33

\* 檢査開発株式会社

+ 核燃料サイクル工学研究所 環境技術管理部 処分技術課(兼務)

Experiments of Bentonite-Water Interactions using Groundwater Sampled from Horonobe Area  
— Results of Batch-type Experiment and Geochemical Modeling —

Takeshi ISOGAI\* and Hiroshi SASAMOTO<sup>†</sup>

Geological Isolation Research Unit  
Geological Isolation Research and Development Directorate  
Japan Atomic Energy Agency  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received December 15, 2009)

As a matter of consideration for applicability of porewater model to the actual geological environment, experiments of bentonite-water interactions using groundwater sampled from Horonobe underground laboratory were conducted. In order to test the applicability of model, comparison between the data obtained by experiments and modeling results by porewater model based on chemical equilibrium was performed. For the experiment, batch-type experiments with different solid-liquid (bentonite-water) ratio were conducted using the groundwater sampled from the depth of GL -500 to -550 m in the borehole HDB-10. Regarding to bentonite samples, Kunipia F and Kunigel V1 were used in the experiments. Results are summarized below.

- As the results of experiment, the measured pH of solution contacted with bentonite increased (comparing with the pH of solution for lower solid-liquid ratio) as a function of the solid-liquid ratio.
- On the contrary, modeling results suggested that the calculated pH of solution contacted with bentonite decreased as a function of the solid-liquid ratio, thus the modeling results could not follow the measured pH appropriately.
- With regard to the components of solution contacted with bentonite, the modeling results were approximately consistent with the experimental results for Na, K, Cl concentration. Additionally, the observed variation of Mg, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> and HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> in the solution with solid-liquid ratio was also reproduced by porewater model calculation. On the other hand, for Ca concentration, the modeling results were inconsistent with the experimental results. In this connection, the amount of exchangeable cations (in the interlayer of smectite) related to the solution chemistry showed the similar behavior to the solution composition.
- To consider the possible reasons for difference between experimental and modeling results, several case studies were performed to evaluate the effect on porewater chemistry in bentonite. The case studies considered the effect by dissolution of accessory minerals and precipitation of soluble impurities, the effect by coexistent ions (*e.g.*, exchangeable ion such as NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) and the effect by degassing of CO<sub>2</sub>(g) from the porewater solution.

Furthermore, future subjects to evaluate the applicability of porewater model more confidently were summarized based on the results of present consideration.

Keywords: Bentonite, Porewater Model, Batch-type Experiment, Horonobe, Groundwater

---

\* Inspection Development Company Ltd.

<sup>†</sup> Waste Treatment Technology Section, Waste Management Department, Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories (Additional post)

## 目 次

1 はじめに.....	1
2 峴延の地下水を用いたベントナイト-水反応試験.....	1
2.1 試験に用いた地下水.....	1
2.2 試験・分析方法.....	2
2.2.1 試験条件.....	2
2.2.2 試験方法.....	2
2.2.3 分析方法.....	5
2.3 試験・分析結果.....	5
3 間隙水化学モデルによるモデル化.....	13
3.1 間隙水化学モデルの概念.....	13
3.2 モデル計算で用いた解析パラメータ.....	14
3.3 モデルによる解析結果と試験結果の比較.....	15
3.4 モデル化にあたり抽出された課題.....	21
4 まとめ.....	23
謝 辞.....	24
参考文献.....	24
付録1 試験後溶液の分析結果に基づく鉱物の飽和指数計算結果.....	25
付録2 地下水に含まれる $\text{NH}_4^+$ イオンが層間の陽イオン量および間隙水中の濃度に及ぼす影響.....	26

## Contents

1	Introduction	.....	1
2	Experiments of bentonite-water interactions using Horonobe groundwater	.....	1
2.1	Groundwater used for the experiments	.....	1
2.2	Experiment / Analysis method	.....	2
2.2.1	Experimental condition	.....	2
2.2.2	Experimental method	.....	2
2.2.3	Analytical method	.....	5
2.3	Experiment / Analysis result	.....	5
3	Modeling by using porewater chemistry model	.....	13
3.1	Conceptual model of porewater chemistry	.....	13
3.2	Parameter used for porewater model calculations	.....	14
3.3	Comparison of experimental results and model calculations	.....	15
3.4	Subject identified in the present model	.....	21
4	Summary	.....	23
	Acknowledgement	.....	24
	References	.....	24
	Appendix 1	.....	25
	Appendix 2	.....	26

## 図目次

Fig. 2.1 ベントナイト一水反応試験の試験手順	3
Fig. 2.2-1 固液比に対するクニピアFの間隙水pH変化	6
Fig. 2.2-2 固液比に対するクニゲルV1の間隙水pH変化	6
Fig. 2.3-1 固液比に対する交換性 $\text{Na}^+$ イオンの変化(クニピアF)	7
Fig. 2.3-2 固液比に対する交換性 $\text{K}^+$ イオンの変化(クニピアF)	7
Fig. 2.3-3 固液比に対する交換性 $\text{Mg}^{2+}$ イオンの変化(クニピアF)	7
Fig. 2.3-4 固液比に対する交換性 $\text{Ca}^{2+}$ イオンの変化(クニピアF)	7
Fig. 2.3-5 固液比に対する交換性陽イオン容量の変化(クニピアF)	7
Fig. 2.4-1 固液比に対する交換性 $\text{Na}^+$ イオンの変化(クニゲルV1)	8
Fig. 2.4-2 固液比に対する交換性 $\text{K}^+$ イオンの変化(クニゲルV1)	8
Fig. 2.4-3 固液比に対する交換性 $\text{Mg}^{2+}$ イオンの変化(クニゲルV1)	8
Fig. 2.4-4 固液比に対する交換性 $\text{Ca}^{2+}$ イオンの変化(クニゲルV1)	8
Fig. 2.4-5 固液比に対する交換性陽イオン容量の変化(クニゲルV1)	8
Fig. 2.5-1 固液比に対する間隙水中の $\text{Na}^+$ 濃度の変化(クニピアF)	9
Fig. 2.5-2 固液比に対する間隙水中の $\text{K}^+$ 濃度の変化(クニピアF)	9
Fig. 2.5-3 固液比に対する間隙水中の $\text{Mg}^{2+}$ 濃度の変化(クニピアF)	10
Fig. 2.5-4 固液比に対する間隙水中の $\text{Ca}^{2+}$ 濃度の変化(クニピアF)	10
Fig. 2.5-5 固液比に対する間隙水中の $\text{Cl}^-$ 濃度の変化(クニピアF)	10
Fig. 2.5-6 固液比に対する間隙水中の $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度の変化(クニピアF)	10
Fig. 2.5-7 固液比に対する間隙水中の $\text{HCO}_3^-$ 濃度の変化(クニピアF)	10
Fig. 2.6-1 固液比に対する間隙水中の $\text{Na}^+$ 濃度の変化(クニゲルV1)	11
Fig. 2.6-2 固液比に対する間隙水中の $\text{K}^+$ 濃度の変化(クニゲルV1)	11
Fig. 2.6-3 固液比に対する間隙水中の $\text{Mg}^{2+}$ 濃度の変化(クニゲルV1)	11
Fig. 2.6-4 固液比に対する間隙水中の $\text{Ca}^{2+}$ 濃度の変化(クニゲルV1)	11
Fig. 2.6-5 固液比に対する間隙水中の $\text{Cl}^-$ 濃度の変化(クニゲルV1)	12
Fig. 2.6-6 固液比に対する間隙水中の $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度の変化(クニゲルV1)	12
Fig. 2.6-7 固液比に対する間隙水中の $\text{HCO}_3^-$ 濃度の変化(クニゲルV1)	12
Fig. 3.1 間隙水化学モデルの概念図	13
Fig. 3.2-1 固液比に対する間隙水pHの変化(解析結果と試験結果の比較:クニピアF)	15
Fig. 3.2-2 固液比に対する間隙水pHの変化(解析結果と試験結果の比較:クニゲルV1)	15
Fig. 3.3-1 固液比に対する交換性 $\text{Na}^+$ イオン量の変化(解析結果と試験結果の比較:クニピアF)	16
Fig. 3.3-2 固液比に対する交換性 $\text{K}^+$ イオン量の変化(解析結果と試験結果の比較:クニピアF)	16
Fig. 3.3-3 固液比に対する交換性 $\text{Mg}^{2+}$ イオン量の変化(解析結果と試験結果の比較:クニピアF)	16
Fig. 3.3-4 固液比に対する交換性 $\text{Ca}^{2+}$ イオン量の変化(解析結果と試験結果の比較:クニピアF)	16
Fig. 3.4-1 固液比に対する交換性 $\text{Na}^+$ イオン量の変化(解析結果と試験結果の比較:クニゲルV1)	17
Fig. 3.4-2 固液比に対する交換性 $\text{K}^+$ イオン量の変化(解析結果と試験結果の比較:クニゲルV1)	17
Fig. 3.4-3 固液比に対する交換性 $\text{Mg}^{2+}$ イオン量の変化(解析結果と試験結果の比較:クニゲルV1)	17
Fig. 3.4-4 固液比に対する交換性 $\text{Ca}^{2+}$ イオン量の変化(解析結果と試験結果の比較:クニゲルV1)	17
Fig. 3.5-1 固液比に対する間隙水中の $\text{Na}^+$ 濃度の変化(解析結果と試験結果の比較:クニピアF)	18
Fig. 3.5-2 固液比に対する間隙水中の $\text{K}^+$ 濃度の変化(解析結果と試験結果の比較:クニピアF)	18

Fig. 3.5-3 固液比に対する間隙水中の Mg 濃度の変化(解析結果と試験結果の比較：クニピア F) .....	19
Fig. 3.5-4 固液比に対する間隙水中の Ca 濃度の変化(解析結果と試験結果の比較：クニピア F) .....	19
Fig. 3.5-5 固液比に対する間隙水中の Cl 濃度の変化(解析結果と試験結果の比較：クニピア F) .....	19
Fig. 3.5-6 固液比に対する間隙水中の $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度の変化(解析結果と試験結果の比較：クニピア F) .....	19
Fig. 3.5-7 固液比に対する間隙水中の $\text{HCO}_3^-$ 濃度の変化(解析結果と試験結果の比較：クニピア F) .....	19
Fig. 3.6-1 固液比に対する間隙水中の Na 濃度の変化(解析結果と試験結果の比較：クニゲル V 1) .....	20
Fig. 3.6-2 固液比に対する間隙水中の K 濃度の変化(解析結果と試験結果の比較：クニゲル V 1) .....	20
Fig. 3.6-3 固液比に対する間隙水中の Mg 濃度の変化(解析結果と試験結果の比較：クニゲル V 1) .....	20
Fig. 3.6-4 固液比に対する間隙水中の Ca 濃度の変化(解析結果と試験結果の比較：クニゲル V 1) .....	20
Fig. 3.6-5 固液比に対する間隙水中の Cl 濃度の変化(解析結果と試験結果の比較：クニゲル V 1) .....	21
Fig. 3.6-6 固液比に対する間隙水中の $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度の変化(解析結果と試験結果の比較：クニゲル V 1) .....	21
Fig. 3.6-7 固液比に対する間隙水中の $\text{HCO}_3^-$ 濃度の変化(解析結果と試験結果の比較：クニゲル V 1) .....	21

## 表目次

Table 1 HDB-10 孔の深度 500～550[m]区間から採水された地下水の測定・分析値 .....	1
Table 2.1 クニピア F を用いた試験における間隙水組成(短期試験における主要成分の分析結果) .....	9
Table 2.2 クニピア V 1 を用いた試験における間隙水組成(短期試験における主要成分の分析結果) .....	11
Table 3 モデル計算を行う上で必要となる情報および解析パラメータ .....	14
Table 4.1 間隙水化学モデルによる解析結果(クニピア F の場合) .....	18
Table 4.2 間隙水化学モデルによる解析結果(クニゲル V 1 の場合) .....	20

## 1 はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分において、人工バリア材の一つとして用いられる緩衝材には、化学的な側面では、例えば廃棄体から溶出した放射性核種を收着することで移行を遅延させる機能などが期待されている。このような緩衝材中の核種の移行挙動への影響に加えて、オーバーパックの腐食挙動を評価するうえでも緩衝材中の間隙水化学は重要な要因の一つである。

地層処分研究開発の第2次取りまとめにおいて、安全評価で用いる緩衝材間隙水化学は、緩衝材(ベントナイト)と地下水との相互作用における主要な反応であるスメクタイトの表面反応(イオン交換反応、結晶端における酸・塩基反応)、随伴鉱物の溶解/沈殿反応、および炭素鋼オーバーパック腐生成物との化学平衡を仮定したモデルに基づき設定された。このようなモデルの妥当性は、蒸留水や塩濃度を変えた溶液(Na-Cl溶液)を用い、ベントナイトと反応溶液の固液比を変えた懸濁系での試験(バッチ試験)や圧縮ベントナイトを用いた圧密系での試験による室内試験結果との比較に基づき示された。

一方、今後の課題としては、実際の地質環境を対象とした間隙水化学モデルの適用性検討が挙げられており、経済産業省資源エネルギー庁が取りまとめた「高レベル放射性廃棄物の地層処分基盤研究開発に関する全体計画」の中でも当面の課題の一つとして述べられている<sup>1)</sup>。実際の地下水を用いた間隙水化学モデルの適用性検討に関しては、諸外国においては先行的に行われている(スペイン<sup>2)</sup>、スイス<sup>3)</sup>などの、わが国における報告事例は少ない。

このような背景を踏まえ、今回、幌延における深地層の研究施設設計で得られた地下水を用いたベントナイト一水反応試験を行い、データを取得するとともに第2次取りまとめで用いられた化学平衡論に基づく間隙水化学モデルによる解析結果<sup>4)</sup>との比較を行い、モデルの適用性について考察した。また、今後の課題についても整理した。

## 2 幌延の地下水を用いたベントナイト一水反応試験

### 2.1 試験に用いた地下水

試験に用いた地下水は、幌延における深地層の研究施設設計の一環で掘削された「HDB-10孔<sup>\*</sup>」から採水されたものである。地下水は、平成18年9月11日にHDB-10孔の深度500~550[m](裸孔部分:稚内層に相当)から採水された。採水にあたっては、ポンプを用いて300~320[ml/min]の流速で地表に汲み上げた揚水を大気開放条件下において直接ポリ容器に封入し、密閉した。採水時には、小径のビニルホースから流出する地下水をポリ容器に注いで採水したが、その際、地下水中に溶存していたガスの一部が遊離する現象が認められた。その後、地下水を郵送し、地層処分基盤研究施設の試験棟にある雰囲気制御グローブボックス( $O_2 \leq 1[\text{ppm}]$ )内に保管した。なお、試験に使用する際は、孔径0.45[μm]のフィルターにてろ過を行った。

Table 1に、HDB-10孔の深度500~550[m]区間から採水された地下水の測定・分析値を示す。また、Table 1には測定・分析方法についても併記した。本地下水はNa、Cl濃度が高く、海水系の地下水であることが示唆される。

Table 1 HDB-10孔の深度500~550[m]区間から採水された地下水の測定・分析値

		測定方法	備考
pH	7.59	pHガラス電極	試験開始時:現地における採水時のpHは6.7
Eh	-30[mV]	ORP電極	pe換算値:-0.5070
元素/イオン	濃度[mol/l]	分析装置	備考
Na	2.402e-01	原子吸光	
K	4.271e-03	原子吸光	
Mg	4.525e-03	ICP-AES	
Ca	6.737e-04	ICP-AES	容器壁面への収着等により減少したと推定 (別途行った分析により、4.5e-03[mol/l]程度と求められたため)
Al	3.706e-06	ICP-AES	
Si	9.861e-04	ICP-AES	
Cl <sup>-</sup>	2.164e-01	IC	
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	2.655e-02	IC	
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	2.665e-02	燃焼化熱像分析法	
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	1.219e-02	吸光光度法	國丸らによる報告値 <sup>5)</sup> (445.85~469.89[m]区間)

