

# サマリウム溶解度に対する地下水中有機物の影響

( 研 究 報 告 )

1999年12月

核燃料サイクル開発機構  
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせ  
ください。

〒319-1194 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 - 3 3

核燃料サイクル開発機構 東海事業所

運営管理部 技術情報室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Information Section,

Administration Division,

Tokai Works,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-33 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1194,

Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

1999

## サマリウム溶解度に対する地下水中有機物の影響 (研究報告)

金持真理子\* 亀井玄人  
油井三和

### 要 旨

地下水に含まれる天然有機物のサマリウム (Sm) 溶解度への影響を評価する目的で、たがいには有機物濃度の異なる花こう岩中降水系、堆積岩中降水系、堆積岩中海水系の3地下水を試験溶液とし、これに水酸化炭酸サマリウム ( $\text{SmOHCO}_3(\text{cr})$ ) を溶解させて、それぞれの溶液中での溶解度を測定した。

その結果、全有機炭素 (TOC) 濃度が 1.2~8.1ppm の花こう岩中降水系および堆積岩中降水系地下水では、Sm の溶解度は、有機物の存在しない系について計算された  $\text{SmOHCO}_3(\text{cr})$  の溶解度とほぼ一致し、 $\text{SmCO}_3^+$  や  $\text{Sm}(\text{CO}_3)_2^-$  の炭酸錯体の生成が、溶解度を支配しているものと考えられた。一方、堆積岩中海水系地下水では TOC 濃度が 53.5ppm であり、 $\text{SmOHCO}_3(\text{cr})$  の溶解度は有機物の存在しない系での計算値よりも数倍高い値を示したが、その違いは1桁以内であった。この溶解度増大の理由の一つとして、分画分子量 < 10000 の有機酸と Sm との錯体生成が考えられた。

## 目 次

1. はじめに	1
2. 実験	2
2.1 試料および手順	2
2.1.2 地下水	2
2.1.2 SmOHCO <sub>3</sub> (cr)の合成	2
2.1.3 溶解度測定実験	6
2.2 結果	6
2.2.1 SmOHCO <sub>3</sub> (cr)の溶解度と pH,Eh,TOC 濃度,無機炭素濃度との関係	6
2.2.2 固相の X 線回折分析	15
3. 考察	15
3.1 固相中の NaCl(cr), CaCO <sub>3</sub> (cr)について	15
3.2 地球化学計算による地下水中の Sm 溶解度と溶存化学種	15
4. まとめ	25
5. 謝辞	25
6. 文献	25
7. 添付資料 計算資料	27

## 1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分後に放射性核種がニアフィールドから生物圏まで移行するプロセスにおいて地下水の関与が考えられるが、地下水中には多かれ少なかれ有機物が存在するので、それとの反応による放射性核種の錯体形成とそれにもなう溶解度の上昇の程度を評価する必要がある。これまでの研究では有機物のうちフミン酸による錯体形成が報告されているが<sup>1)~3)</sup>、フミン酸との反応に限って見れば、高い価数のイオンほど錯形成する割合が高くなる傾向がある。特にアクチニド元素の核種移行における有機物の影響評価は重要であるといえる。

本研究ではアクチニド III 価のアナログとして、地下水中で III 価が支配的となるサマリウム (Sm) を用いて、その溶解度に対する天然地下水中の有機物の影響評価を行うことを目的に溶解度測定試験を行ったので、その結果を報告する。

## 2. 実験

### 2.1 試料および手順

#### 2.1.1 地下水

本研究では、たがいには有機炭素濃度の異なる下記の3地下水を試験溶液とした。なお、これらの地下水の化学組成を表1に示す。

##### 1) 花こう岩中降水系地下水

岩手県釜石鉱山の250mレベル坑道の既存試錐孔(TK-6孔)からの湧水(W-16)<sup>4)</sup>を大気下でポリ瓶に入れ密栓した。採取は容器に気泡が入らないようにした。

##### 2) 堆積岩中降水系地下水

岐阜県東濃地科学センターのKNA6号孔の不整合面より上位の位置からパッカーを用いて採取したものを<sup>5)</sup>大気下でポリ瓶に入れ密栓した。

##### 3) 堆積岩中海水系地下水

房総半島(千葉県茂原地域)に分布し上総層群に属する海成泥質岩～砂岩中に賦存する海水起源地下水(化石海水)のうち、深さ約1000mの井戸から自噴するもの<sup>6)</sup>を大気下でポリ瓶に入れ、密栓した。

##### 4) 地下水試料の調製

採取した地下水試料はいずれも密栓したまま、雰囲気制御グローブボックス(He97%+H<sub>2</sub>3%, O<sub>2</sub><1ppm, CO<sub>2</sub><1ppm)に保管した。溶解度測定試験にあたっては、①天然バリア中の亀裂などに存在する地下水と、②人工バリアの緩衝材(圧縮ベントナイト)を通過した地下水の2条件を想定した。前者には一般にコロイドが存在していると考えられるので、コロイドより大きな粒子のみを除去するために0.45μmのフィルタ(ナルゲン製ディスポーザブルフィルタユニット、硝酸セルロース製)でろ過したものを用意した。また、後者には、緩衝材のもつフィルトレーション効果のためにコロイドがほとんど除去されていると考えられるので、分画分子量10000のフィルタ(ミリポア製モルカットL、LGC、セルロース製)で限外ろ過したものを用意した。これらのろ過は上記と同様の雰囲気制御グローブボックス内で行われた。また、これらのフィルタは塩酸(pH2)および蒸留水で洗浄してから用いた。

#### 2.1.2 SmOHCO<sub>3</sub>(cr)の合成

地下水試料に溶解させるSmの試薬として、水酸化炭酸サマリウムSmOHCO<sub>3</sub>(cr)を用いた。調整はChristensen<sup>7)</sup>および澁谷ほか<sup>8)</sup>の方法に従って行った(図1)。すなわち、0.15mol/lのSm(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>水溶液15mlを攪拌しながらこれに0.1mol/lのNaHCO<sub>3</sub>溶液を滴下し、ホットプレート上で30分間静かに沸騰させながら沈殿を生成させた。沈殿熟成の後5Bのろ紙で沈殿を回収し、蒸留水で洗浄後、デシケータ内で減圧乾燥(圧力:15mmHg)させた。この沈殿物をX線回折分析し、SmOHCO<sub>3</sub>(cr)であることを確認した(図2)。

表1 地下水の化学組成

地下水 No	1	2	3	
採取地域	釜石 <sup>4)</sup>	東濃 <sup>5)</sup>	茂原 <sup>6)</sup>	
採取場所	釜石鉾山 250m レベル坑道 W-16	東濃鉾山 KNA-6 ボーリング抗	茂原ガス田 合同資源産業(株)#78 抗井	
pH	9.8	9.2	7.86	
Eh vs SHE (mV)	295	-300	-50	
温度 (°C)	15.5	18.5	27.8	
電気伝導度( $\mu$ S/cm)	74.8	168	47700	
共存無機イオン濃度 (ppm)	Na <sup>+</sup>	10.9	39	10700
	K <sup>+</sup>	0.31	0.24	3020
	Ca <sup>2+</sup>	3.23	3.3	229
	Mg <sup>2+</sup>	<0.01	0.05	315
	Fe <sup>2+</sup>	<0.02	<0.02	0.98
	Fe <sup>3+</sup>	<0.02	<0.02	0.45
	SiO <sub>2</sub> (aq)	11.7	18.6	70
	Cl <sup>-</sup>	1.57	1.01	18800
	I <sup>-</sup>	—	—	131
	Br <sup>-</sup>	—	—	136
	HBO <sub>3</sub> <sup>2-</sup>	—	—	68.6
	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	2.69	0.71	22.3
	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	22.67	95	903
CO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	5	7	—	
F <sup>-</sup>	0.13	3.7	—	
TOC(ppm)	0.93	—	82	
TC(ppm)	6.03	—	—	
IC(ppm)	5.1	20.0	—	
フミン酸濃度(ppm)	—	—	104	
フルボ酸濃度(ppm)	—	—	75	