\* HDB-10孔は、平成16年9月22日から平成17年1月6日にかけて掘削された。

## 2.2 試験・分析方法

### 2.2.1 試験条件

本試験は、以下に示す固相および溶液(蒸留水または地下水)を用い、下記の固液比(ベントナイト／水比 [g/l])および試験期間で行った。なお、本報告書では、2.1項で述べたHDB-10孔の深度500～550[m]区間から採水された地下水を、以下便宜的に「幌延地下水(HDB-10)」と称する。

#### 【クニピアF】

- 試験溶液1；幌延地下水(HDB-10)
- 固液比；10、20、50、100、200、500、1,000[g/l]
- 試験期間；短期(2～3[週間])、中期(5[週間])、長期(26[週間])
- 試験溶液2；蒸留水(脱酸素水<sup>#</sup>)
- 固液比；10、100、1,000[g/l]
- 試験期間；短期(2[週間])、中期(5[週間])、長期(26[週間])

#### 【クニゲルV1】

- 試験溶液1；幌延地下水(HDB-10)
- 固液比；10、20、50、100、200、500、1,000[g/l]
- 試験期間；短期(2～3[週間])、中期(5[週間])、長期(26[週間])
- 試験溶液2；蒸留水(脱酸素水)
- 固液比；10、100、1,000[g/l]
- 試験期間；短期(2[週間])、中期(5[週間])、長期(26[週間])

#### 【クニピアF・クニゲルV1共通の条件】

- 試験環境；低酸素雰囲気制御グローブボックス内( $O_2 \leq 1[\text{ppm}]$ )
- 試験温度；常温

試験期間中は上記条件下に静置したが、一時的な雰囲気制御グローブボックスの不調のため、酸素濃度が数百～[ppm]にまで上昇することがあった。ただし、酸素濃度上昇時は試料に封がされており、試験にはほとんど影響がなかったと考えられる。

### 2.2.2 試験方法

本試験では、小田・柴田<sup>①</sup>で行われた方法に準拠して実施した。Fig. 2.1に試験手順のフローを示す。また、以下に手順の概要を記す。

ベントナイト(クニピアF、クニゲルV1)を恒温槽にて一晩以上乾燥させ、試験に用いる分量ごとに計量した試料を、幌延で採水した地下水とともに、低酸素雰囲気制御グローブボックス内( $O_2 \leq 1[\text{ppm}]$ )へ搬入した。ベントナイトは低酸素雰囲気下に一晩以上曝し、付着している酸素等を放出させた。

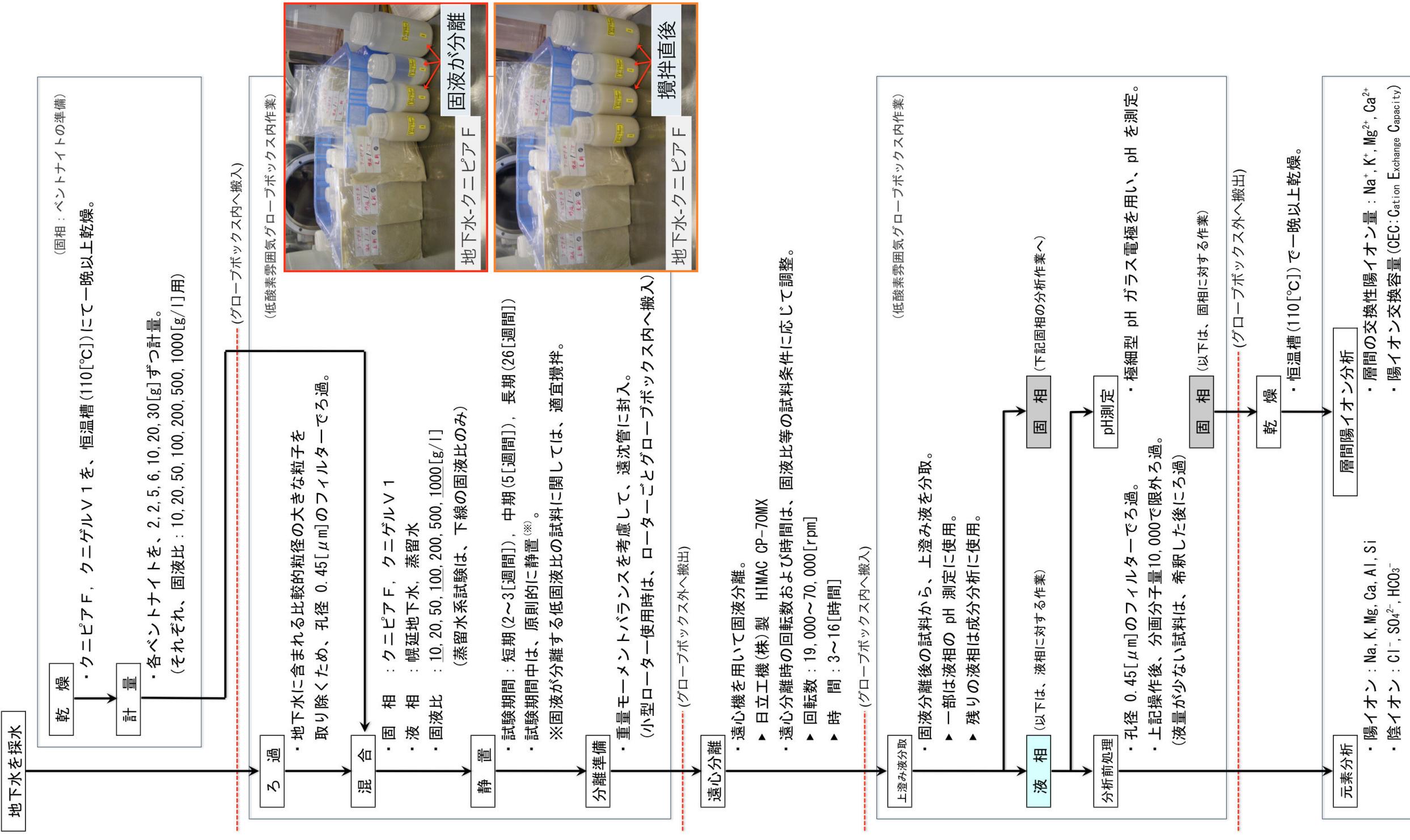
幌延の地下水を用いた試験の場合、採水した地下水に含まれる比較的大きな粒子等を取り除くため、孔径0.45[μm]のフィルターを用いてろ過した後、2.2.1項およびFig. 2.1に記載した固液比にてベントナイトと混合した。また、蒸留水を用いた試験の場合、pH調整等の操作を行わずに、そのまま各ベントナイトと混合した。なお、試料の攪拌に当たっては、固液比に応じて以下の2通りの方法で行った。

- 固液比が高い場合(500[g/l]以上)：密封可能なビニル袋に入れ、全体に水が馴染むように指で捏ねた。
- 固液比が低い場合(200[g/l]以下)：ポリ瓶に入れて密栓し、良く攪拌した。

試験期間中の試料は原則的に静置し、適宜試料の攪拌等を行った。試験後の試料は、2.2.3項の手順に従い、固液分離および分析を行った。

<sup>#</sup> 雰囲気制御グローブボックス内( $O_2 \leq 1[\text{ppm}]$ )において、エアーポンプを用いた気泡状の不活性ガスでバブリングを行い、溶け込んでいる酸素を放出させた蒸留水。

【作業工程フロー】



### 2.2.3 分析方法

試験終了後の試料は、遠心分離機(日立工機(株)製:HIMAC MX-70 / 最高回転数:70,000[rpm])を用いて固液分離を行った。なお、遠心分離機を用いる際に試料は一時的に大気下を移動されることになるが、試料は遠沈管に封入されており、また、遠心分離中はローター周囲の真空引きが行われているため、大気との接触による試料への影響はほとんど認められないことが確認されている<sup>⑥</sup>ため、今回も同様な手順で行った。

#### (1) 液相分析

遠心分離後に上澄み液の一部を分取して間隙水\*pHの測定を行い、残りの上澄み液を用いて組成分析を行った(分析に供するにあたっては、孔径0.45[μm]のろ過および分画分子量10,000の限外ろ過を実施)。

また、試験前の溶液組成を把握するため、試験に用いる前の地下水も同様にろ過後、分析した。

##### [分析成分]

陽イオン: Na、K、Mg、Ca、Al、Si

陰イオン: Cl<sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>

組成分析の結果については、2.3項のFig. 2.2-1、2.2-2およびTable 2.1、2.2に示す。

#### (2) 固相分析

上澄み液を分取して残った固相部分は、恒温槽(110[°C]:大気中)で乾燥させた後、層間に含まれる交換性陽イオン(Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>)の量および陽イオン交換容量:CEC(Cation Exchange Capacity)の分析を行った。分析結果については、2.3項のFig. 2.2-1、2.2-2およびFig. 2.3-1~2.3-5に示す。

## 2.3 試験・分析結果

2.2項に示した試験・分析方法により、ベントナイトー地下水反応後の溶液(ベントナイト間隙水)のpH、溶液組成およびベントナイトの層間陽イオン量のデータを取得した。これらのデータを固液比との関係で各々整理し、pH、溶液組成、層間陽イオン量と固液比との相関関係について調べた。なお、相関関係を調べる際には、これまでに実施された試験結果も参照しつつ行った。以下に、それぞれの結果についてまとめる。

#### (1) 間隙水pHと固液比の関係

下図における本試験結果は短期試験の値をプロットした。中期・長期の場合の固液比に対する増減傾向も類似していた。また、短期・中期・長期のいずれの場合も間隙水pHはほぼ同様な値を示したことから、今回行った短期試験(2週間程度)の試験期間で、試験系はほぼ平衡に達していることが推察された。

##### ① 蒸留水を用いた試験

間隙水pHが低固液比( $10[\text{g/l}] \approx 0.01[\text{g/cm}^3]$ )側で高く、高固液比( $1,000[\text{g/l}] \approx 0.73[\text{g/cm}^3]$ )側で低くなる傾向や測定された値について、小田・柴田<sup>⑥</sup>の試験結果と比較しても良い一致を示しており、試験・分析手法等に問題のないことが判る(Fig. 2.2-1、2.2-2の●と■)。また、一時的に雰囲気制御グローブボックス内の酸素濃度が上昇した影響についても、小田・柴田<sup>⑥</sup>において実施された同一条件の試験と傾向や値がほぼ一致していることから、ほぼ無視できるものと推察できる。

##### ② 幌延の地下水を用いた試験

幌延の地下水を用いた場合、低固液比側から高固液比側に向かうにつれて、間隙水pHが上昇する傾向が認められた。ここで、参考までに、小田・柴田<sup>⑥</sup>が実施した0.5M-NaCl溶液を用いた場合の間隙水pHの固液比依存性に関する試験データ(試験期間20日程度で試験系はほぼ平衡に達しており、本試験結果との比較に適する)を比較してみる。高固液比側では、本試験結果と小田・柴田<sup>⑥</sup>の間隙水pHはほぼ同様な値となったが、低固液比側では差異が大きく、増減傾向が異なった(Fig. 2.2-1、2.2-2の▲と▼)。また、クニピアF、クニゲルV1とともに同様な傾向を示していることや低固液比側で差異がより大きくなることから、このような増減傾向の違いは、ベントナイトの種類(随伴鉱物や可溶性塩の違いや含有量など)によるものではなく、主に反応溶液として用いた溶液組成の違いに起因すると推察された。

\* 緩衝材の場合、通常は圧縮状態のベントナイト空隙内に存在する水(主に層間水および外部水)のことを示す。本報告は懸濁系での試験であるため、得られた反応液は圧縮状態と比較すると外部水の割合が多いと考えられる。圧縮状態(あるいは固液比)の違いにより反応液の組成や特性は異なるが、基本的には同様な要素から構成されているため、本報告では懸濁系での反応液についても便宜的に間隙水と称した。

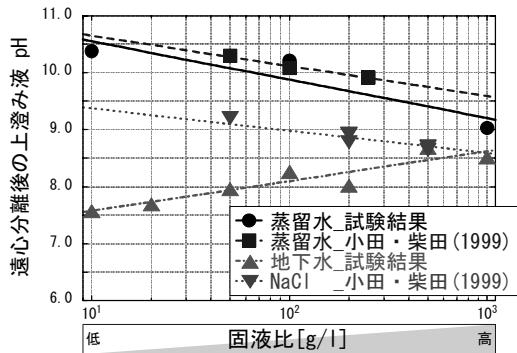


Fig. 2.2-1 固液比に対するクニピアFの間隙水pH変化

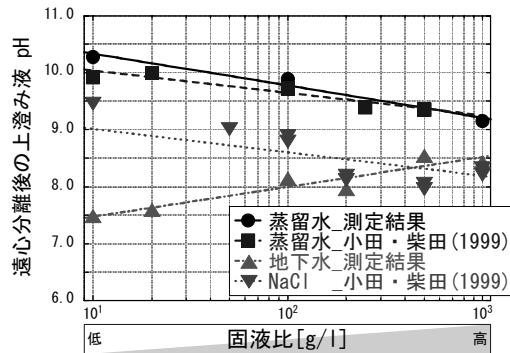


Fig. 2.2-2 固液比に対するクニゲルV 1の間隙水pH変化

## (2) 交換性陽イオン量と固液比の関係

スメクタイト層間の交換性陽イオン量について、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ の4種について測定を実施した。なお、蒸留水を用いた試験については交換性陽イオン量の分析を行っていないため、ここでは幌延の地下水を用いた試験の結果についてまとめる。

### ① クニピアFの場合

#### ・交換性 $\text{Na}^+$ イオン量に関して

固液比に依存せず概ね一定の値を示したが、試験後は、試験前試料と比較して減少した。ただし、長期試験結果については、短期・中期試験と比較してやや増加する傾向が認められた(Fig. 2.3-1)。なお、試験前試料の値については、クニミネ工業(株)より頂いた情報に基づくものである。

#### ・交換性 $\text{K}^+$ イオン量に関して

高固液比側において、試験前・後で値がほぼ一致した。また、試験後においては、固液比が高くなるに従い減少したが、値・傾向ともに、時間の経過による変化は殆ど認められなかった(Fig. 2.3-2)。

#### ・交換性 $\text{Mg}^{2+}$ イオン量に関して

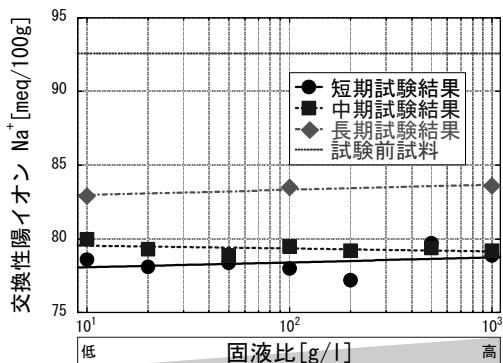
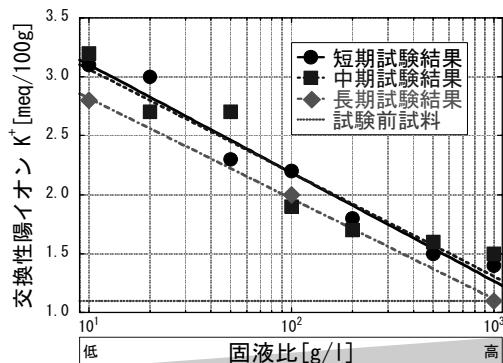
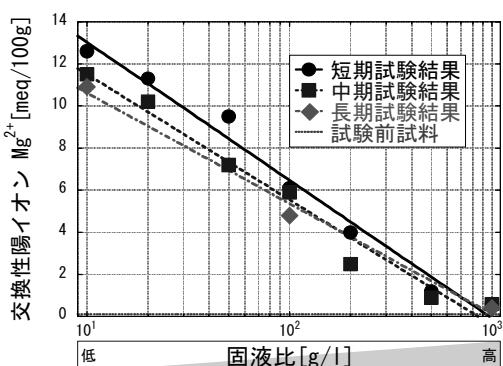
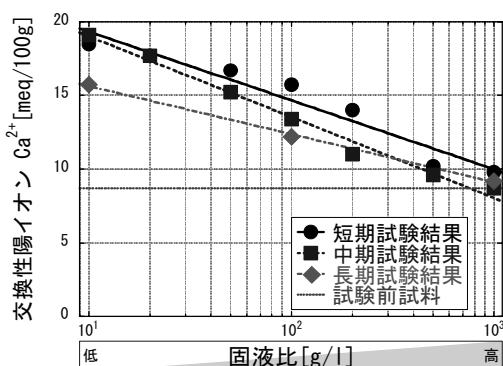
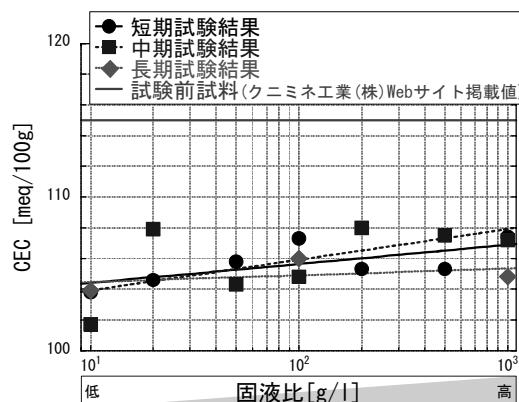
$\text{K}^+$ と同様に、高固液比側で試験前・後の値がほぼ一致した。また、試験期間の違いによる差は小さく、値・傾向が一致した(Fig. 2.3-3)。

#### ・交換性 $\text{Ca}^{2+}$ イオン量に関して

上記 $\text{K}^+$ および $\text{Mg}^{2+}$ と同様な結果となった(Fig. 2.3-4)。

#### ・交換性陽イオン容量(ECO)に関して

全体的に、メーカーのWebサイトに記載された値からは10[meq/100g]程度低い値となつたが、固液比が高くなるに従い増加する傾向が認められた。また、ばらつきは大きいものの、概ねの値や傾向は試験期間によって大きく変化しないことが判った(Fig. 2.3-5)。なお、上記4種のイオンの内、 $\text{Na}^+$ を除く3種では減少しており、単純なマスバランスでは説明できないことから、これら4種以外のイオン種が関連している可能性が考えられる。

Fig. 2.3-1 固液比に対する交換性  $\text{Na}^+$  イオンの変化(クニビ<sup>°</sup>ア F)Fig. 2.3-2 固液比に対する交換性  $\text{K}^+$  イオンの変化(クニビ<sup>°</sup>ア F)Fig. 2.3-3 固液比に対する交換性  $\text{Mg}^{2+}$  イオンの変化(クニビ<sup>°</sup>ア F)Fig. 2.3-4 固液比に対する交換性  $\text{Ca}^{2+}$  イオンの変化(クニビ<sup>°</sup>ア F)Fig. 2.3-5 固液比に対する交換性陽イオン容量の変化(クニビ<sup>°</sup>ア F)

## (2) クニゲルV 1 の場合

クニビア F を用いた場合と比較すると、値のばらつきが大きく、傾向も捉えにくい結果になった。

・交換性  $\text{Na}^+$  イオン量に関して

高固液比側では、試験前の試料とほぼ同様の値を示した。また、固液比が高くなるに従い減少する傾向が認められた (Fig. 2.4-1)。

・交換性  $\text{K}^+$  イオン量に関して

概ね  $\text{Na}^+$  と同様な傾向であり、固液比の増加に伴い層間に含まれる  $\text{K}^+$  が減少した (Fig. 2.4-2)。

- ・交換性  $Mg^{2+}$  イオン量に関する

上記のイオン ( $Na^+$ ,  $K^+$ ) と同様な傾向が認められた (Fig. 2.4-3)。

- ・交換性  $Ca^{2+}$  イオン量に関する

他のイオンとともに、固液比が高くなるに従い減少する傾向が認められた。また、中固液比付近では、試験前試料と同様な値を示した (Fig. 2.4-4)。

- ・交換性陽イオン量 (CEC) に関する

鈴木ら<sup>7)</sup>が測定した結果と比較すると 10 [meq/100g] 程度高い値となった。また、固液比が高くなるに従いやや減少する傾向が認められ、クニピア F を用いた場合の試験結果とは異なる傾向を示した (Fig. 2.4-5)。

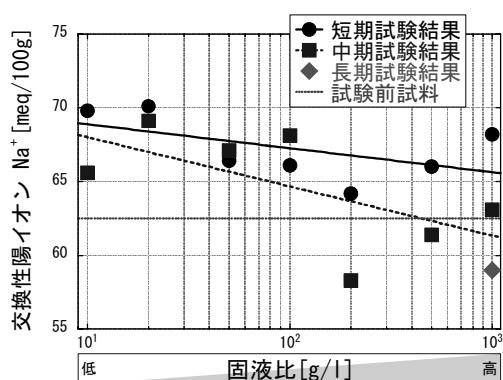


Fig. 2.4-1 固液比に対する交換性  $Na^+$  イオンの変化(クニゲル V 1)

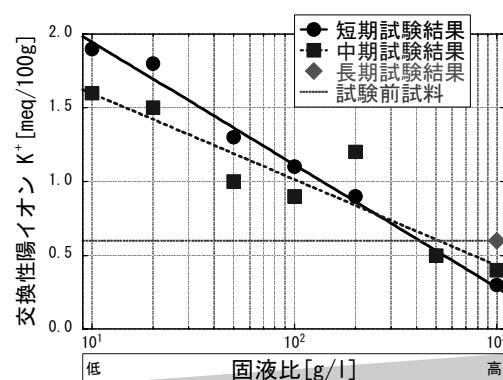


Fig. 2.4-2 固液比に対する交換性  $K^+$  イオンの変化(クニゲル V 1)

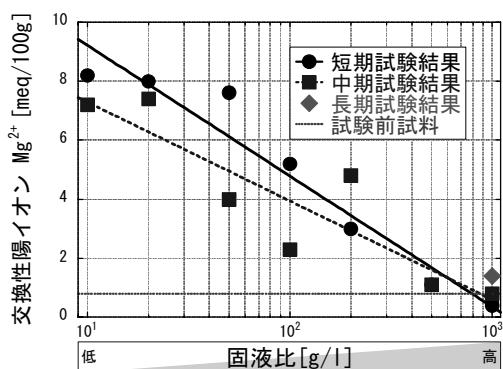


Fig. 2.4-3 固液比に対する交換性  $Mg^{2+}$  イオンの変化(クニゲル V 1)

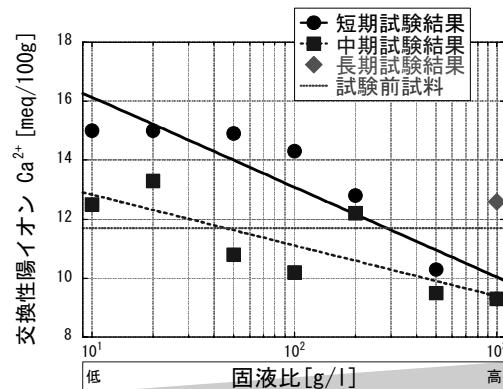


Fig. 2.4-4 固液比に対する交換性  $Ca^{2+}$  イオンの変化(クニゲル V 1)

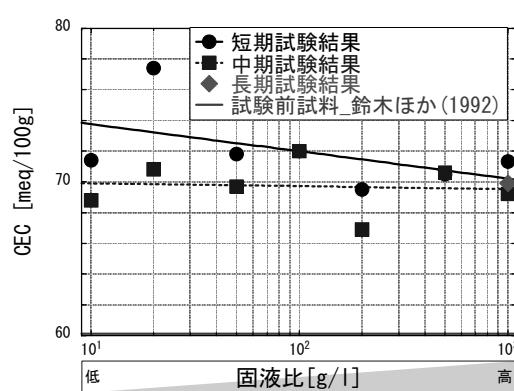


Fig. 2.4-5 固液比に対する交換性陽イオン容量の変化(クニゲル V 1)

## (3) 溶液組成と固液比の関係

主要な元素濃度の内、クニピアFに関するものをTable 2.1 およびFig. 2.5-1～2.5-6 に、クニゲルV1に関するものをTable 2.2 およびFig. 2.6-1～2.6-6 に示す。各元素濃度は、もともと地下水中に溶存していた元素の濃度を差し引くことはせず、短期試験結果をそのまま示した。本項目についても、過去に取得データのない幌延の地下水を用いた試験結果についてのみまとめる。

なおAlについては、分析の検出下限値未満であり、有意な値を得ることができなかつた。また、Siについても全体に濃度が低く、分析前に行つた液相の希釈に起因する影響(誤差)が大きいと考えられたため、本報告では、これらの元素の分析結果については掲載していない。

## ① クニピアFの場合

Table 2.1 およびFig. 2.5-1～2.5-7 に基づけば、値に多少のばらつきは存在するものの、それぞれの成分が固液比に対して一定の傾向(増加、減少、変化なし)を示すように見える。また、溶液条件が異なるため直接比較することはできないが、幌延の地下水と類似した海水系の溶液条件の値として、小田・柴田<sup>6)</sup>で0.5M-NaClを用いた試験の結果も併せてプロットし、比較を行なった(Fig. 2.5-1～2.5-6)。なお、小田・柴田<sup>6)</sup>のデータにはHCO<sub>3</sub><sup>2-</sup>の測定結果が含まれていないため、本試験結果のみを参考までにプロットした(Fig. 2.5-7)。

比較の結果、幌延の地下水および小田・柴田<sup>6)</sup>による試験溶液にほとんど含まれていないSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>については、比較的良い一致が認められたものの、その他の成分については固液比に対する変化の傾向や値は一致しなかつた。NaとClに関しては、初期溶液の濃度が異なるため、その差異がそのまま結果に表れていると考えられるが、固液比に対する変化の傾向は類似していた。一方、KとMgに関しては、固液比に対する変化の傾向は異なつた。

Table 2.1 クニピアFを用いた試験における間隙水組成(短期試験における主要成分の分析結果)

固液比[g/l]	Na[mol/l]	K[mol/l]	Mg[mol/l]	Ca[mol/l]	Cl <sup>-</sup> [mol/l]	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> [mol/l]	HCO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> [mol/l]
10	2.462e-01	4.040e-03	3.920e-03	6.140e-04	2.190e-01	4.010e-04	2.510e-02
20	2.500e-01	3.710e-03	3.530e-03	6.840e-04	2.200e-01	8.050e-04	2.640e-02
50	2.675e-01	3.120e-03	2.790e-03	4.370e-04	2.240e-01	2.090e-03	2.180e-02
100	2.808e-01	2.810e-03	2.120e-03	4.090e-04	2.300e-01	3.970e-03	2.160e-02
200	3.139e-01	2.380e-03	1.690e-03	3.920e-04	2.390e-01	8.290e-03	2.490e-02
500	3.715e-01	1.270e-03	1.090e-03	5.190e-04	2.550e-01	1.970e-02	1.390e-02
1,000	3.762e-01	1.790e-03	1.210e-03	1.130e-03	2.230e-01	4.090e-02	9.370e-03

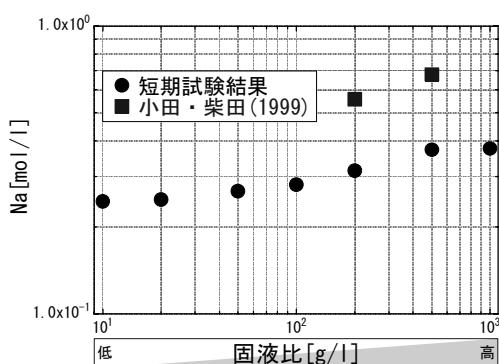


Fig. 2.5-1 固液比に対する間隙水中のNa濃度の変化(クニピアF)

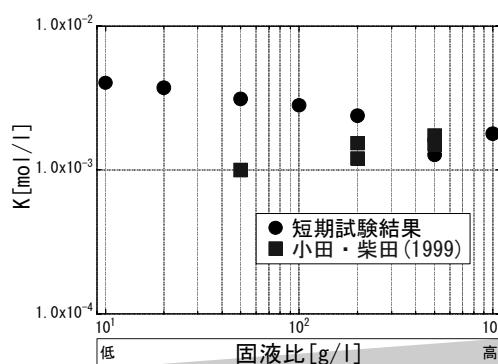


Fig. 2.5-2 固液比に対する間隙水中のK濃度の変化(クニピアF)

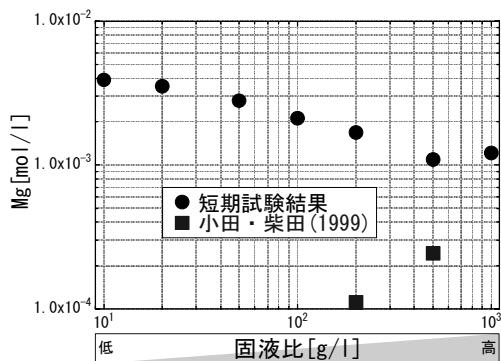


Fig. 2.5-3 固液比に対する間隙水中の  $Mg$  濃度の変化  
(クニピア F)

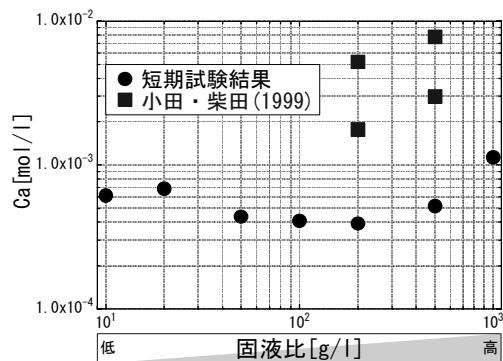


Fig. 2.5-4 固液比に対する間隙水中の  $Ca$  濃度の変化  
(クニピア F)

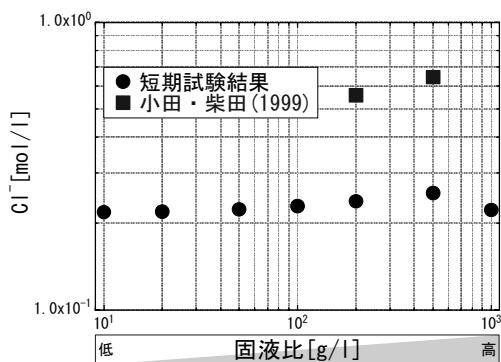


Fig. 2.5-5 固液比に対する間隙水中の  $Cl^-$  濃度の変化  
(クニピア F)

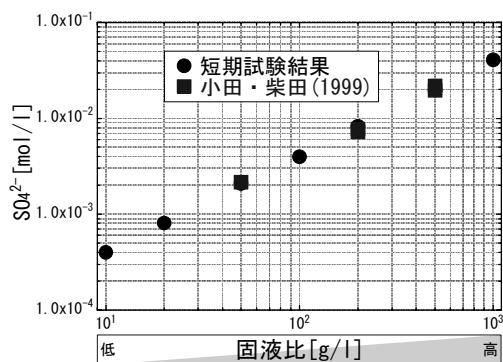


Fig. 2.5-6 固液比に対する間隙水中の  $SO_4^{2-}$  濃度の変化  
(クニピア F)