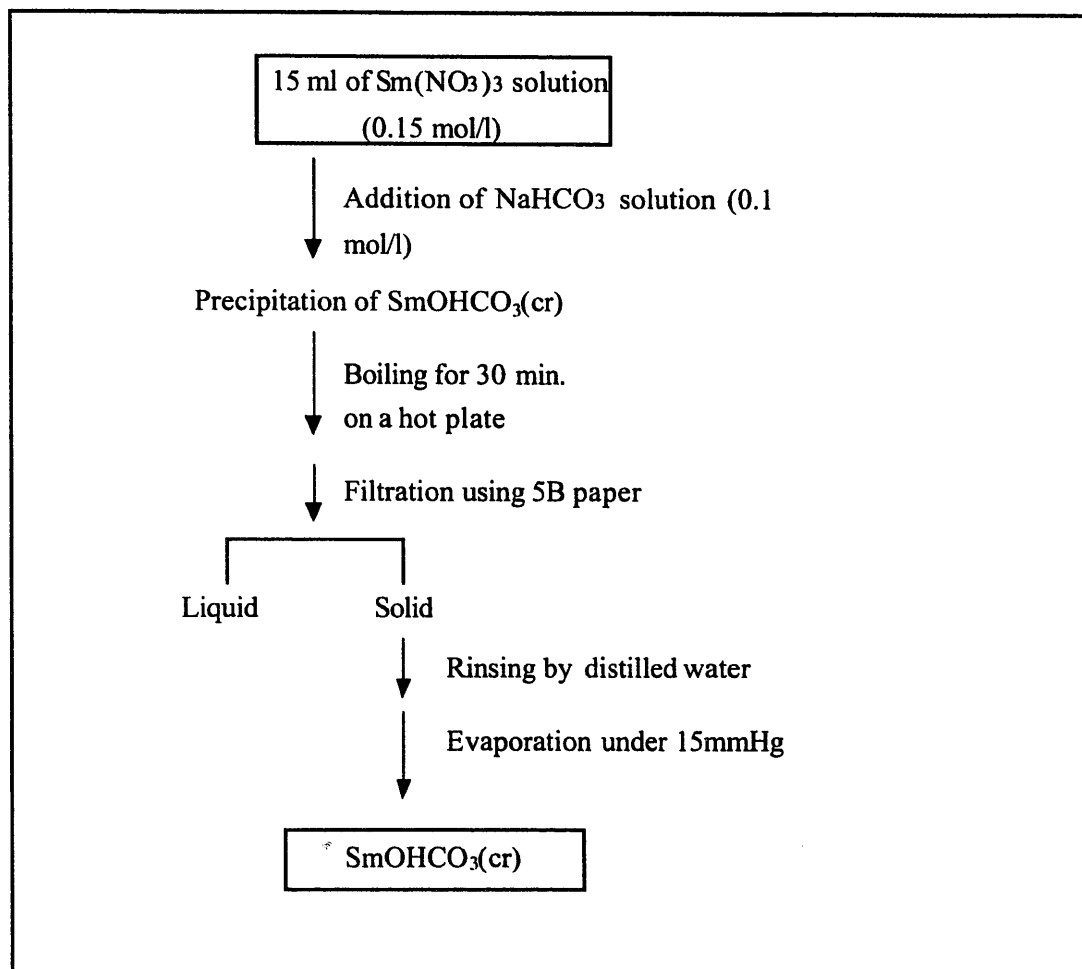


図 1 SmOHCO<sub>3</sub>(cr)の調製手順<sup>7,8)</sup>



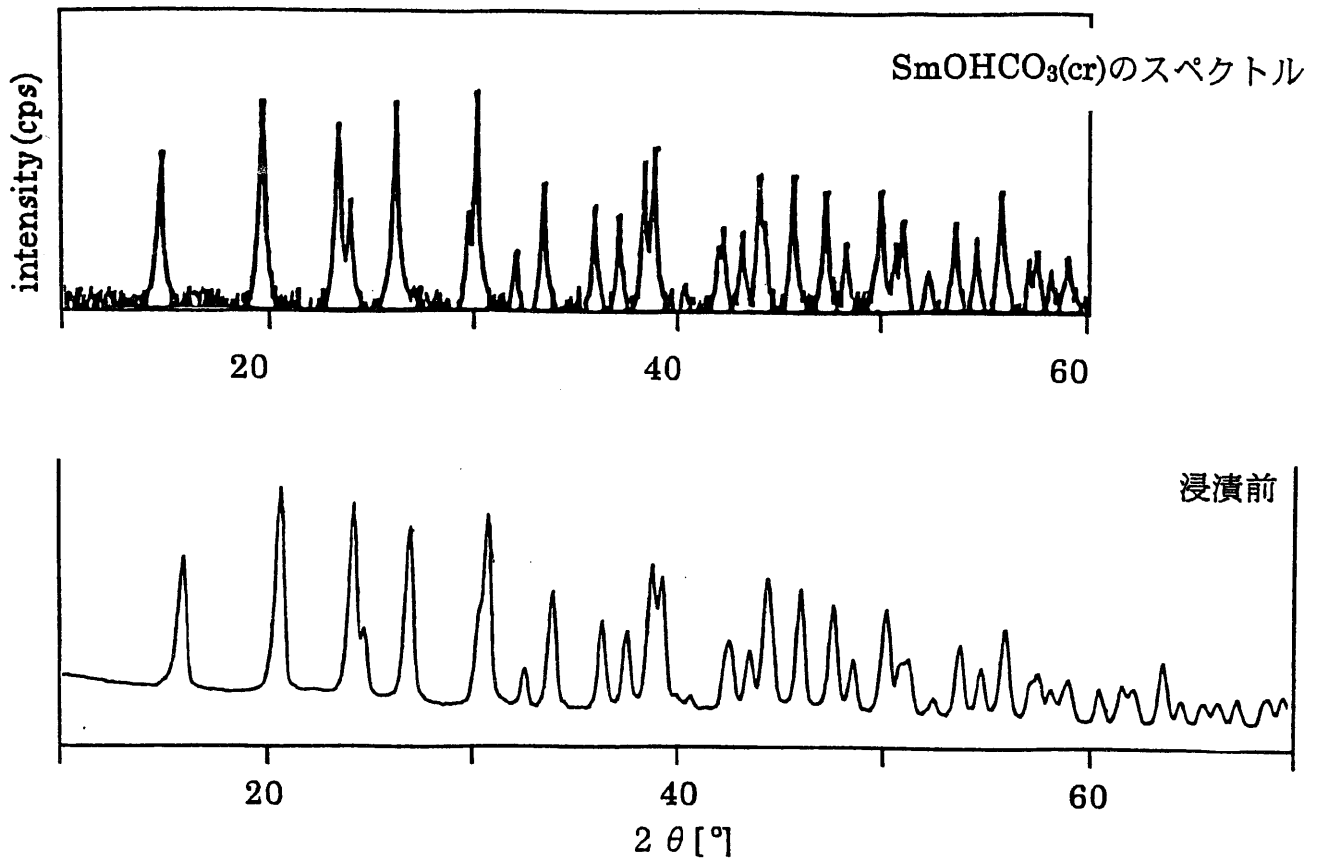


図2 浸漬前のSm化合物とSmOHCO<sub>3</sub>(cr)標準試料のX線回折パターン。両者の比較から浸漬前の試料はSmOHCO<sub>3</sub>(cr)であるとみなすことができる。