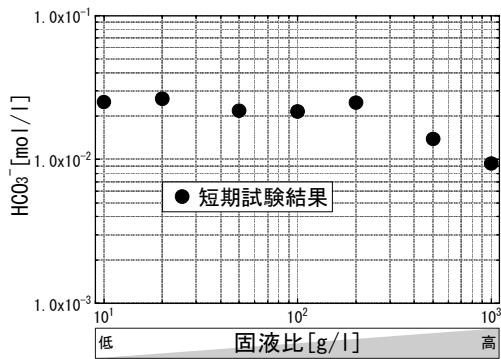


Fig. 2.5-7 固液比に対する間隙水中の  $HCO_3^-$  濃度の変化  
(クニピア F)

## ② クニゲルV 1の場合

Table 2.2 およびFig. 2.6-1～2.6-6に基づけば、上述したクニピアFの場合と同様に値に多少のばらつきは存在するものの、それぞれの成分が固液比に対して一定の傾向(増加、減少、変化なし)を示すように見える。小田・柴田<sup>6)</sup>のデータとの比較においても、クニピアFの場合と同様に  $\text{SO}_4^{2-}$ については比較的良い一致を示し、NaとCl<sup>-</sup>については固液比に対する変化の傾向が類似し、KとMgに関しては変化の傾向が異なった。また、クニピアFと同様に、小田・柴田<sup>6)</sup>のデータには  $\text{HCO}_3^-$ が含まれていないため、本試験結果のみを参考までにプロットした(Fig. 2.6-7)。

Table 2.2 クニピアV 1 を用いた試験における間隙水組成(短期試験における主要成分の分析結果)

固液比[g/l]	Na[mol/l]	K[mol/l]	Mg[mol/l]	Ca[mol/l]	Cl <sup>-</sup> [mol/l]	$\text{SO}_4^{2-}$ [mol/l]	$\text{HCO}_3^-$ [mol/l]
10	2.445e-01	4.015e-03	4.196e-03	6.487e-04	2.216e-01	6.964e-04	2.721e-02
20	2.434e-01	3.606e-03	3.957e-03	3.543e-04	2.236e-01	1.436e-03	2.655e-02
50	2.537e-01	2.967e-03	3.130e-03	6.262e-04	2.216e-01	5.402e-04	2.311e-02
100	2.592e-01	2.353e-03	2.423e-03	5.190e-04	2.282e-01	1.083e-03	2.524e-02
200	2.736e-01	1.729e-03	1.678e-03	4.316e-04	2.347e-01	3.560e-03	2.376e-02
500	2.911e-01	8.286e-04	8.104e-04	4.167e-04	2.450e-01	5.182e-03	1.088e-02
1,000	3.163e-01	6.957e-04	6.541e-04	6.811e-04	2.702e-01	6.389e-03	8.555e-03

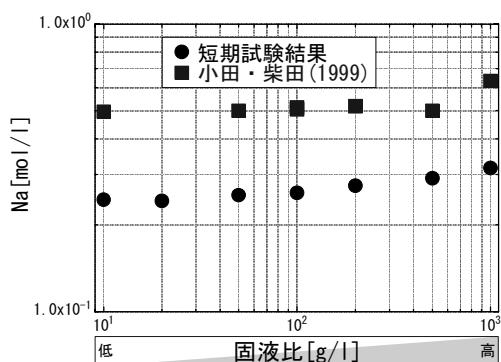


Fig. 2.6-1 固液比に対する間隙水中のNa濃度の変化  
(クニゲルV 1)

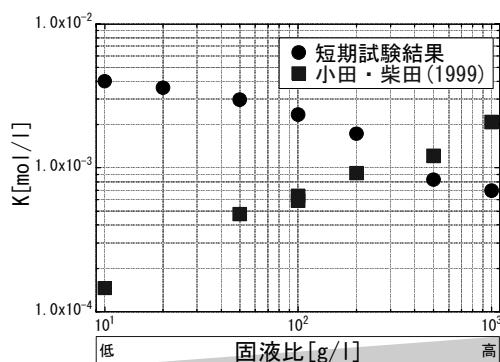


Fig. 2.6-2 固液比に対する間隙水中のK濃度の変化(クニゲルV 1)

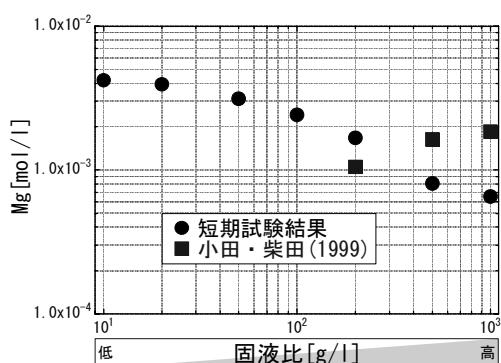


Fig. 2.6-3 固液比に対する間隙水中のMg濃度の変化  
(クニゲルV 1)

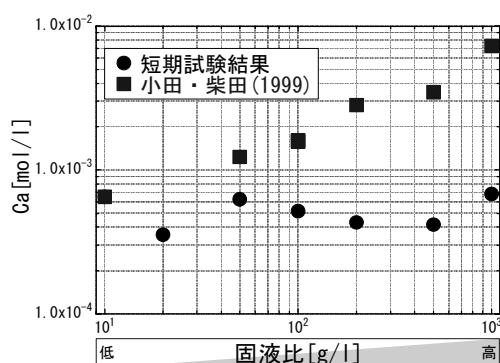


Fig. 2.6-4 固液比に対する間隙水中のCa濃度の変化  
(クニゲルV 1)

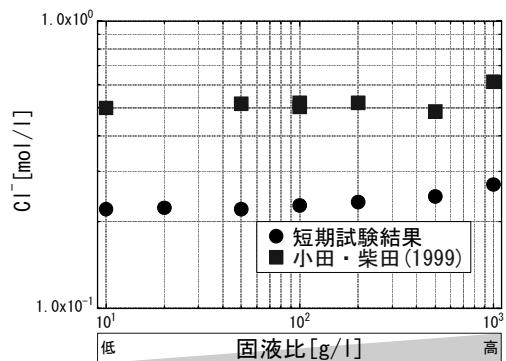


Fig. 2.6-5 固液比に対する間隙水中のCl<sup>-</sup>濃度の変化  
(クニゲルV 1)

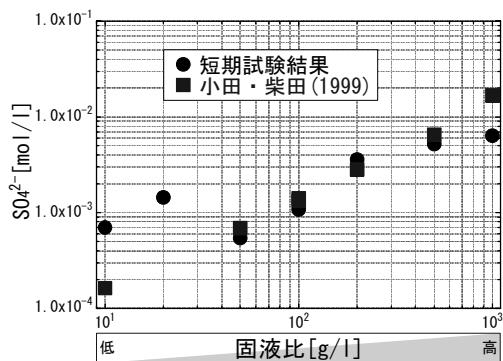


Fig. 2.6-6 固液比に対する間隙水中のSO4^2-濃度の変化  
(クニゲルV 1)

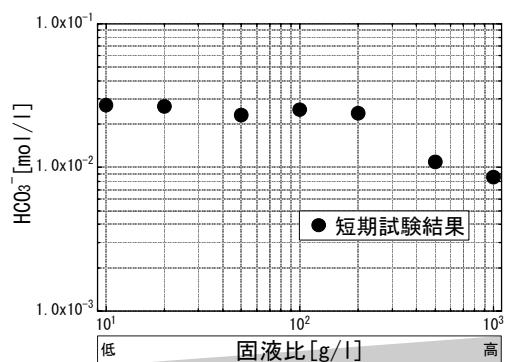


Fig. 2.6-7 固液比に対する間隙水中のHCO3^-濃度の変化  
(クニゲルV 1)

### 3 間隙水化学モデルによるモデル化

本試験の結果を解釈するにあたり、第2次取りまとめにおける熱力学的手法に基づく間隙水化学モデルを用い、幌延の地下水を対象とした場合のベントナイト-水反応試験に対するモデルの適用性を検討した。以下では、間隙水化学モデルの概念およびモデル計算で用いた解析パラメータについて述べるとともに、解析結果と試験結果の比較・検討の内容についてまとめる。

#### 3.1 間隙水化学モデルの概念

Fig. 3.1 に間隙水化学モデルの概念図を示す。このような概念モデルは、これまでに例えれば Wieland ら<sup>7</sup>、小田・柴田<sup>8</sup>などにより検討され、構築されている。以下に、粘土の基本特性に関する説明<sup>8</sup>とともに、間隙水化学モデルで考慮されている主要な反応について整理する。

ベントナイトの主成分であるスメクタイト(モンモリロナイト)は、四面体のシート(層)2枚で八面体のシート(層)1枚を挟む形で1つの結晶層(2:1層)を形成し、これらが重なった状態で存在している。粘土鉱物のような珪酸塩層中では、正と負の電荷を持つ層が交互に平行に積み重なり、静電的安定を保っている。しかしながら、実際には四面体層および八面体層の陽イオンは、同型置換により電荷のバランスが崩されている。たとえば、四面体層では  $\text{Si}^{4+}$  を  $\text{Al}^{3+}$  により置換し、八面体層では  $\text{Al}^{3+}$  を  $\text{Mg}^{2+}$  や  $\text{Fe}^{2+}$  などにより置換されている。これにより陽イオンの電荷が減るため、2:1層全体としては、より負の電荷を帯びる(層電荷)。このような層の層間には、水(層間水)および層電荷に見合った量の陽イオン(層間陽イオン:  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  など)が含まれる。

一方、粘土鉱物の表面電荷としては、上述した層電荷に加えて結晶の結合破断面(エッジ)による電荷である変異電荷が挙げられる。層電荷は鉱物ごとにより一定の電荷であるが、変異電荷は周囲の溶液の pH、イオン種とその濃度、温度等の条件により変化する電荷である。変異電荷は、例えば Fig. 3.1 の結晶層に垂直な断面で、 $\text{Si}-\text{O}$ 、 $\text{Al}-\text{O}$  のように結合が切られ、 $\text{Si}-\text{O}^-$ や $\text{Al}-\text{O}^-$ といった原子価の状態で存在することに起因する。エッジにおける酸素が負に帯電しているため、 $\text{H}^+$ や陽イオンを引き寄せ、結晶端部において  $\text{Si}-\text{OH}$  となる。また、溶液が弱酸性あるいは中性～アルカリ性の条件では、 $\text{Si}-\text{OH} \rightarrow \text{Si}-\text{O}^- + \text{H}^+$  のように  $\text{H}^+$  の解離が生じ、エッジは負電荷となる。

上述したような粘土鉱物の表面特性を考慮し、

- ・スメクタイトのエッジにおける  $\text{H}^+$  の脱着反応 (Fig. 3.1 における反応①)
- ・スメクタイト層間における陽イオン交換反応 (Fig. 3.1 における反応②)

を間隙水化学モデルの中では取り込んでいる。

さらに、ベントナイトにはスメクタイトのほかに、随伴鉱物としての玉隨、方解石、黄鉄鉱等や  $\text{NaCl}$ 、 $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 、 $\text{CaCl}_2$ 、 $\text{Ca}_2\text{SO}_4$  といった可溶性の不純物(可溶性塩)も含有されている。これら随伴鉱物や可溶性塩と水との反応も間隙水化学に影響を与えると考えられるため、

- ・随伴鉱物や可溶性塩と水との反応に伴う溶解／沈殿反応 (Fig. 3.1 における反応③)
- も間隙水化学モデルの中で考慮されている。

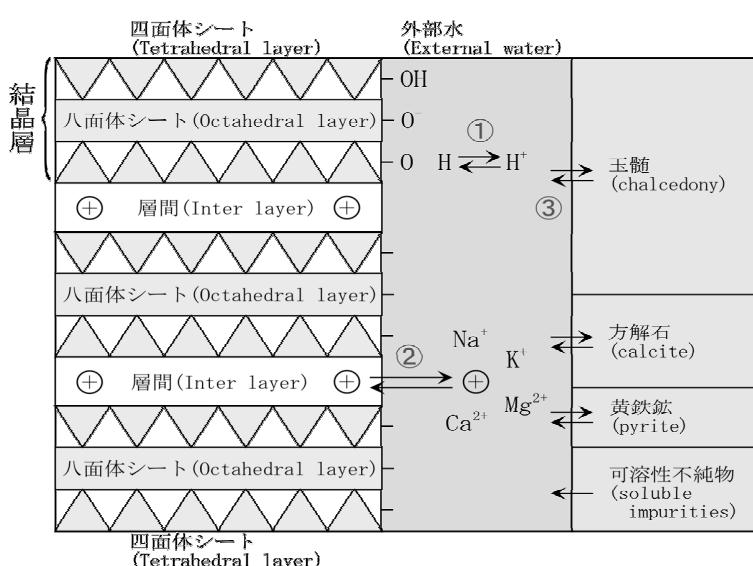


Fig. 3.1 間隙水化学モデルの概念図

### 3.2 モデル計算で用いた解析パラメータ

3.1 項で述べた間隙水化学モデルの概念に基づき、モデル化にあたり考慮する主要な反応(エッジにおけるH<sup>+</sup>の脱着反応、層間における陽イオン交換反応、随伴鉱物や可溶性塩の溶解／沈殿反応)を計算するうえで必要となる情報(構成鉱物の種類・量、可溶性塩の種類・量)および解析パラメータをTable 3に整理した。これらのパラメータのうち、H<sup>+</sup>の脱着反応(酸・塩基反応)については、雰囲気制御下におけるNa型スメクタイトへの酸塩基滴定試験結果をもとに、フィッティングにより導出された値である<sup>9</sup>。Table 3に整理した内容は、基本的に第2次取りまとめにおける緩衝材中の間隙水化学の設定にあたり用いられた値である。

Table 3 モデル計算を行う上で必要となる情報および解析パラメータ

平衡鉱物	方解石 <sup>※1</sup> 、玉髓、石膏 <sup>※2</sup>		
ベントナイトの スメクタイト含有量	クニピアF : 99	[wt%]	
	クニゲルV 1 : 48	[wt%]	
ベントナイトの 可溶性塩含有量	クニピアF : Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 4.17e-05 NaCl 1.54e-05	[mol/g]	
	クニゲルV 1 : CaSO <sub>4</sub> 1.79e-05 CaCl <sub>2</sub> 6.14e-07	[mol/g]	
イオン交換反応	陽イオン交換容量		
	クニピアF : 115.0 [meq/100g]		; クニミネ工業(株)Webサイト <sup>10</sup>
	クニゲルV 1 : 60.1 [meq/100g]		; 鈴木ほか <sup>11</sup>
	初期の交換性陽イオン組成 [meq/100g]		
	クニピアF : ZNa 103.89 ZK 1.23 ZMg 0.12 ZCa 9.76		(合計 : 115.0)
	クニゲルV 1 : ZNa 51.4486 ZK 0.5740 ZMg 0.6641 ZCa 7.4133		(合計 : 60.1)
	イオン交換反応選択性		; Gaines & Thomas <sup>12</sup>
	(log K) ZNa-ZK 0.42 2ZNa-ZMg 0.67 2ZNa-ZCa 0.69 ZNa-ZH 1.88		
	表面サイト酸・塩基解離定数 : log K(-) = -7.92 / log K(+) = 5.67		
	表面サイト密度 : 6.478e-05 [mol/g] <sup>※3</sup>		
酸・塩基反応	表面サイト有効比表面積 : 29 [m <sup>2</sup> /g] <sup>※3</sup>		

※1 : 方解石含有量(クニピアF : 0.5[wt%]、クニゲルV 1 : 2.4[wt%])を溶解度の上限とする。

※2 : 沈殿反応のみを考慮

※3 : スメクタイト重量あたり

上述した計算に必要な情報やパラメータをもとにベントナイト-水反応のモデル計算を行うにあたり、地球化学計算コードおよび熱力学データベースは、第2次取りまとめで用いられたものと同一※のものを用いた。