### 2.1.3 溶解度測定実験

図 3 に  $\text{SmOHCO}_3(\text{cr})$  の溶解度試験手順を示す。

ろ過後の地下水試料 100ml に対し、 $\text{SmOHCO}_3(\text{cr})$  を 20mg 添加した。便宜上、径 0.45  $\mu\text{m}$  のフィルタでろ過した地下水を用いた場合をケース 1、分画分子量 10000 の限外ろ過を行った地下水を用いた場合をケース 2 と呼ぶことにする。これらを 40 日～60 日間、 $25 \pm 1^\circ\text{C}$  で前述の雰囲気制御ボックス中に静置した。静置後 pH を測定し、ケース 1、2 ともに分画分子量 10000 の限外ろ過により固液分離した。液相は Sm 濃度および TOC の測定に供し、静置後に分離した固相は X 線回折分析（装置：理学電機製薄膜 X 線回折装置 RU-300 型、X 線源：Cu-K $\alpha$ ）に供した。各実験とも、繰り返し数は 3 回である。液相中の Sm 濃度測定は誘導結合プラズマ発光分析装置（VG Elemental 製 Plasma Quad-PQ2t 型）を用いた。

## 2.2 結果

### 2.2.1 $\text{SmOHCO}_3(\text{cr})$ の溶解度と pH、Eh、TOC 濃度、無機炭素濃度との関係

各試料の採取時、グローブボックス内での開封時、およびろ過後における pH と Eh のデータを表 2 に示す。また、ケース 1、2 での  $\text{SmOHCO}_3(\text{cr})$  溶解度測定結果を TOC 濃度、無機炭素濃度および pH とともに、それぞれ表 3、表 4 に示す。

#### 1) TOC 濃度と Sm 濃度との相関

ケース 1、2 の溶液中の TOC 濃度と Sm 濃度の関係をそれぞれ図 4a、4b に示す。ケース 1 の TOC 濃度と Sm 濃度との関係（図 4a）では、両者の間にほとんど相関を認めない。また、浸漬 40 日後から 60 日後の間に、Sm 濃度が 1～2 桁低下することが読み取れる。限外ろ過溶液を用いたケース 2 でも両者の間にあまり顕著な相関は見られないが、浸漬後 40 日と 60 日の間でそれぞれの地下水中の Sm 濃度はほとんど変化していないことが読み取れる。

#### 2) 無機炭素濃度と Sm 濃度との相関

ケース 1、2 の溶液中の無機炭素濃度と Sm 濃度の関係をそれぞれ図 5a、5b に示す。TOC との関係と同様に、ケース 1 の無機炭素濃度と Sm 濃度との関係（図 5a）では、両者の間にほとんど相関を認めない。ケース 2 では両者の間に正の相関を認める。とくに海水系地下水の場合、図 6 に示すように、浸漬後 40 日後と 60 日後のそれぞれにおいて、無機炭素濃度と Sm 濃度の間に明瞭な正の相関がある。また、この図 6 において浸漬 40 日後と 60 日後の間で無機炭素濃度の低下が見られる。

#### 3) pH、Eh の変化および pH と Sm 濃度との関係

図 7 はそれぞれの地下水試料の採取時から試験終了までの pH の変化を示すものである。横軸の Initial は地下水採取時を示す。また、0 時間の値は  $\text{SmOHCO}_3$  を溶解させる前の地下水をグローブボックス中でろ過したときの値である。

釜石鉱山で採取した花こう岩中降水系地下水は pH が次第に低下する傾向を示す。浸漬 40 日後と 60 日後の間ではケース 1 の場合やや上昇するが、ケース 2 ではほぼ横ばいで

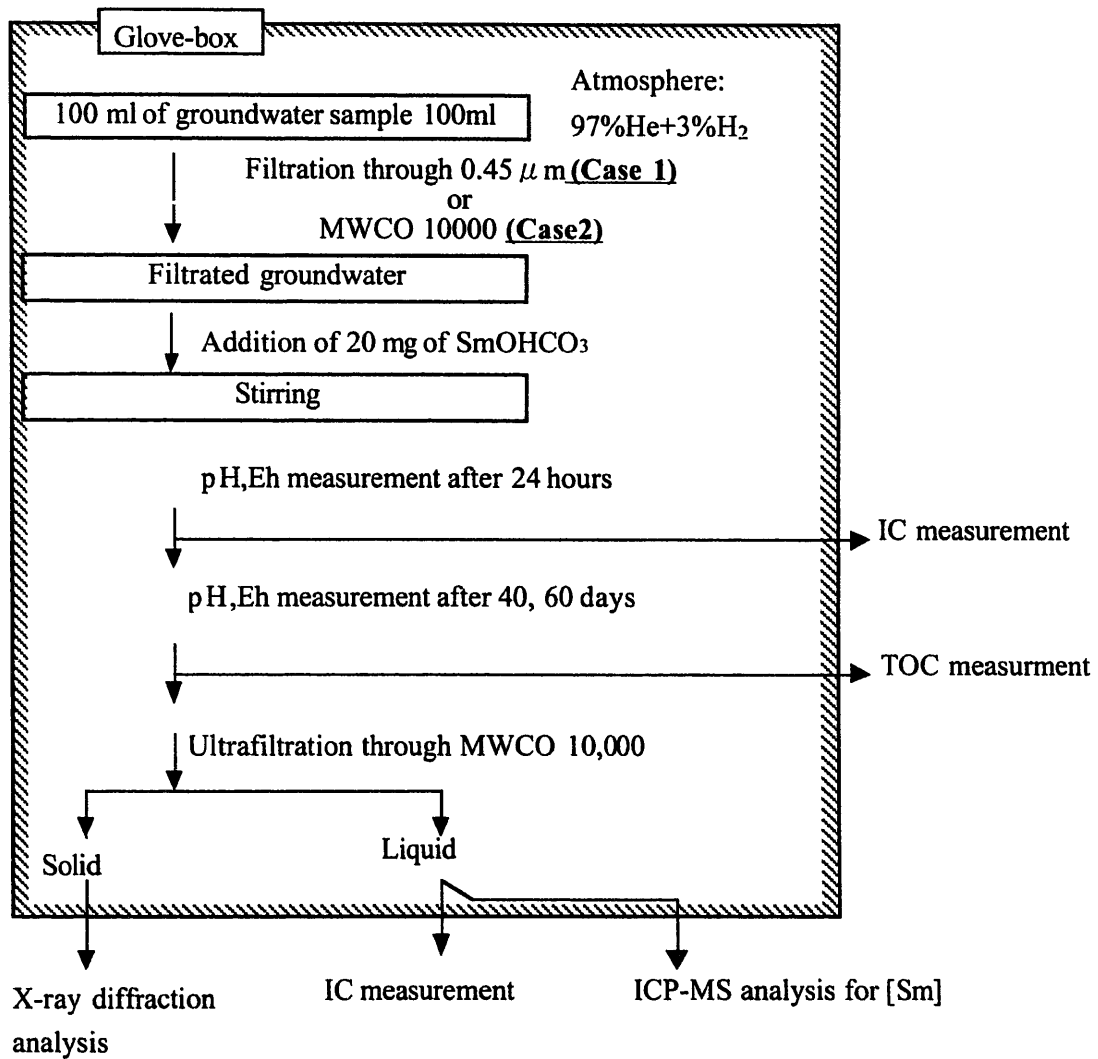


図 3 Sm 溶解度測定試験の手順

表 2 地下水試料の pH, Eh 値の変化

	花崗岩中降水系		堆積岩中降水系		堆積岩中海水系	
	pH	Eh*	pH	Eh*	pH	Eh*
地下水採取時	10.21	50	9.60	-300	7.86	-50
雰囲気ボックス 搬入時	9.60	-225	9.26	-89	7.92	-146
0.45 $\mu$ m ろ過時	9.60	-236	9.85	-180	8.93	-197
浸漬 1 日後	9.90	-154	9.22	-216	8.33	-208
	9.91	-154	9.22	-201	8.33	-202
	9.80	-228	9.23	-219	8.33	-208
40 日後	8.80	-	9.20	-	8.75	-
	8.82	-	9.19	-	8.73	-
	8.82	-	9.22	-	8.34	-
60 日後	8.99	-221	9.39	-205	8.76	-239
	8.98	-215	9.40	-202	8.73	-236
	8.99	-217	9.43	-202	8.41	-208
分画分子量 10000 ろ過時	9.48	-187	9.33	-205	8.35	-197
浸漬 1 日後	9.36	-238	9.29	-240	8.36	-216
	9.36	-238	9.30	-241	8.35	-214
	9.36	-241	9.30	-241	8.36	-213
40 日後	8.64	-	9.18	-	8.74	-
	8.75	-	9.15	-	8.55	-
	8.65	-	9.23	-	8.17	-
60 日後	8.62	-243	9.11	-265	8.78	-249
	8.64	-240	9.13	-265	8.48	-237
	8.68	-242	9.23	-266	8.25	-223

\*Eh ; vs SHE (mV)

表 3 溶解度試験結果 (ケース 1)

初期条件*				浸漬 40 日後				浸漬 60 日後			
pH	Sm 添加量**	TOC	IC	pH	[Sm]	TOC	IC	pH	[Sm]	TOC	IC
花こう岩中降水系											
9.60	20.0 [mg]	8.1 [ppm]	5.8 [ppm]	8.80	2.0E-07 [mol/l]	8.0 [ppm]	7.7 [ppm]	8.99	7.8E-08 [mol/l]	8.7 [ppm]	7.8 [ppm]
	20.0			8.82	7.5E-07	2.4	7.9	8.98	8.5E-08	3.0	8.1
	20.0			8.82	6.0E-07	2.0	7.7	8.99	8.3E-08	2.8	7.9
堆積岩中降水系											
9.85	20.0	1.2	26.6	9.19	1.8E-08	4.5	23.4	9.39	8.3E-09	4.8	19.5
	20.0			9.20	3.2E-08	1.7	23.3	9.40	5.0E-09	2.6	18.7
	20.0			9.22	1.5E-08	1.7	23.6	9.43	3.3E-09	2.1	20.2
堆積岩中海水系											
8.93	20.0	49.5	191	8.75	3.2E-07	48.1	28.6	8.76	6.7E-09	52.8	15.6
	20.0			8.75	1.5E-06	52.1	26.1	8.73	6.7E-09	50.6	14.7
	20.0			8.34	3.4E-07	49.0	61.7	8.41	1.0E-08	54.1	66.5

\* 雰囲気ボックス内でろ過直後に測定

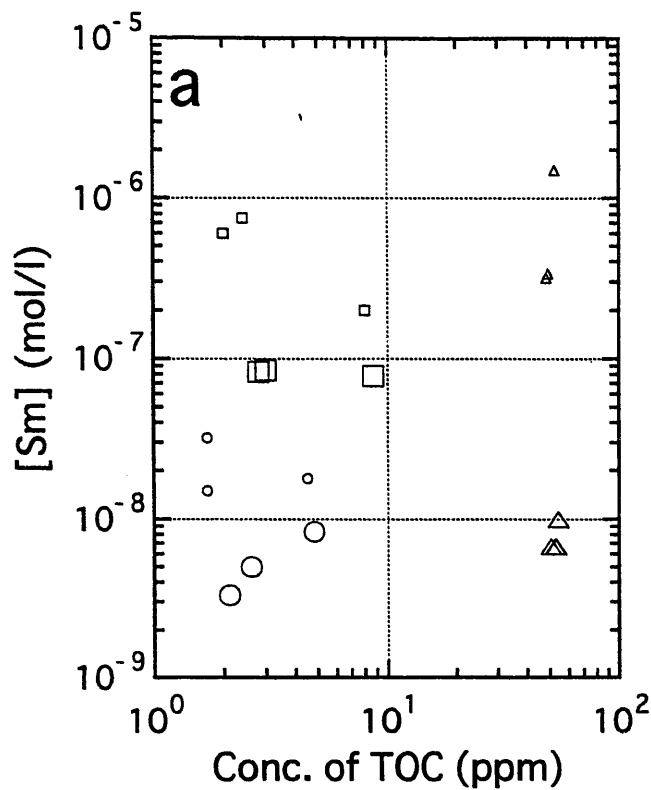
\*\* SmOHCO<sub>3</sub>(cr)として添加

表 4 溶解度試験結果 (ケース 2)

初期条件*				浸漬 40 日後				浸漬 60 日後			
pH	Sm 添加量**	TOC	IC	pH	[Sm]	TOC	IC	pH	[Sm]	TOC	IC
花こう岩中降水系											
9.48	20.0 [mg]	8.1 [ppm]	5.9 [ppm]	8.64	1.7E-09 [mol /l]	8.6 [ppm]	7.0 [ppm]	8.62	3.3E-09 [mol /l]	8.7 [ppm]	6.6 [ppm]
	20.0			8.75	3.3E-09	8.9	7.2	8.64	5.0E-09	8.8	7.1
	20.0			8.65	3.3E-09	8.8	7.4	8.68	1.7E-09	9.4	7.6
堆積岩中降水系											
9.33	20.0	6.1	20.5	9.18	3.3E-09	6.7	20.8	9.11	2.7E-08	6.5	20.9
	20.0			9.15	3.3E-09	6.6	21.3	9.13	3.3E-09	7.3	21.6
	20.0			9.23	8.3E-09	6.8	20.8	9.23	3.3E-09	6.6	21.4
堆積岩中海水系											
8.35	20.0	53.5	124	8.75	3.8E-08	61.1	51.4	8.78	4.2E-08	59.1	35.6
	20.0			8.55	5.2E-08	62.5	67.6	8.48	5.5E-08	59.0	52.2
	20.0			8.17	7.2E-08	62.8	94.4	8.25	6.8E-08	63.1	69.0