なお、蒸留水を用いた場合のベントナイト-水反応のモデル計算では、初期の蒸留水のpHおよびpeは、各々、以下を仮定し計算を行った(pH=7.0、pe=4.0)。

さらに、解析において、平衡鉱物としての玉隨の考慮の有無は、解析結果にほとんど影響を与えたなかった。また、石膏に関しては、過飽和の場合に考慮<sup>13</sup>するとされており、今回の試験では石膏に対して過飽和となる条件は該当しなかったため、この反応は考慮しなかった(付録1参照)。

\* 今回の解析では、PHREEQC-2<sup>14</sup>および011213c2.tdb<sup>15</sup>を用いた。今回用いた熱力学データベース(011213c2.tdb)は、間隙水化学の計算で必要となる鉱物等のデータは、第2次取りまとめで用いられた991231c2.tdbと同様である。

### 3.3 モデルによる解析結果と試験結果の比較

3.1項および3.2項で述べた概念モデルと解析に必要なパラメータをもとに、今回行った試験を対象に間隙水組成を推定するための解析を行った。以下に解析結果と試験結果の比較について述べる。比較にあたっては、2.3項の「試験・分析結果」で整理した項目ごと(間隙水pHと固液比の関係、交換性陽イオン量と固液比の関係、溶液組成と固液比の関係)に行った。

間隙水pHと固液比の関係にあたっては、蒸留水を用いた試験の場合と、幌延の地下水を用いた試験の場合に分けて説明する。幌延の地下水を用いた場合の初期組成は、Table 1の値を用いた。

交換性陽イオン量と固液比の関係および溶液組成と固液比の関係の比較については、蒸留水を用いた試験では分析結果が無いため、これらの関係の比較は幌延の地下水を用いた場合のみについて述べる。

#### (1) 間隙水pHと固液比の関係

Fig. 3.2-1 および 3.2-2 に、クニピアF および クニゲルV 1 の場合の解析結果と試験結果の比較を各々示す。

##### ① 蒸留水を用いた試験

クニピアF、クニゲルV 1 のいずれの場合も、固液比に対する間隙水pHの変化は、解析結果および試験結果ともに同様な傾向を示している(Fig. 3.2-1 および 3.2-2 の●と■)。解析結果と試験結果を比較した場合、固液比が大きくなると、試験結果の方が解析結果よりもややpHが大きくなる。しかしながら、その差異は最大で1程度であり、解析により試験結果をほぼ再現できている。

##### ② 幌延の地下水を用いた試験

クニピアF、クニゲルV 1 のいずれの場合も、固液比に対する間隙水pHの変化は、解析結果と試験結果を比較すると変化の傾向が異なった(Fig. 3.2-1 および 3.2-2 の▲と▼)。試験結果では、固液比の増加に伴い間隙水pHが上昇する傾向が認められたが、解析結果では、固液比の増加に伴い間隙水pHが低下した。Fig. 3.2-1 および 3.2-2 に示した試験結果は、短期試験の結果であるが、中期・長期の試験結果についても同様な傾向を示した。

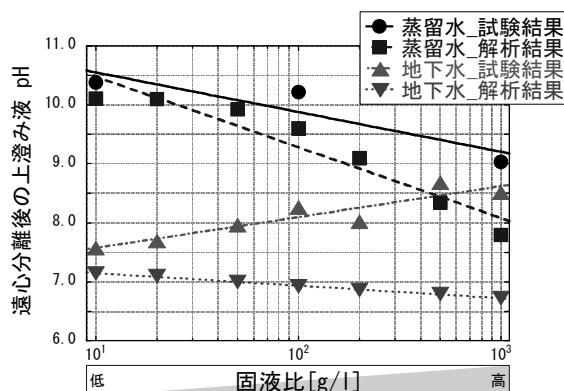


Fig. 3.2-1 固液比に対する間隙水pHの変化(解析結果と試験結果の比較: クニピアF)

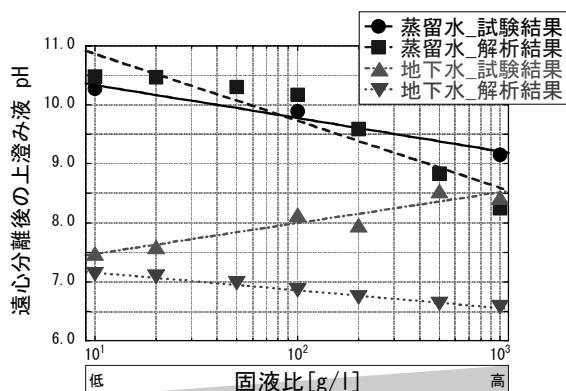


Fig. 3.2-2 固液比に対する間隙水pHの変化(解析結果と試験結果の比較: クニゲルV 1)

## (2) 交換性陽イオン量と固液比の関係

蒸留水を用いた試験については交換性陽イオン量の分析を行っていないため、ここでは幌延の地下水を用いた試験の結果と解析結果の比較についてまとめる。

以下、クニピアFとクニゲルV 1に分けて記述する。クニピアFの場合の交換性陽イオン量と、固液比の解析結果と試験結果の比較をFig. 3.3-1～3.3-4に示す。クニピアV 1の場合の交換性陽イオン量と、固液比の解析結果と試験結果の比較をFig. 3.4-1～3.4-4に示す。

### ① クニピアFの場合

#### ・交換性Na<sup>+</sup>イオン量に関して

解析結果では、固液比の増加に伴い交換性Na<sup>+</sup>イオン量も増加する傾向が認められた(Fig. 3.3-1)。一方、試験結果は、固液比によらず概ね一定の値を示しており、解析結果とは異なる傾向を示している。

#### ・交換性K<sup>+</sup>イオン量に関して

交換性K<sup>+</sup>イオン量と固液比の関係(固液比が高くなるに従い、交換性K<sup>+</sup>イオン量が減少)は、解析結果、試験結果ともに類似した傾向を示しており(Fig. 3.3-2)、解析により試験結果をほぼ再現できている。

#### ・交換性Mg<sup>2+</sup>イオン量に関して

交換性K<sup>+</sup>イオン量の場合と同様に、交換性Mg<sup>2+</sup>イオン量と固液比の関係(固液比が高くなるに従い、交換性Mg<sup>2+</sup>イオン量が減少)は、解析結果、試験結果ともに類似した傾向を示しており(Fig. 3.3-3)、解析により試験結果をほぼ再現できている。

#### ・交換性Ca<sup>2+</sup>イオン量に関して

解析結果では、固液比の増加に伴い交換性Ca<sup>2+</sup>イオン量も増加する傾向が認められた(Fig. 3.3-4)。一方、試験結果は、固液比が高くなるに従い交換性Ca<sup>2+</sup>イオン量が減少する傾向を示しており、解析結果とは異なる。

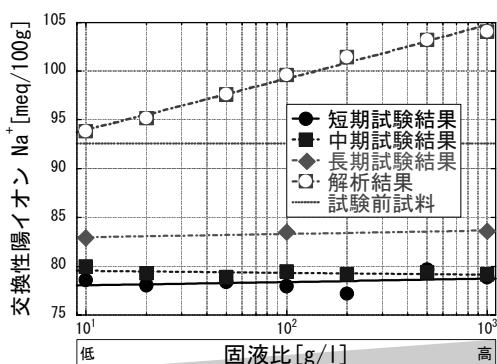


Fig. 3.3-1 固液比に対する交換性Na<sup>+</sup>イオン量の変化(解析結果と試験結果の比較：クニピアF)

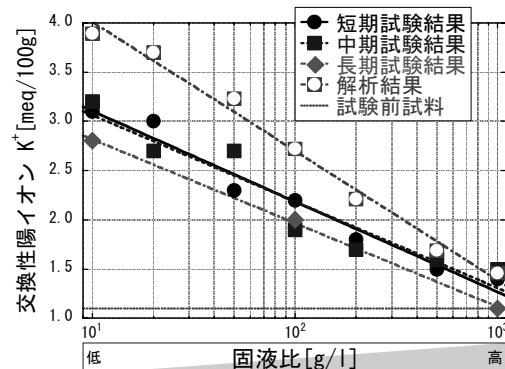


Fig. 3.3-2 固液比に対する交換性K<sup>+</sup>イオン量の変化(解析結果と試験結果の比較：クニピアF)

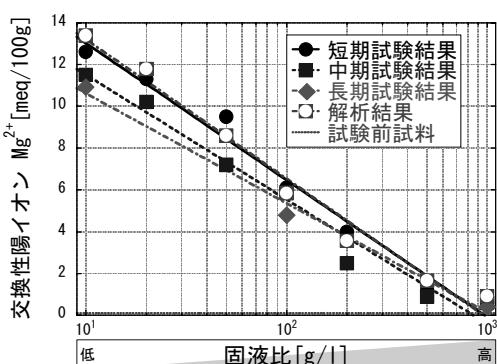


Fig. 3.3-3 固液比に対する交換性Mg<sup>2+</sup>イオン量の変化(解析結果と試験結果の比較：クニピアF)

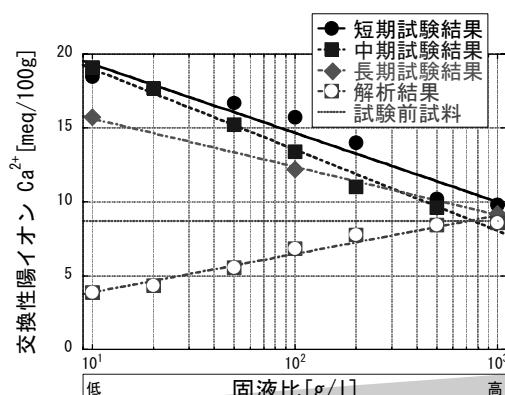


Fig. 3.3-4 固液比に対する交換性Ca<sup>2+</sup>イオン量の変化(解析結果と試験結果の比較：クニピアF)

## ② クニゲルV 1の場合

### ・交換性Na<sup>+</sup>イオン量に関して

解析結果では、固液比の変化に伴う交換性Na<sup>+</sup>イオン量の変化は認められなかった(Fig. 3.4-1)。解析結果と試験結果との間での整合性は認められない。

### ・交換性K<sup>+</sup>イオン量に関して

交換性K<sup>+</sup>イオン量と固液比の関係(固液比が高くなるに従い、交換性K<sup>+</sup>イオン量が減少)は、解析結果、試験結果ともに類似した傾向を示しており(Fig. 3.4-2)、解析により試験結果をほぼ再現できている。

### ・交換性Mg<sup>2+</sup>イオン量に関して

交換性K<sup>+</sup>イオン量の場合と同様に、交換性Mg<sup>2+</sup>イオン量と固液比の関係(固液比が高くなるに従い、交換性Mg<sup>2+</sup>イオン量が減少)は、解析結果、試験結果ともに類似した傾向を示しており(Fig. 3.4-3)、解析により試験結果をほぼ再現できている。

### ・交換性Ca<sup>2+</sup>イオン量に関して

解析結果では、固液比の増加に伴い交換性Ca<sup>2+</sup>イオン量も増加する傾向が認められた(Fig. 3.4-4)。一方、試験結果は、固液比が高くなるに従い交換性Ca<sup>2+</sup>イオン量が減少する傾向を示しており、解析結果とは異なる。

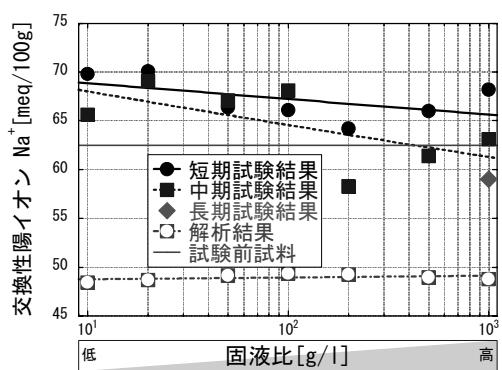


Fig. 3.4-1 固液比に対する交換性Na<sup>+</sup>イオン量の変化(解析結果と試験結果の比較: クニゲルV 1)

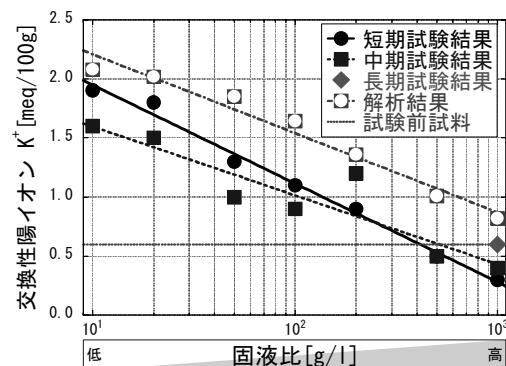


Fig. 3.4-2 固液比に対する交換性K<sup>+</sup>イオン量の変化(解析結果と試験結果の比較: クニゲルV 1)

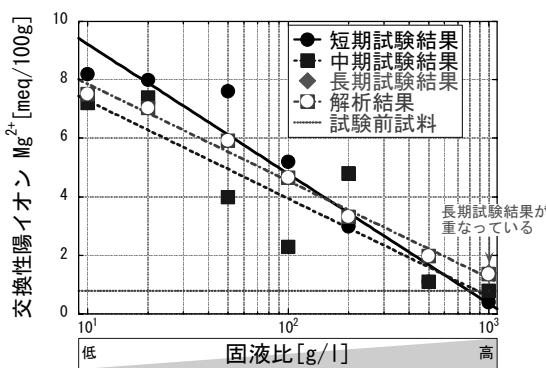


Fig. 3.4-3 固液比に対する交換性Mg<sup>2+</sup>イオン量の変化(解析結果と試験結果の比較: クニゲルV 1)

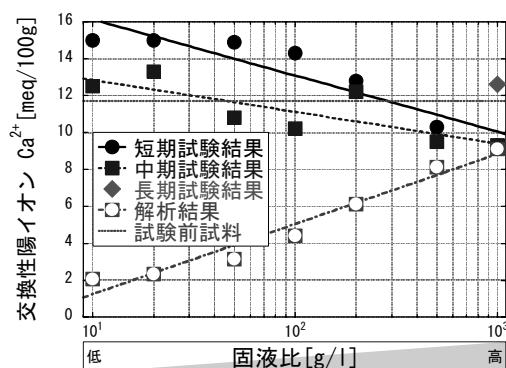


Fig. 3.4-4 固液比に対する交換性Ca<sup>2+</sup>イオン量の変化(解析結果と試験結果の比較: クニゲルV 1)

## (3) 溶液組成と固液比の関係

幌延の地下水を用いた試験の結果と、解析結果の比較についてまとめる。クニピアFを用いた場合の試験に対する解析結果に基づく間隙水組成の推定値を、Table 4.1 に示す。また、クニピアFを用いた場合の固液比に対する各溶液中の成分の変化について、解析結果と試験結果を比較した図を Fig. 3.5-1～3.5-7 に示す。同様に、クニゲルV 1の場合の解析結果を Table 4.2 に、また、固液比に対する各溶液中の成分の変化について、解析結果と試験結果を比較した図を Fig. 3.6-1～3.6-7 に示す。解析結果と試験結果を比較した図には、小田・柴田<sup>9</sup>による 0.5M-NaCl を用いた試験の結果も参考データとしてプロットしてある(溶液条件が異なるため直接比較することはできないが、幌延の地下水と類似した海水系の溶液条件での試験結果の例として追記した)。なお、図中で解析結果の比較用として用いた試験結果は、いずれの場合も短期試験の結果である。今回、短期(2週間)、中期(5週間)、長期(26週間)と試験期間を変えて行ったが、2.3項の「試験・分析結果」で述べたように、2週間程度で試験系はほぼ平衡に達していると推定されたため、短期試験の結果との比較を行った。