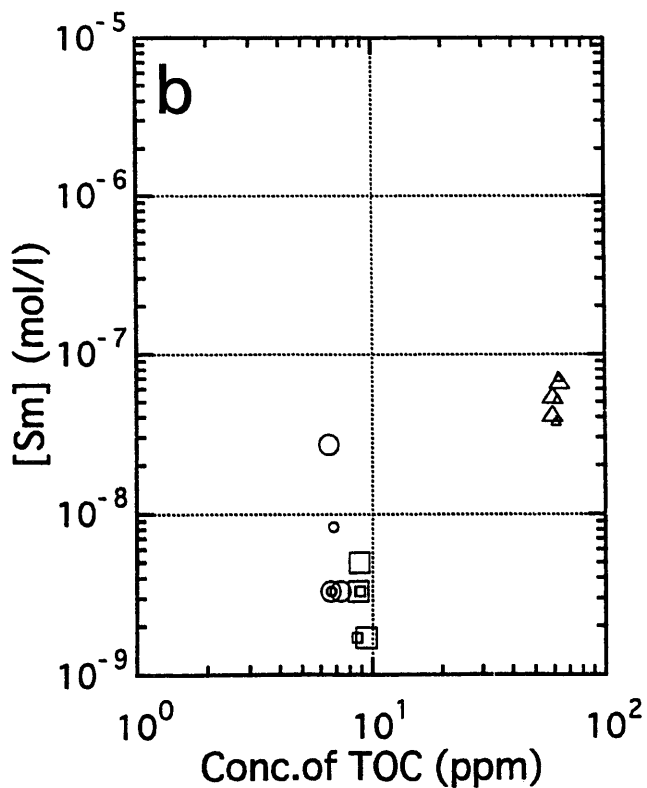
\* 雰囲気ボックス内でろ過直後に測定

\*\* SmOHCO<sub>3</sub>(cr)として添加



ケース 1

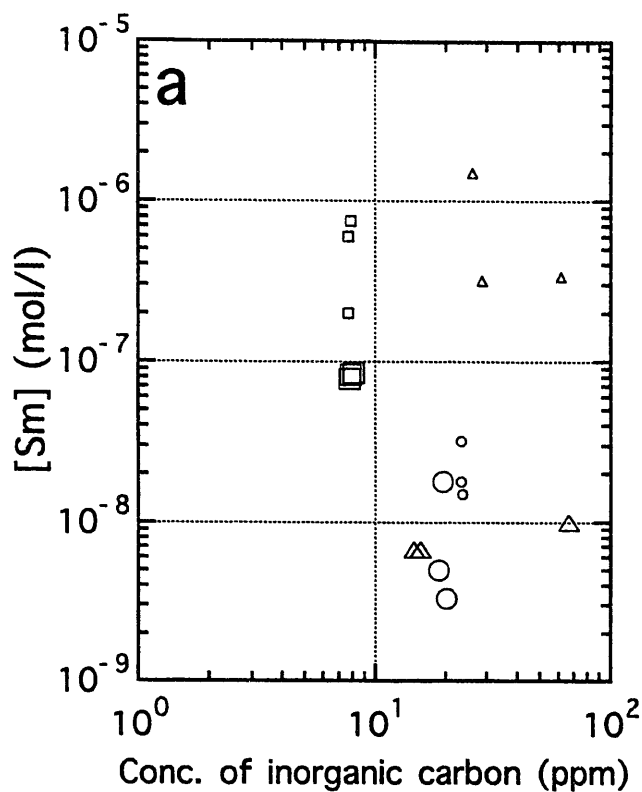
- 花こう岩中降水系40日後
- 花こう岩中降水系60日後
- 堆積岩中降水系40日後
- 堆積岩中降水系60日後
- △ 堆積岩中海水系40日後
- △ 堆積岩中海水系60日後



ケース 2

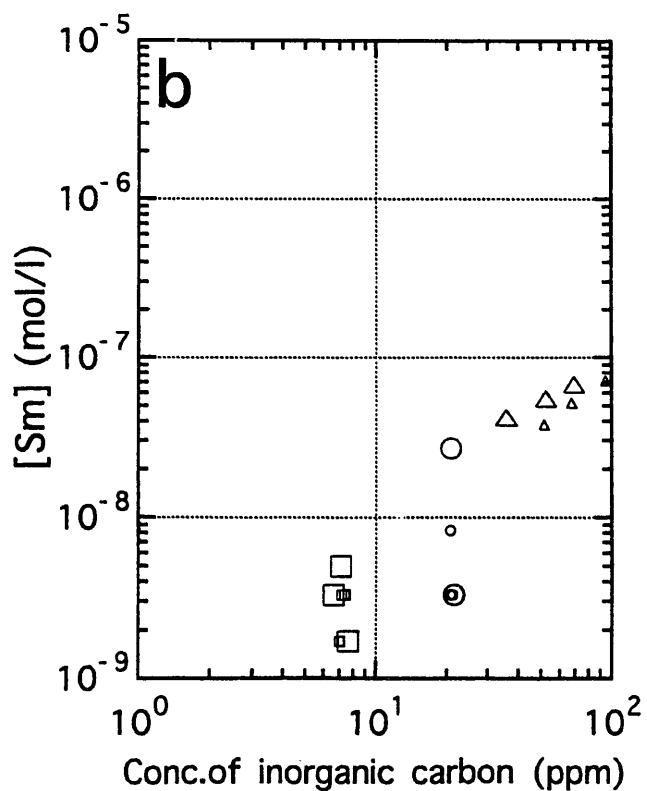
- 花こう岩中降水系40日後
- 花こう岩中降水系60日後
- 堆積岩中降水系40日後
- 堆積岩中降水系60日後
- △ 堆積岩中海水系40日後
- △ 堆積岩中海水系60日後

図 4 全有機炭素 (TOC) 濃度と Sm 濃度との関係



ケース 1

- 花こう岩中降水系40日後
- 花こう岩中降水系60日後
- 堆積岩中降水系40日後
- 堆積岩中降水系60日後
- △ 堆積岩中海水系40日後
- △ 堆積岩中海水系60日後



ケース 2

- 花こう岩中降水系40日後
- 花こう岩中降水系60日後
- 堆積岩中降水系40日後
- 堆積岩中降水系60日後
- △ 堆積岩中海水系40日後
- △ 堆積岩中海水系60日後

図 5 無機炭素 (IC) 濃度とSm濃度との関係



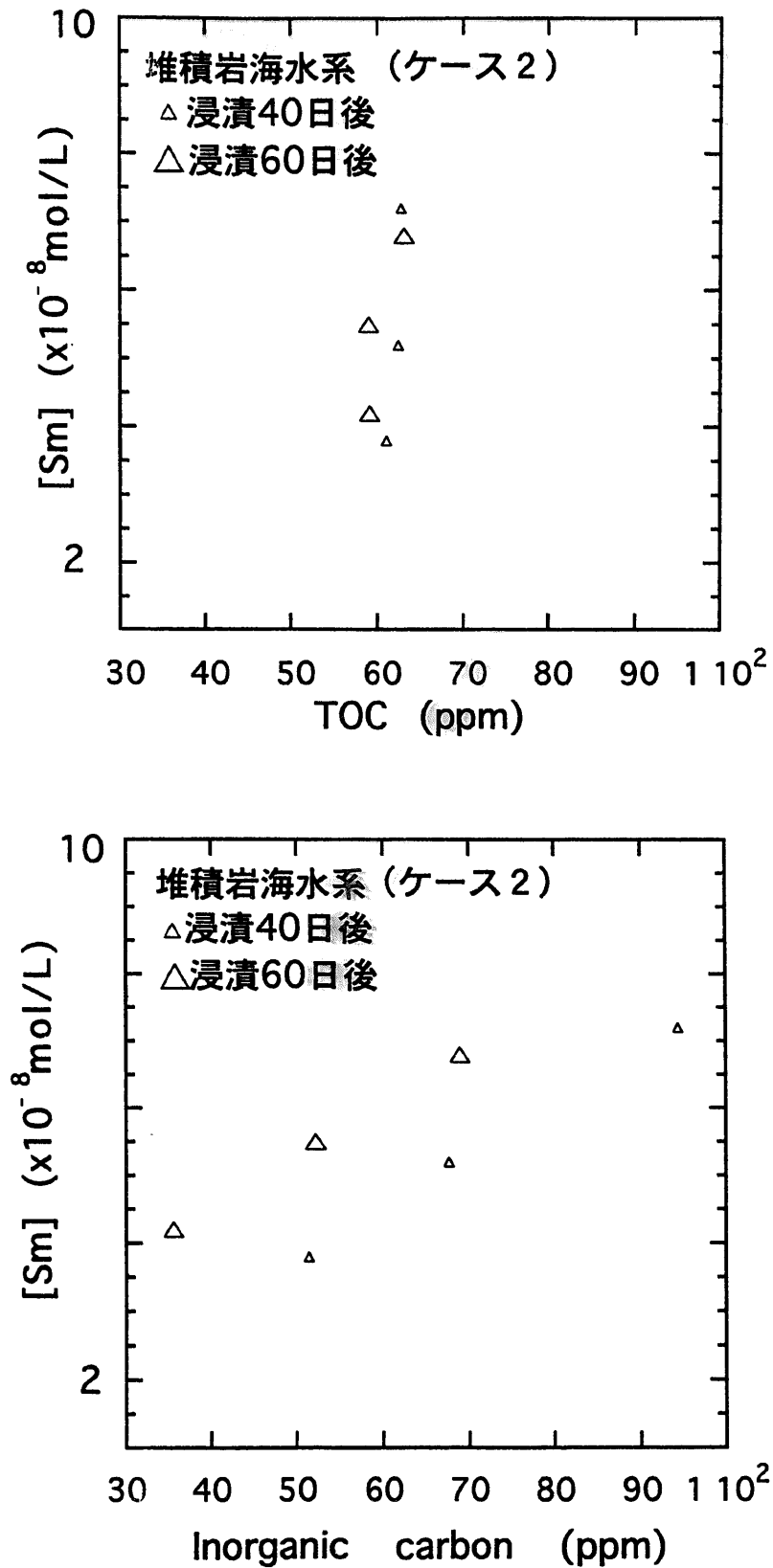


図6 堆積岩中海水系 (茂原) 地下水における全有機炭素 (TOC) 濃度または無機炭素濃度 (IC) とSm濃度との関係 (図4bおよび5bの拡大図、ケース2)

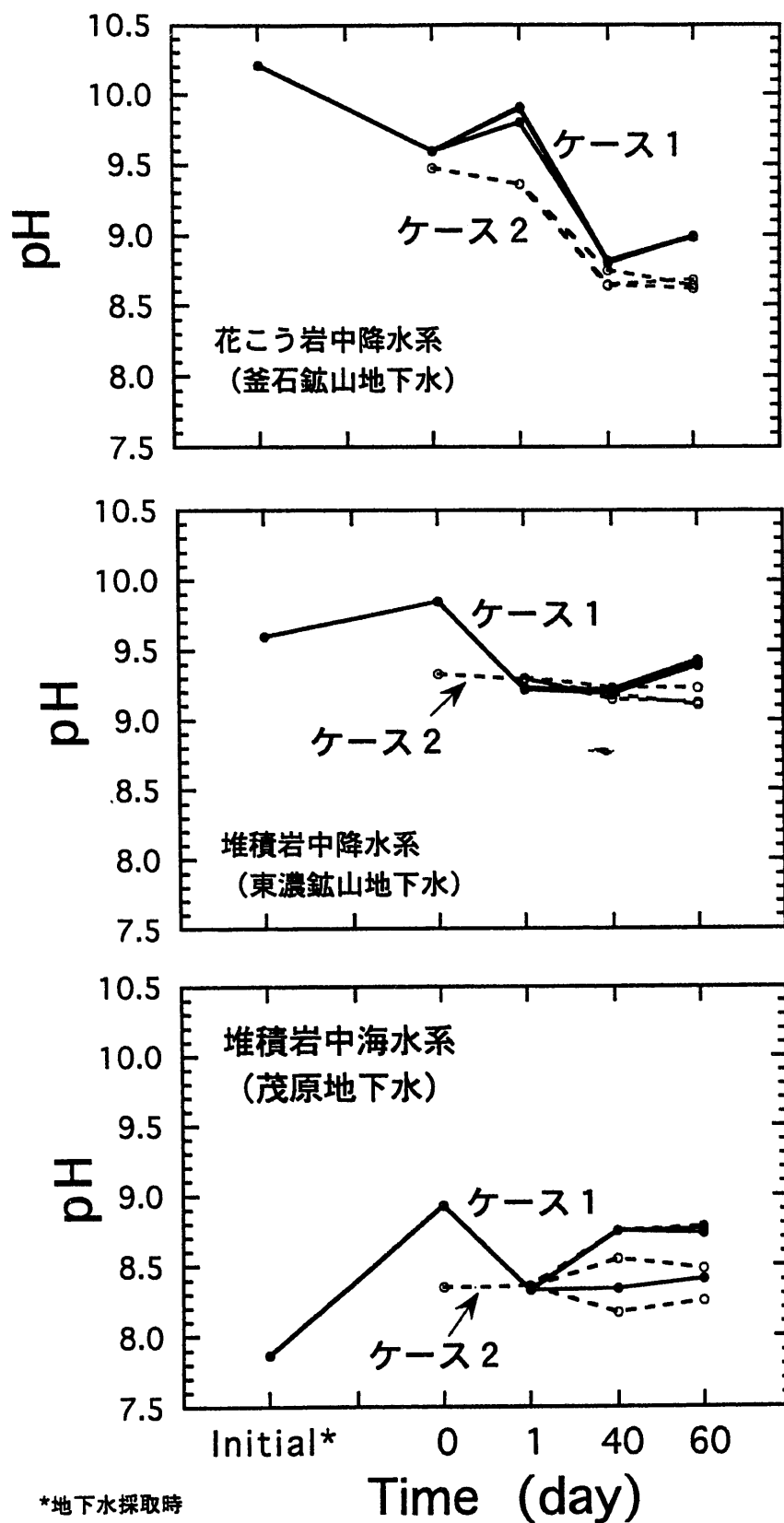


図7 地下水試料のpHの経時変化

ある。

東濃鉱山の堆積岩中降水系地下水では全体として pH はやや低下かほぼ横ばいの傾向を示す。

茂原の堆積岩中海水系地下水では浸漬後の pH はケース 1 ではやや上昇か横ばい、ケース 2 ではほぼ横ばいである。Kamei et al.<sup>6)</sup> はこの地下水の pH は炭酸塩鉱物（方解石およびシテライト）の解離反応が支配していると考察している。

## 2.2.2 固相の X 線回折分析

浸漬後の固相を X 線回折スペクトルで同定した。その結果、花こう岩中降水系地下水中および堆積岩中降水系地下水中の固相は、SmOHCO<sub>3</sub>(cr)のみであることが明らかになった（図 8~11）。しかし、堆積岩中海水系地下水中には SmOHCO<sub>3</sub>(cr)のほかに少量の CaCO<sub>3</sub>(cr)および NaCl(cr)がみとめられた（図 12, 13）。

## 3. 考察

### 3.1 固相中の NaCl(cr)、CaCO<sub>3</sub>(cr)について

表 1 に示すように堆積岩中海水系地下水は海水に類似した化学組成を有する。NaCl(cr)は試料調整の過程での蒸発にともなって析出したものと考えられる。また、Kamei et al.<sup>6)</sup>によれば、この地下水中の水素イオン濃度（pH=7.86）は、地層中の炭酸塩鉱物と平衡にある。地下水試料のグローブボックスへの搬入による溶存 CO<sub>2</sub>の脱ガスと pH の上昇にともない、浸漬中に方解石(CaCO<sub>3</sub>)(cr)の析出が生じたものと考えられる。

### 3.2 地球化学計算による地下水中の Sm 溶解度と溶存化学種

試料とした各地下水中の Sm 溶解度とその溶存化学種を熱力学的地球化学計算コード (PHREEQE<sup>10)</sup>)を用いて計算し（添付資料参照）、それらの値を実験によって得た実測値と比較した。なお、浸漬後 40 日と 60 日の間で Sm 濃度の値に大きな隔たりがなく、溶液中ではほぼ平衡に達していると考えられる、ケース 2 について検討した。この計算において考慮する化学反応式とおのおのの平衡定数  $\beta$  を表 5 に、また、各地下水に仮定した化学種とその濃度を表 6 に示す。これらの計算において Sm と有機物との反応は考慮していない。

図 14 に示す結果によれば、花こう岩中降水系の場合、Sm 溶解度は地球化学計算結果とよく一致し、主な溶存化学種は SmCO<sub>3</sub><sup>+</sup>となった。同様に、堆積岩中降水系の場合も、ほとんどの試料の Sm 濃度が計算による溶解度によく一致し、溶存化学種は Sm(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub><sup>-</sup>が示唆された。堆積岩中海水系では Sm 濃度は pH に対して負の直線関係にあり、その傾きは計算による溶解度とよく一致している。実測値は計算値よりもやや高い値を示すがその開きは 1 桁以内である。このとき、浸漬 40 日後と 60 日後の Sm 濃度のデータ間に有意の差はなく、したがって、ほぼ飽和に達しているものとすれば、炭酸イオン以外に溶解度を増大させる因子を考える必要がある。Kamei et al.<sup>6)</sup>によると、この地下水中