以下、クニピアFとクニゲルV 1に分けて記述する。

## ① クニピアFの場合

Table 4.1 および Fig. 3.5-1～3.5-7 に基づけば、解析結果と試験結果を比較すると、Na、K および Cl<sup>-</sup>については両結果ともほぼ同様であり、解析により試験結果をほぼ再現できている。また、Mg、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>については、固液比によっては解析結果と試験結果の間にやや差異が生じるもの、固液比の変化に伴うこれらの成分の変化の傾向は両結果ともに類似した結果を示している。一方、Ca については、試験結果では固液比が大きくなると Ca 濃度も増加する傾向を示すが、解析結果ではその傾向が明瞭には認められず、試験結果の再現が困難であった。

Table 4.1 間隙水化学モデルによる解析結果(クニピアFの場合)

固液比[g/l]	Na[mol/l]	K[mol/l]	Mg[mol/l]	Ca[mol/l]	Cl <sup>-</sup> [mol/l]	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> [mol/l]	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> [mol/l]
10	2.406e-01	4.004e-03	3.560e-03	1.064e-03	2.165e-01	1.169e-05	2.153e-02
20	2.423e-01	3.777e-03	3.095e-03	1.166e-03	2.167e-01	3.448e-05	2.146e-02
50	2.466e-01	3.271e-03	2.217e-03	1.482e-03	2.171e-01	2.589e-04	2.117e-02
100	2.524e-01	2.771e-03	1.517e-03	1.832e-03	2.179e-01	1.256e-03	2.073e-02
200	2.619e-01	2.295e-03	9.622e-04	2.176e-03	2.194e-01	3.925e-03	2.027e-02
500	2.869e-01	1.907e-03	5.284e-04	2.776e-03	2.240e-01	1.251e-02	1.942e-02
1,000	3.257e-01	1.871e-03	3.743e-04	3.656e-03	2.317e-01	2.673e-02	1.810e-02

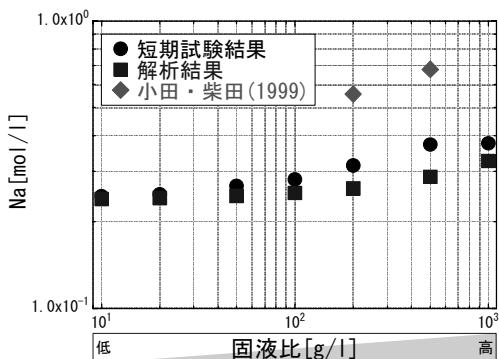


Fig. 3.5-1 固液比に対する間隙水中の Na 濃度の変化(解析結果と試験結果の比較：クニピアF)

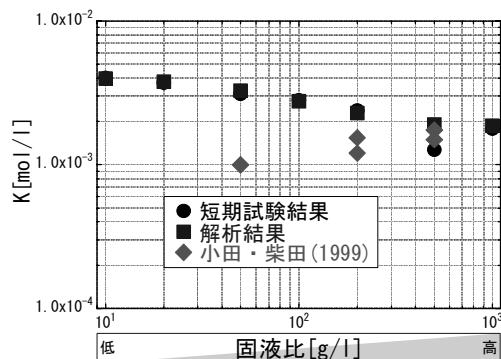


Fig. 3.5-2 固液比に対する間隙水中の K 濃度の変化(解析結果と試験結果の比較：クニピアF)

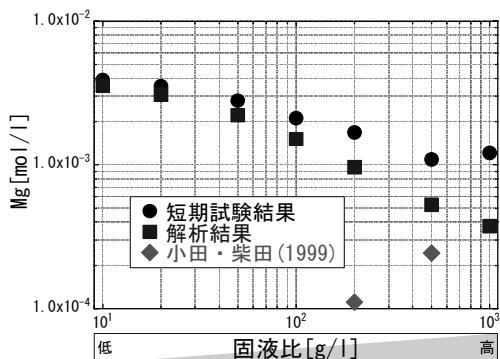


Fig. 3.5-3 固液比に対する間隙水中のMg濃度の変化(解析結果と試験結果の比較: クニビアF)

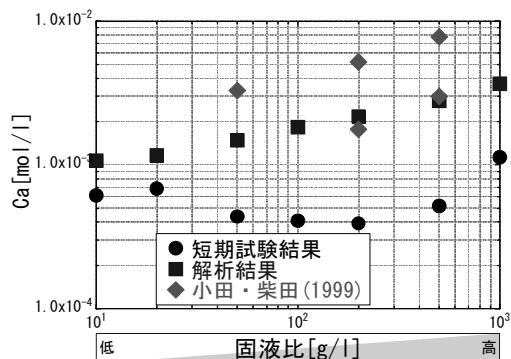


Fig. 3.5-4 固液比に対する間隙水中のCa濃度の変化(解析結果と試験結果の比較: クニビアF)

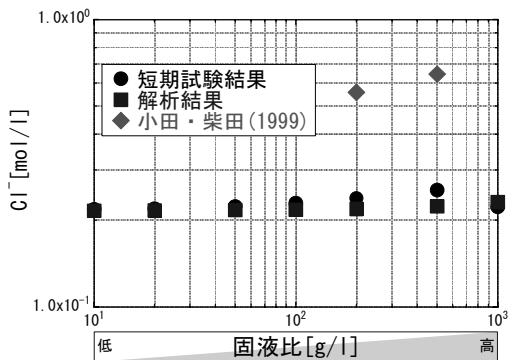


Fig. 3.5-5 固液比に対する間隙水中のCl<sup>-</sup>濃度の変化(解析結果と試験結果の比較: クニビアF)

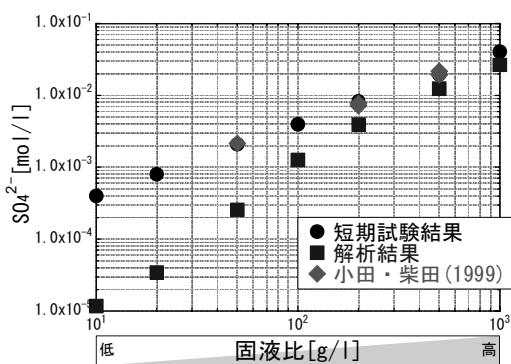


Fig. 3.5-6 固液比に対する間隙水中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の変化(解析結果と試験結果の比較: クニビアF)

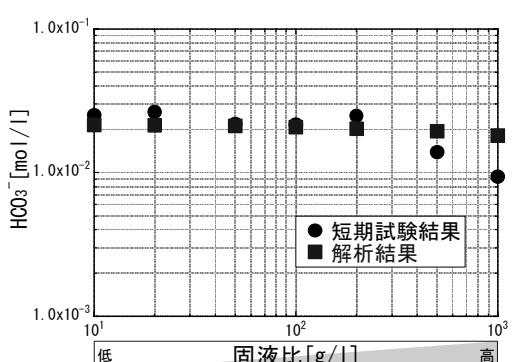


Fig. 3.5-7 固液比に対する間隙水中のHCO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の変化(解析結果と試験結果の比較: クニビアF)

## ② クニゲルV 1の場合

Table 4.2 および Fig. 3.6-1~3.6-7 に基づけば、固液比に対する間隙水中の各成分の変化はクニピア F の場合とほぼ同じであることが判る。解析結果と試験結果を比較した場合も、クニピア F の場合と同様に Na、K および Cl<sup>-</sup>について両結果はほぼ同様であり、Mg、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>についても固液比の変化に伴うこれらの成分の変化の傾向は類似している（ただし SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は、クニピア F の場合と比べると低固液比側での試験結果との差異がやや大きい）。一方、Ca についても、クニピア F の場合と同様に解析結果と試験結果での固液比の変化に伴う Ca 濃度の変化の傾向が異なり、解析による試験結果の再現が困難であった。

Table 4.2 間隙水化学モデルによる解析結果(クニゲルV 1の場合)

固液比[g/l]	Na[mol/l]	K[mol/l]	Mg[mol/l]	Ca[mol/l]	Cl <sup>-</sup> [mol/l]	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> [mol/l]	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> [mol/l]
10	2.390e-01	4.120e-03	3.860e-03	1.094e-03	2.164e-01	4.136e-06	2.127e-02
20	2.392e-01	3.981e-03	3.592e-03	1.229e-03	2.164e-01	9.722e-06	2.097e-02
50	2.399e-01	3.630e-03	2.976e-03	1.637e-03	2.164e-01	4.290e-05	2.016e-02
100	2.408e-01	3.205e-03	2.345e-03	2.293e-03	2.165e-01	2.128e-04	1.907e-02
200	2.429e-01	2.692e-03	1.713e-03	3.249e-03	2.166e-01	1.035e-03	1.775e-02
500	2.498e-01	2.072e-03	1.094e-03	4.629e-03	2.170e-01	4.421e-03	1.620e-02
1,000	2.619e-01	1.777e-03	8.403e-04	5.799e-03	2.176e-01	1.041e-02	1.510e-02

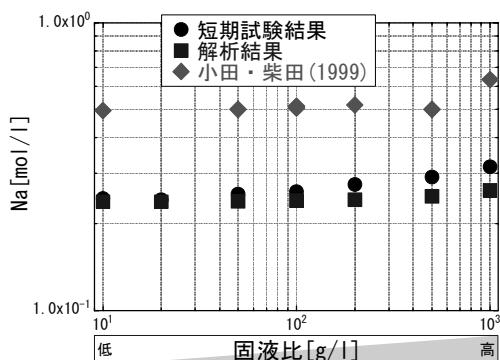


Fig. 3.6-1 固液比に対する間隙水中の Na 濃度の変化  
(解析結果と試験結果の比較：クニゲルV 1)

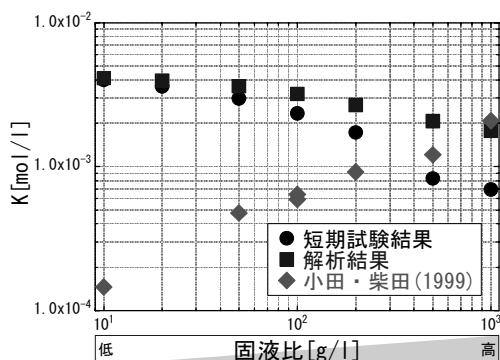


Fig. 3.6-2 固液比に対する間隙水中の K 濃度の変化(解  
析結果と試験結果の比較：クニゲルV 1)

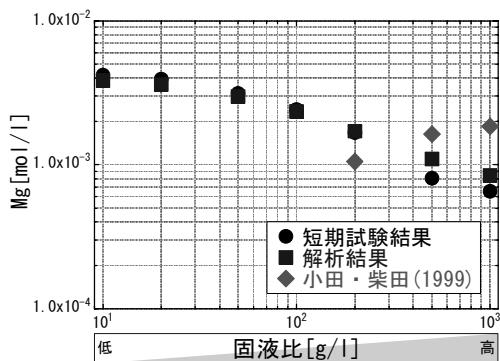


Fig. 3.6-3 固液比に対する間隙水中の Mg 濃度の変化  
(解析結果と試験結果の比較：クニゲルV 1)

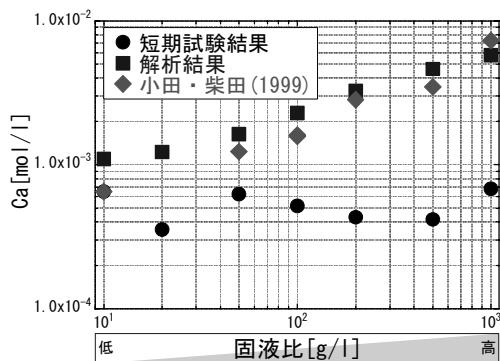


Fig. 3.6-4 固液比に対する間隙水中の Ca 濃度の変化  
(解析結果と試験結果の比較：クニゲルV 1)

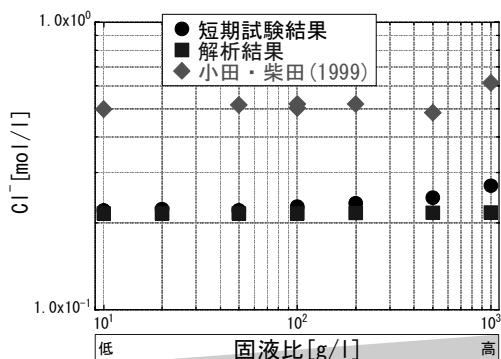


Fig. 3.6-5 固液比に対する間隙水中のCl<sup>-</sup>濃度の変化  
(解析結果と試験結果の比較：クニゲルV  
1)

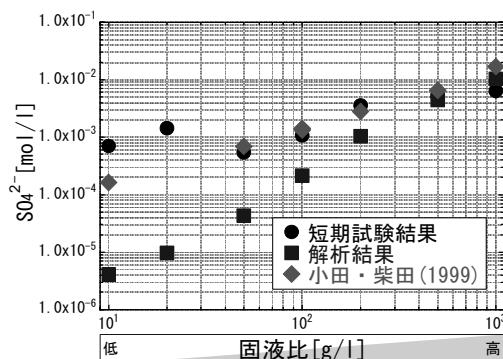


Fig. 3.6-6 固液比に対する間隙水中のSO4<sup>2-</sup>濃度の変化  
(解析結果と試験結果の比較：クニゲルV  
1)

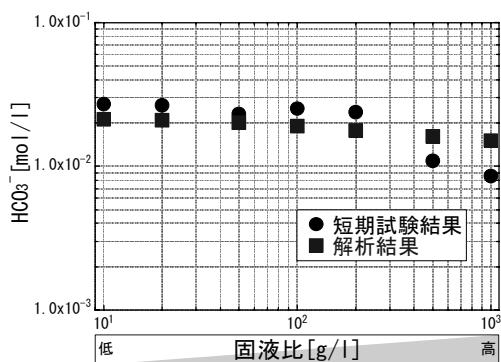


Fig. 3.6-7 固液比に対する間隙水中のHCO3<sup>-</sup>濃度の変化  
(解析結果と試験結果の比較：クニゲルV  
1)

### 3.4 モデル化にあたり抽出された課題

第2次取りまとめにおける熱力学的手法に基づく間隙水化学モデルを用い、幌延の地下水を対象とした場合のベントナイト-水反応試験に対するモデルの適用性について検討した。3.3項で述べたように、解析結果と試験結果の比較に基づけば、主に以下のことが示される。

- ・間隙水pHのモデル化に関して

間隙水pHと固液比の関係は、解析結果では固液比が大きくなると(低固液比側に比べて)pHが低くなる傾向を示したが、幌延の地下水に対する試験結果では、逆にpHが高くなる傾向を示し、解析により試験結果を再現できていない。

- ・溶液組成のモデル化に関して

溶液中の成分によるが、Na、K、Cl<sup>-</sup>については解析により試験結果をほぼ再現できているようであり、Mg、SO4<sup>2-</sup>、HCO3<sup>-</sup>についても固液比の変化に伴うこれらの成分の変化の傾向を解析によりほぼ再現できている。一方、Caについては、解析結果と試験結果での整合性は良くなく、解析による試験結果の再現が困難であった。なお、溶液組成とも関連する(スメクタイトの層間に含まれる)交換性陽イオン量についても、溶液組成と類似した傾向が認められた。

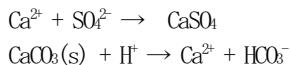
上述したように、今回試みた解析では、固液比の変化に伴う間隙水pHおよびCaイオン濃度の変化については試験結果と比較すると整合性は良くなかった。このような差異が生じた要因としては、例えば以下の影響が考えられる。

a) 随伴鉱物の溶解や可溶性塩の沈殿による影響

b) 地下水中の共存イオンによる影響(例えば、イオン交換性のNH4<sup>+</sup>など)

c) 溶液からのCO2(g)の脱ガスによる影響

a)については、例えば可溶性塩として含まれるCaSO4の沈殿により、ベントナイト中に含まれる方解石の溶解が促進され、pHが上がる可能性が考えられる。具体的な反応例としては、