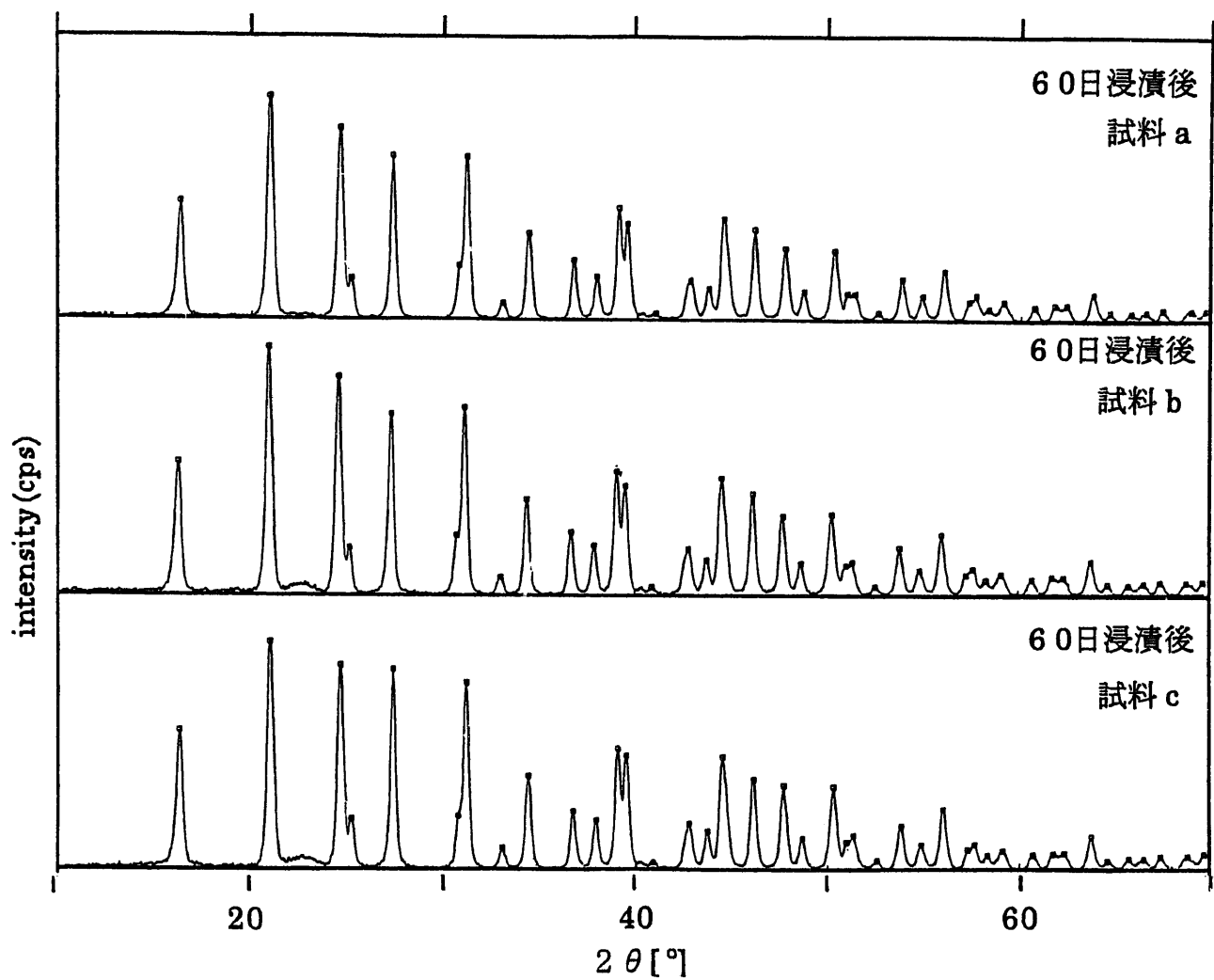


図8 花こう岩中降水系地下水（釜石鉱山地下水）中に  $\text{SmOHCO}_3(\text{cr})$  を浸漬させた後に分離回収した固相の X 線回折パターン（ケース 1）

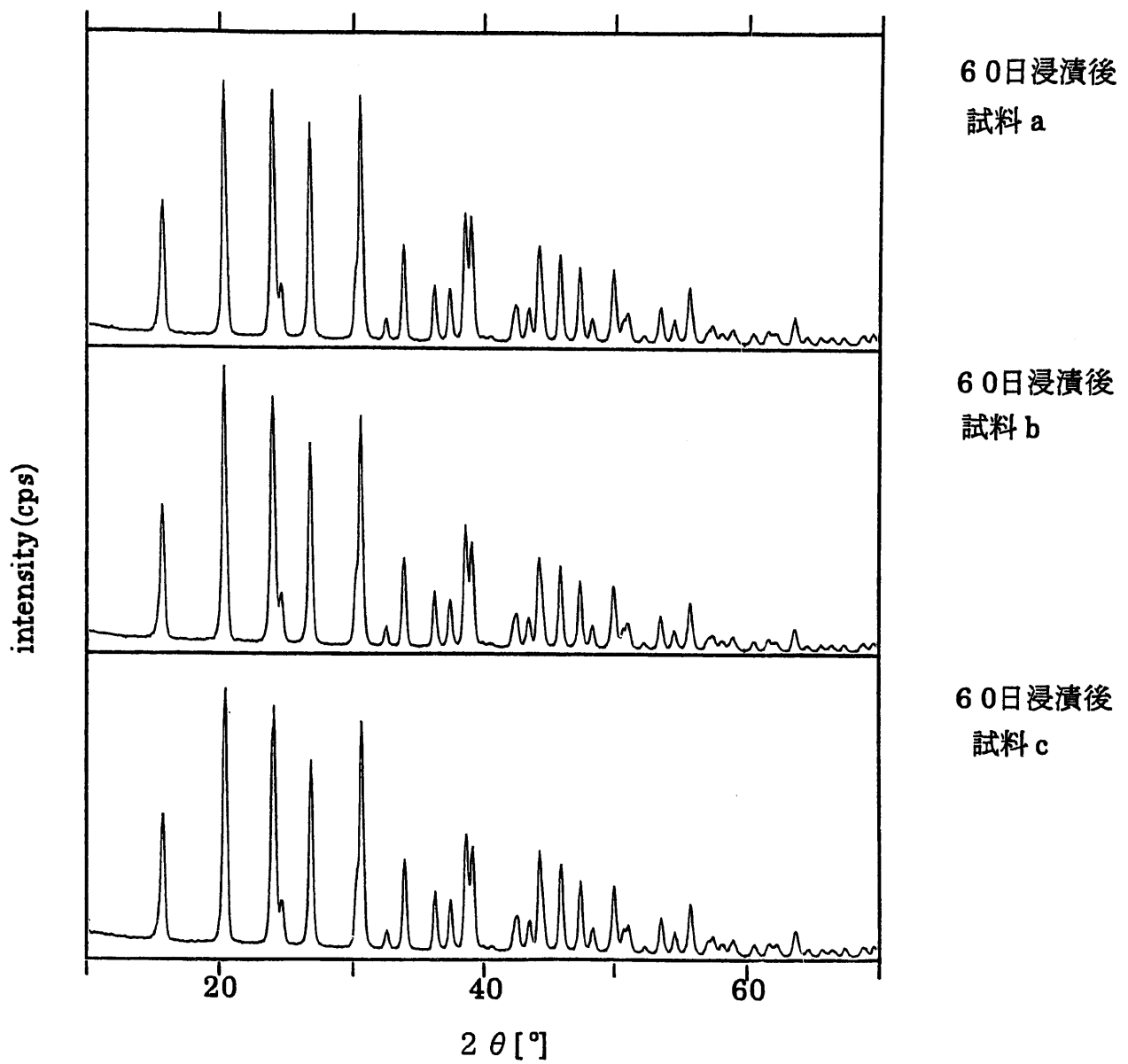


図9 花こう岩中降水系地下水（釜石鉾山地下水）中に  $\text{SmOHCO}_3(\text{cr})$  を浸漬させた後に分離回収した固相の X 線回折パターン（ケース 2）