である。この反応にともないCaイオン濃度も変化する。しかしながら、今回の試験では、試験後溶液の分析結果をもとに石膏(CaSO<sub>4</sub>・2H<sub>2</sub>O)や硬石膏(CaSO<sub>4</sub>)の飽和指数を調べた結果、試験後溶液はこれらの鉱物に対して未飽和の条件であったため、上述したような反応による影響が生じる可能性は小さいと推測された(試験後溶液の分析結果に基づく、鉱物の飽和指数計算結果を付録1に示す)。

b)については、幌延の地下水にはNH<sub>4</sub><sup>+</sup>イオンが比較的多く含まれているため、陽イオン交換反応により溶液中陽イオン濃度や層間の交換性陽イオン量に影響を及ぼす可能性が示唆される。そこで、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>イオンのイオン交換反応も考慮した解析を行い、Caイオン濃度への影響を検討した。検討結果の詳細を付録2に示す。検討の結果、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>イオンのイオン交換反応を考慮しても溶液中のCaイオン濃度や層間のCaイオン量への影響はそれほど顕著に生じなかった。これらのことから、このような反応は今回の試験結果の解釈を行う上ではそれほど大きな影響を与えないといと推測された。

c)については、幌延の地下水は溶存炭酸濃度が比較的高いため、大気下と同等の炭酸分圧(log P<sub>CO<sub>2</sub></sub> = -3.5)で試験を行った場合に地下水からのCO<sub>2</sub>(g)の脱ガスによりpHが上昇する可能性が示唆される。このようなCO<sub>2</sub>(g)の脱ガスによるベントナイトー水反応試験におけるpHへの影響については、Muurinen and Lehikoinen<sup>15)</sup>らも報じている。Muurinen and Lehikoinenらは、合成した海水系の溶液を用いて固液比を10~1,000[g/l]の間でベントナイトー水反応試験を実施し、間隙水pHや溶液組成の変化を調査した。その際、固液比が大きくなると若干(pHで0.5程度)pHが大きくなる結果が得られており、この要因としてCO<sub>2</sub>(g)の脱ガスを挙げている。そこで、解析により得られた固液比1,000[g/l]の溶液に対し、炭酸分圧をlog P<sub>CO<sub>2</sub></sub> = -3.0~ -3.5程度に設定して再計算を試みた。計算の結果、脱ガス影響を考慮しない条件と比較すると設定条件log P<sub>CO<sub>2</sub></sub> = -3.0の場合でpHが2程度上昇し、試験結果とほぼ等しい値となった。一方、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は脱ガス影響を考慮しない場合と比較してほぼ半減し、こちらも設定条件log P<sub>CO<sub>2</sub></sub> = -3.0の場合で試験結果とほぼ等しい値となった。このようなCO<sub>2</sub>(g)の脱ガスによる影響は固液比が大きくなり、液相の割合が小さくなるほどその影響が顕著に生じると考えられるため、想定される処分環境のような圧密系でのベントナイト中の間隙水のpHを把握するためには、今回実施したようなバッチ系ではなく、圧縮ベントナイトを用いた試験系での測定の方が適切であると考えられる。

この他にも、幌延の地下水に認められる特徴的な特性(地下水中の溶存有機物量が多く、また、微生物の存在も確認されている事など)による影響も、試験の結果に影響を与えている可能性が考えられ得る。

以上のような事柄を勘案すると、幌延の地下水のような天然の地下水を用いた場合、間隙水化学モデルの適用性を検討するにあたっては、今後、例えば以下のような課題を解決していくことが必要であると考えられる。

#### ・より単純化された溶液を用いた試験によるモデルの適用性検討

今回、試行的にNH<sub>4</sub><sup>+</sup>イオンのイオン交換反応を考慮した解析等も行ったが、実際の地下水には人工的に作成した単純な溶液には含まれていない成分も溶存しており、それらがベントナイトー水反応においてどのような影響を与えていく可能性があるかを把握しておくことが重要である。そのためには、幌延の地下水組成を参考にベントナイトー水反応に影響を与えそうな成分を組み合わせた溶液を合成し、これらを用いた試験を段階的に行うとともに、解析結果との比較を行い、モデルで考慮する反応の妥当性を確認する必要がある。また、合成地下水を用いたベントナイトー水反応試験による結果と今回の試験結果を比較することで、定性的ではあるが地下水中の有機物等による影響の有無についても検討することが可能であると考えられる。

#### ・圧縮ベントナイトを用いた試験系での間隙水pHや溶液組成の測定

今回行ったバッチ系の試験では、試験雰囲気の影響などにより間隙水pHや溶液組成に影響を与えている可能性もある。間隙水化学モデルによる解析は閉鎖系での反応を想定しているため、モデルとの比較にあたっては、圧密系でのベントナイト中の間隙水pHや溶液組成の値を用いる方が適切であると考えられる。ただし、圧密系での間隙水pHや溶液組成の測定には測定技術上の課題もあるため、それらの課題も踏まえた測定手法を検討したうえで実施する必要がある。

#### 4 まとめ

実際の地質環境を対象とした間隙水化学モデルの適用性検討の一環として、幌延における深地層の研究施設計画で得られた地下水を用いたベントナイト一水反応試験を行い、データを取得した。また、第2次取りまとめで用いられた化学平衡論に基づく間隙水化学モデルによる解析結果との比較を行い、モデルの適用性について考察した。試験では、HDB-10孔の深度500～550[m]から採水された地下水を用い、固液(ベントナイト／水)比を変えたバッチ系でのベントナイト一水反応試験を行った。ベントナイトとしては、クニピアFとクニゲルV1を用いた。以下に結果をまとめる。

- ・試験の結果、間隙水pHと固液比の関係は、固液比が大きくなると(低固液比側に比べて)pHが大きくなる傾向を示した。
- ・一方、間隙水化学モデルによる解析の結果では、試験結果とは逆に固液比が高くなると(低固液比側に比べて)pHが低くなる傾向を示し、解析により試験結果を適切に再現できなかった。
- ・溶液中の成分に関しては、Na、K、Clについては解析により試験結果をほぼ再現できており、Mg、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{HCO}_3^-$ についても固液比の変化に伴うこれらの成分の変化の傾向を解析によりほぼ再現できた。一方、Caについては解析結果と試験結果での整合性は良くなく、解析により試験結果を適切に再現できなかった。なお、溶液組成とも関連する(スメクタイトの層間に含まれる)交換性陽イオン量についても、溶液組成と類似した傾向が認められた。
- ・試験結果と解析結果の差異が生じた要因について、随伴鉱物の溶解や可溶性塩の沈殿による影響、地下水中の共存イオンによる影響(たとえば、イオン交換性の $\text{NH}_4^+$ など)、溶液からの $\text{CO}_2(g)$ の脱ガスによる影響などを想定し、それらによる影響について考察した。その結果、 $\text{NH}_4^+$ などについては顕著な影響が認められず、 $\text{CO}_2(g)$ の脱ガスについては一定の影響は認められるものの、本試験の条件下においては固液比に依存しないことが判った。

また、今回の試験／解析結果を踏まえ、幌延の地下水のような天然の地下水を用いて間隙水化学モデルの適用性を検討するにあたり、今後検討すべき課題としてより単純化された溶液を用いた試験によるモデルの適用性検討や、圧縮ベントナイトを用いた試験系での間隙水pHや溶液組成の測定などの必要項目を抽出した。

## 謝 辞

本報告書を作成するにあたり、國丸貴紀氏および濱 克宏氏(当時、幌延深地層研究ユニット 堆積岩地質環境研究グループに所属)には、地下水の採水および分析結果の提供等においてご協力を頂きました。この場を借りて深く感謝致します。

また、固液分離後の試料を分析するに当たり、固相分析をクニミネ工業(株)、液相分析を日立協和エンジニアリング(株)に実施して頂きました。ここに併せて感謝の意を表します。

## 参考文献

- 1) 資源エネルギー庁、日本原子力研究開発機構：“高レベル放射性廃棄物の地層処分基盤研究開発に関する全体計画”，(2006).
- 2) A. M. Fernandez, J. Cuevas and P. Rivas : “Pore water chemistry of the febex bentonite”, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 663, pp. 573–588(2001).
- 3) P. Wersin, E. Curti and C. A. J. Appelo : “Modelling bentonite–water interactions at high solid/liquid ratios: swelling and diffuse double layer effects”, Applied Clay science, 26, pp. 249–257(2004).
- 4) 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 – 地層処分研究開発第2次取りまとめ – 分冊3 地層処分システムの安全評価，核燃料サイクル開発機構技術資料，JNC TN1400 99-023(1999).
- 5) 國丸貴紀, 他：“幌延深地層研究計画における地下水、河川水および降水の水質分析”，原子力機構研究開発報告書, JAEA-Data/Code 2007-015(2007).
- 6) 小田治恵, 柴田雅博：“ベントナイト–水相互作用の実験とモデル化”，核燃料サイクル開発機構技術資料, JNC TN8400 99-032(1999).
- 7) E. Wieland, et al. : “A surface chemical model of the bentonite–water interface and its implications for modelling the near field chemistry in a repository for spent fuel”, SKB TR 94-26(1994).
- 8) 日本地下水学会編：“地下水水質の基礎”，理工図書(2000).
- 9) 渋谷朝紀, 他：“スマクタイトの物理・化学特性およびNaCl 溶液中でのH<sup>+</sup>との相互作用”，核燃料サイクル開発機構技術資料，JNC TN8400 99-066.
- 10) クニミネ工業(株)Web サイト頁の記載値から抜粋, <http://www.kunimine.co.jp/>
- 11) 鈴木英明, 他：“緩衝材の特性試験(I)”, 動力炉・核燃料開発事業団技術資料, PNC TN8410 92-057(1992).
- 12) G. L. Gaines and H. C. Thomas : “Adsorption Studies on Clay Minerals. II. A Formation of the Thermodynamics of Exchange Adsorption”, Journal of Chemical Physics, 21, pp. 714–718(1953).
- 13) D. L. Parkhurst and C. A. J. Appelo : “User’s guide to PHREEQC(version 2) – A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations”, US Geol. Survey. Water-Resources Investigations Report 99-4259, 312p(1999).
- 14) M. Yui, et al. : “JNC Thermodynamic Database for Performance Assessment of High-level Radioactive Waste Disposal System”, JNC Technical Report, JNC TN 8400 99-070(1999).
- 15) A. Muurinen and J. Lehtikoinen: “Porewater chemistry in compacted bentonite”, POSTVA 99-20, March(1999).

### 付録1 試験後溶液の分析結果に基づく鉱物の飽和指数計算結果

本文3.2項において、未飽和条件下では石膏(Gypsum)は考慮しないことを述べた。この設定が本試験条件に適用可能か、試験に使用した後の溶液、即ち固液分離後の溶液組成に対する石膏の飽和指数を計算した。その結果、試験を行った全固液比領域において石膏は未飽和(Fig. A1)であり、沈殿は生じないことが推測できることから、本試験系においては石膏の反応を考慮しなくても良いことが確認できた。

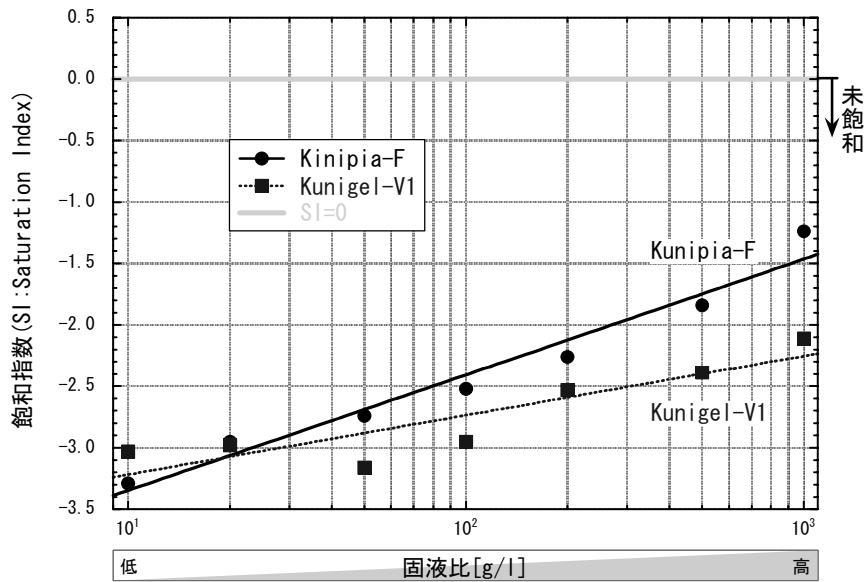


Fig. 1 石膏の飽和指数計算結果

## 付録2 地下水に含まれる $\text{NH}_4^+$ イオンが層間の陽イオン量および間隙水中の濃度に及ぼす影響

幌延のHDB-10孔から採水された地下水は  $\text{NH}_4^+$  イオンを比較的多く ( $1.219 \times 10^{-2} [\text{mol/l}]$ ) 含んでおり、層間陽イオンとの交換が生じると推察できる。現時点において、本解析で用いている間隙水化学モデルに適合する  $\text{NH}_4^+$  イオンの選択係数は取得していないため、既往文献<sup>①～⑥</sup>からおおよその値を推定した。その結果、 $\text{NH}_4^+$  のイオン選択係数は概ね  $K^+$  (0.42) と  $\text{Mg}^{2+}$  (0.67) の間であることが判った。そこで、 $\text{NH}_4^+$  のイオン選択係数をこれらの中間である 0.55 と仮定し、クニピア F の反応系に及ぼす影響を求めた。その結果、本解析条件において  $\text{NH}_4^+$  イオンのイオン交換反応を考慮しても、層間の  $\text{Ca}^{2+}$  イオン量や間隙水中の  $\text{Ca}^{2+}$  イオン濃度への影響はそれほど顕著に生じなかった。その他のイオンに関しては、層間  $\text{Na}^+$  イオンの低固液比側でやや差異が生じたものの、 $K^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$  についてはほとんど影響が認められなかった。また、間隙水中の陰イオン濃度に関しても、 $\text{NH}_4^+$  イオン考慮の有無による差異はほとんど認められなかった。

ただし、今回計算に用いた  $\text{NH}_4^+$  のイオン交換係数は文献値をもとに設定したものであるため、より適切な評価を行うためには、クニピア F を用いたイオン交換試験により、 $\text{NH}_4^+$  のイオン交換係数を把握し、評価を行うことも必要である。

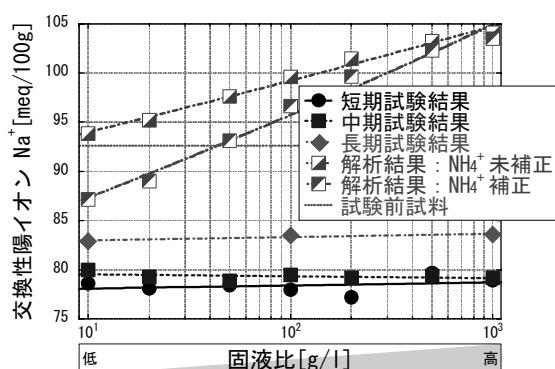


Fig. 2.1-1 固液比に対する交換性  $\text{Na}^+$  イオン量の変化;  
 $\text{NH}_4^+$ 補正

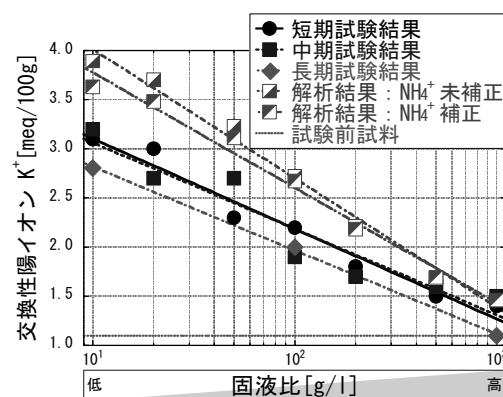


Fig. 2.1-2 固液比に対する交換性  $\text{K}^+$  イオン量の変化;  
 $\text{NH}_4^+$ 補正

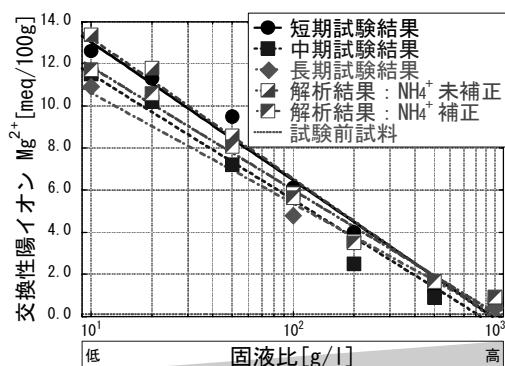


Fig. 2.1-3 固液比に対する交換性  $\text{Mg}^{2+}$  イオン量の変化;  
 $\text{NH}_4^+$ 補正

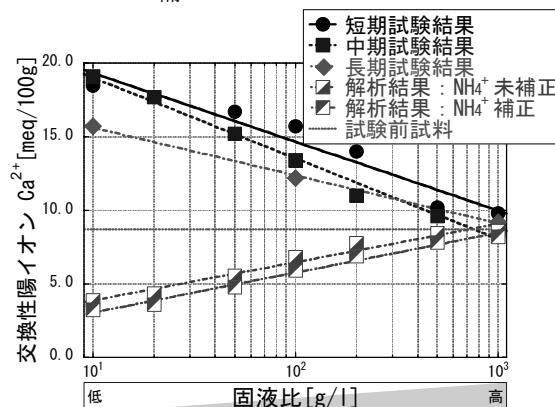
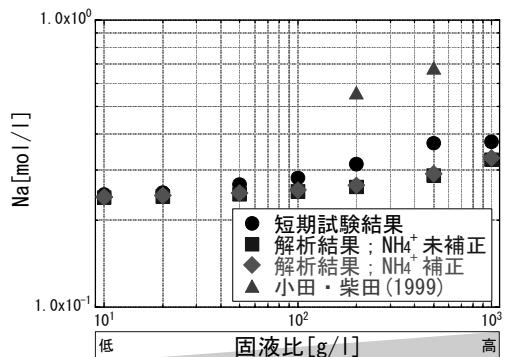
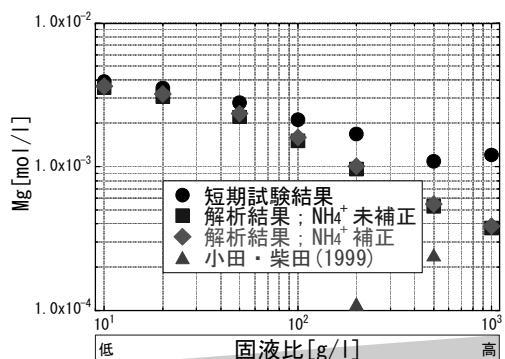
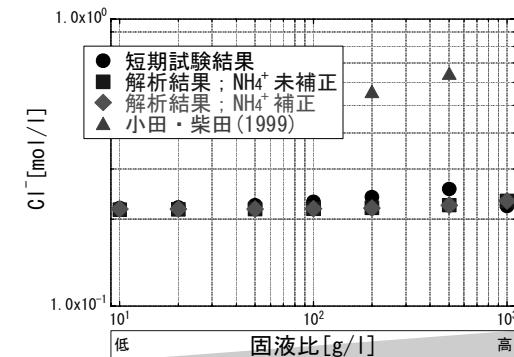
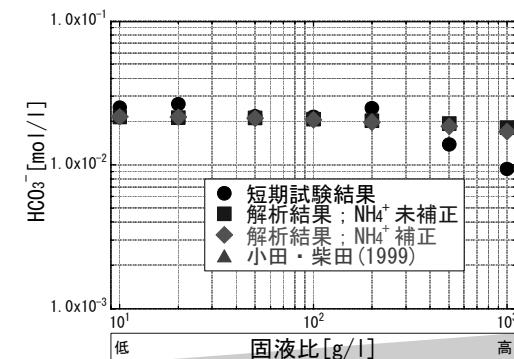
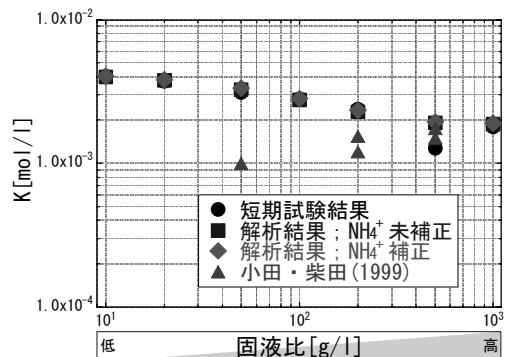
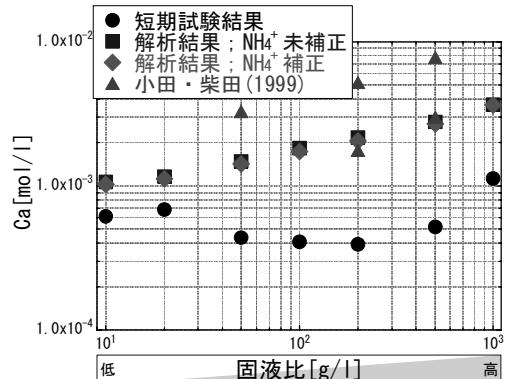
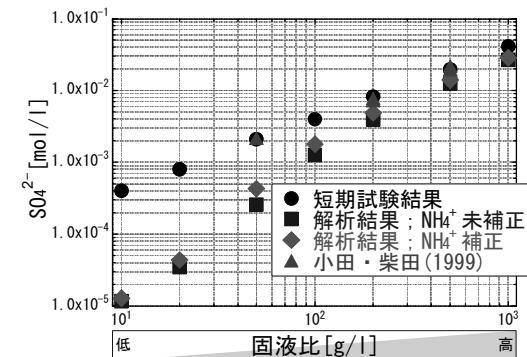


Fig. 2.1-4 固液比に対する交換性  $\text{Ca}^{2+}$  イオン量の変化;  
 $\text{NH}_4^+$ 補正

Fig. 2.2-1 固液比に対する間隙水中のNa濃度の変化；NH<sub>4</sub><sup>+</sup>補正Fig. 2.2-3 固液比に対する間隙水中のMg濃度の変化；NH<sub>4</sub><sup>+</sup>補正Fig. 2.2-5 固液比に対する間隙水中のCl濃度の変化；NH<sub>4</sub><sup>+</sup>補正Fig. 2.2-7 固液比に対する間隙水中のHCO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の変化；NH<sub>4</sub><sup>+</sup>補正Fig. 2.2-2 固液比に対する間隙水中のK濃度の変化；NH<sub>4</sub><sup>+</sup>補正Fig. 2.2-4 固液比に対する間隙水中のCa濃度の変化；NH<sub>4</sub><sup>+</sup>補正Fig. 2.2-6 固液比に対する間隙水中のSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の変化；NH<sub>4</sub><sup>+</sup>補正

### 参考文献

- 1) 藤貫, 他：“粘土の陽イオン交換容量(CEC)の測定と交換性陽イオンの定量”, 地質ニュース 1967 年 8 月号, pp. 10–14.
- 2) P. Fletcher and G. Sposito : “THE CHEMICAL MODELLING OF CLAY/ELECTROLYTE INTERACTION FOR MONTMORILLONITE”, Clay Minerals, vol. 24, No. 2, pp. 375–391(1989).
- 3) 日本土壤肥料学会編：“土壤の吸着現象 -基礎と応用-”, 博友社(1981).
- 4) Y. Kanai : “A selective chemical leaching study of sediments from fresh-water lake, brackish-water lake and sea in the Japan areas”, Bulletin of the Geological Survey of Japan, vol. 45(11), pp. 625–654(1994).
- 5) 広島大学 地球資源論研究室 地球科学用語集 より抜粋
- 6) K. Ohta : “Pure silica gel as cation-exchange stationary phase in ion chromatography for mono- and divalent cations”, Chromatography, vol. 25, No. 3, pp. 93–109(2004).

# 国際単位系 (SI)

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	$m^2$
体積	立方メートル	$m^3$
速度	メートル毎秒	$m/s$
加速度	メートル毎秒毎秒	$m/s^2$
波数	毎メートル	$m^{-1}$
密度、質量密度	キログラム毎立方メートル	$kg/m^3$
面積密度	キログラム毎平方メートル	$kg/m^2$
比体積	立方メートル毎キログラム	$m^3/kg$
電流密度	アンペア毎平方メートル	$A/m^2$
磁界の強さ	アンペア毎メートル	$A/m$
量濃度 <sup>(a)</sup> 、濃度	モル毎立方メートル	$mol/m^3$
質量濃度	キログラム毎立方メートル	$kg/m^3$
輝度	カンデラ毎平方メートル	$cd/m^2$
屈折率 <sup>(b)</sup>	(数字の) 1	1
比透磁率 <sup>(b)</sup>	(数字の) 1	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。

(b) これらは無次元量あるいは次元 1 をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の 1 は通常は表記しない。

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン <sup>(b)</sup>	rad	$1^{(b)}$	$m/m$
立体角	ステラジアン <sup>(b)</sup>	sr <sup>(c)</sup>	$1^{(b)}$	$m^2/m^2$
周波数	ヘルツ <sup>(d)</sup>	Hz	1	$s^{-1}$
力	ニュートン	N		$m\ kg\ s^{-2}$
圧力、応力	パスカル	Pa	$N/m^2$	$m^{-1}kg\ s^{-2}$
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	$N\ m$	$m^2\ kg\ s^{-2}$
仕事率、工率、放射束	ワット	W	$J/s$	$m^2\ kg\ s^{-3}$
電荷、電気量	クーロン	C		$s\ A$
電位差(電圧)、起電力	ボルト	V	$W/A$	$m^2\ kg\ s^{-3}A^{-1}$
静電容量	ファラード	F	$C/V$	$m^{-2}kg^{-1}s^4A^2$
電気抵抗	オーム	Ω	$V/A$	$m^2\ kg\ s^{-3}A^2$
コンダクタンス	ジーメンス	S	$A/V$	$m^{-2}kg^{-1}s^3A^2$
磁束密度	ウェーバ	Wb	$Vs$	$m^2\ kg\ s^{-2}A^{-1}$
磁束度	テスラ	T	$Wb/m^2$	$kg\ s^{-2}A^{-1}$
インダクタンス	ヘンリー	H	$Wb/A$	$m^2\ kg\ s^{-2}A^2$
光束度	ルーメン	lm	$cd\ sr^{(e)}$	$cd$
照度	ルクス	lx	$lm/m^2$	$m^{-2}cd$
放射性核種の放射能 <sup>(f)</sup>	ベクレル <sup>(d)</sup>	Bq	$s^{-1}$	
吸収線量、比エネルギー分与、カーマ	グレイ	Gy	$J/kg$	$m^2\ s^{-2}$
線量当量、周辺線量当量、方向性線量当量、個人線量当量	シーベルト <sup>(g)</sup>	Sv	$J/kg$	$m^2\ s^{-2}$
酸素活性	カタール	kat		$s^{-1} mol$

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコピーレントではない。

(b) ラジアンとステラジアンは数字の 1 に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号 rad および sr が用いられるが、慣習として組立単位としての記号である数字の 1 は明示されない。

(c) 調光学ではステラジアンという名称と記号 sr を単位の表し方の中に、そのまま維持している。

(d) ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。

(e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。

(f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で "radioactivity" と記される。

(g) 単位シーベルト (PV,2002,70,205) については CIPM勧告 2 (CI-2002) を参照。

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘度	パスカル秒	Pa s	$m^{-1}kg\ s^{-1}$
力のモーメント	ニュートンメートル	N m	$m^2\ kg\ s^{-2}$
表面張力	ニュートンメートル	N/m	$kg\ s^{-2}$
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	$m^{-1}s^{-1}=s^{-1}$
角加速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s <sup>2</sup>	$m^{-1}s^{-2}=s^{-2}$
熱流密度、放射照度	ワット毎平方メートル	W/m <sup>2</sup>	$kg\ s^{-3}$
熱容量、エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	$m^2\ kg\ s^{-2}K^{-1}$
比熱容量、比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	$m^2\ s^{-2}K^{-1}$
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	$m^2\ s^{-2}$
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	$m\ kg\ s^{-3}K^{-1}$
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>	$m^{-1}kg\ s^{-2}$
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	$kg\ s^{-3}A^{-1}$
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m <sup>3</sup>	$m^3\ sA$
表面電荷密度	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	$m^2\ sA$
電束密度、電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	$m^2\ sA$
誘電率	ファラード毎メートル	F/m	$m^3\ kg^{-1}s^4A^2$
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	$m\ kg\ s^{-2}A^2$
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	$m^2\ kg\ s^{-2}\ mol^{-1}$
モルエントロピー、モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	$m^2\ kg\ s^{-2}K^{-1}\ mol^{-1}$
照射線量(X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	$kg^{-1}sA$
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	$m^2\ s^{-3}$
放射強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	$m^4\ m^2\ kg\ s^{-3}=m^2\ kg\ s^{-3}$
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m <sup>2</sup> sr)	$m^2\ m^2\ kg\ s^{-3}=kg\ s^{-3}$
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m <sup>3</sup>	$m^{-3}s^{-1}mol$

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
$10^{24}$	ヨタ	Y	$10^{-1}$	デシ	d
$10^{21}$	ゼタ	Z	$10^{-2}$	センチ	c
$10^{18}$	エクサ	E	$10^{-3}$	ミリ	m
$10^{15}$	ペタ	P	$10^{-6}$	マイクロ	μ
$10^{12}$	テラ	T	$10^{-9}$	ナノ	n
$10^9$	ギガ	G	$10^{-12}$	ピコ	p
$10^6$	メガ	M	$10^{-15}$	フェムト	f
$10^3$	キロ	k	$10^{-18}$	アト	a
$10^2$	ヘクト	h	$10^{-21}$	ゼット	z
$10^1$	デカ	da	$10^{-24}$	ヨクト	y

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648000) rad
ヘクタール	ha	1ha=1hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>
リットル	L	1L=1dm <sup>3</sup> =10 <sup>3</sup> cm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup>
トン	t	1t=10 <sup>3</sup> kg

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位で表される数値
電子ボルト	eV	1eV=1.602 176 53(14)×10 <sup>19</sup> J
ダルトン	Da	1Da=1.660 538 86(28)×10 <sup>-27</sup> kg
統一原子質量単位	u	1u=1 Da
天文単位	ua	1ua=1.495 978 706 91(6)×10 <sup>11</sup> m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バル	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=10 <sup>5</sup> Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 <sup>-10</sup> m
海里	M	1 M=1852m
バーソルト	b	1 b=100fm <sup>2</sup> =(10 <sup>-12</sup> cm) <sup>2</sup> =2×10 <sup>-28</sup> m <sup>2</sup>
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネバ	Np	SI 単位との数値的な関係は、対数量の定義に依存。
ベル	B	
デジベル	dB	

(c) 3 元系の CGS 単位系と SI では直接比較できないため、等号「≡」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリ	Ci	1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 <sup>4</sup> C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 <sup>-2</sup> Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 <sup>-9</sup> T
フェルミ	fm	1 fm=10 <sup>-15</sup> m
メートル系カラット		1 メートル系カラット = 200 mg = 2×10 <sup>-4</sup> kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1868J ((15°C)カロリー), 4.1868J ((IT)カロリー) 4.184J ((熱化学)カロリー)
ミクロ	μ	1 μ=1μm=10 <sup>-6</sup> m