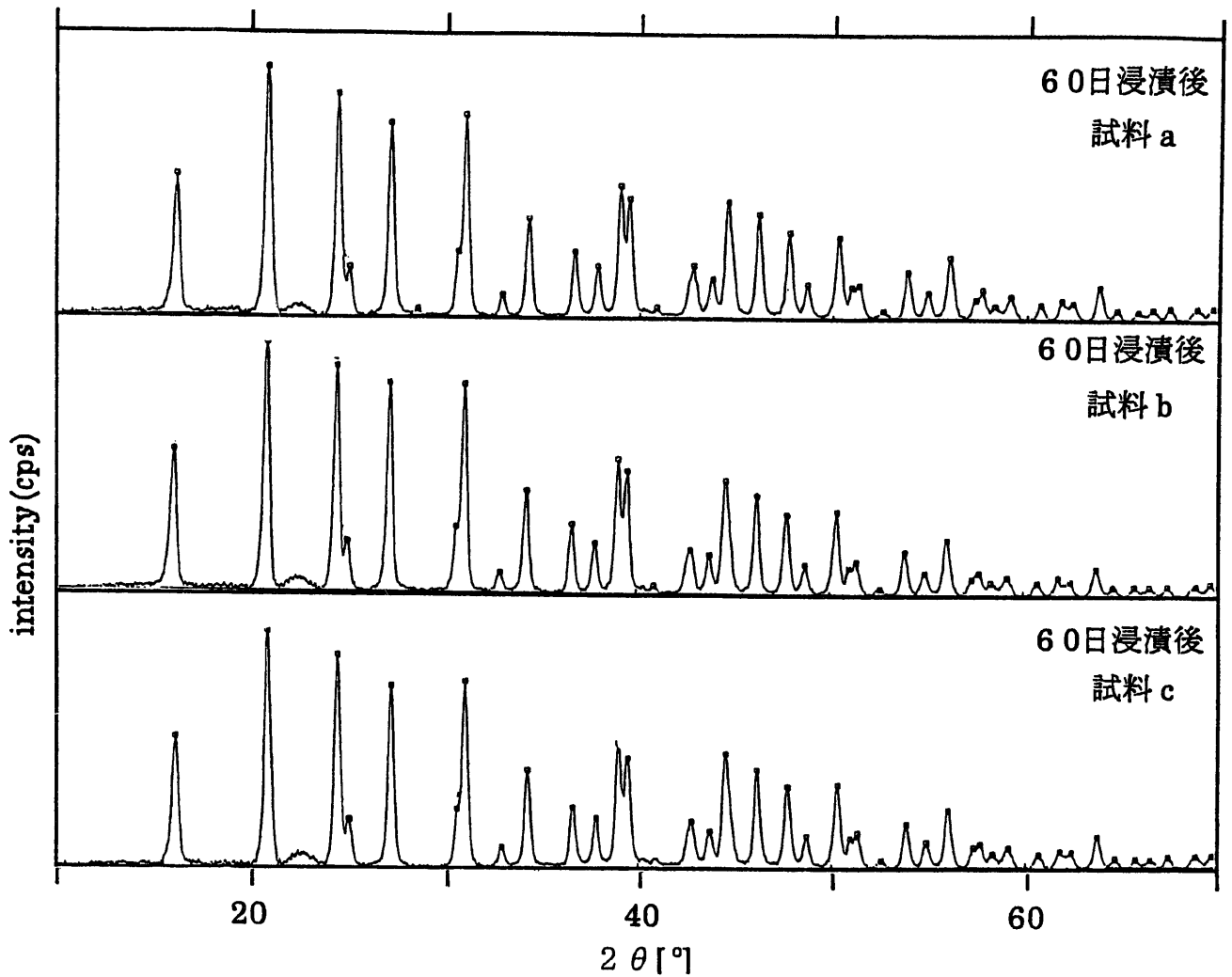


図 10 堆積岩中降水系地下水（東濃鉦山地下水）中に  $\text{SmOHCO}_3(\text{cr})$  を浸漬させた後に分離回収した固相の X 線回折パターン（ケース 1）

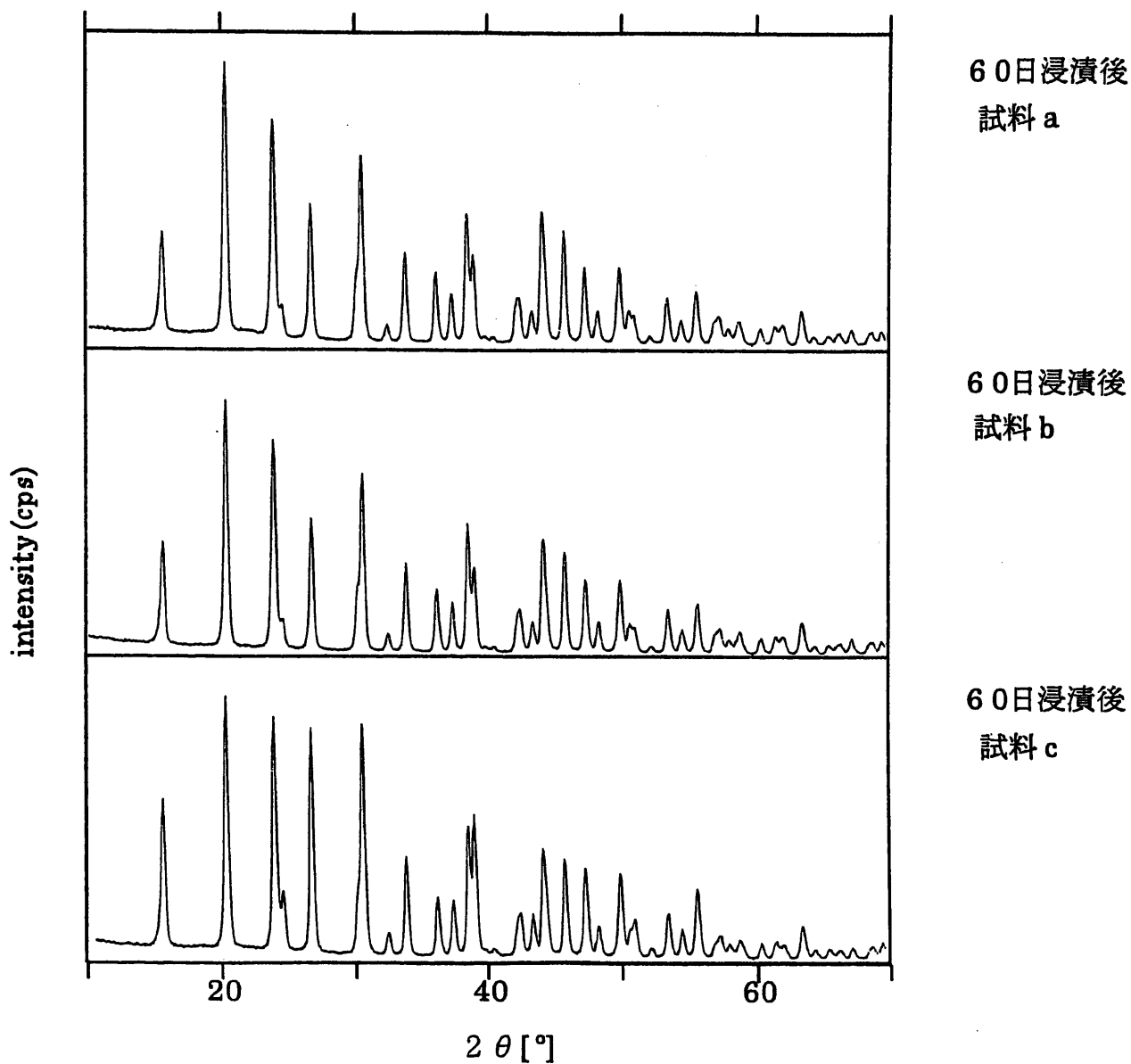


図 11 堆積岩中降水系地下水（東濃鉦山地下水）中に  $\text{SmOHCO}_3(\text{cr})$  を浸漬させた後に分離回収した固相の X 線回折パターン（ケース 2）

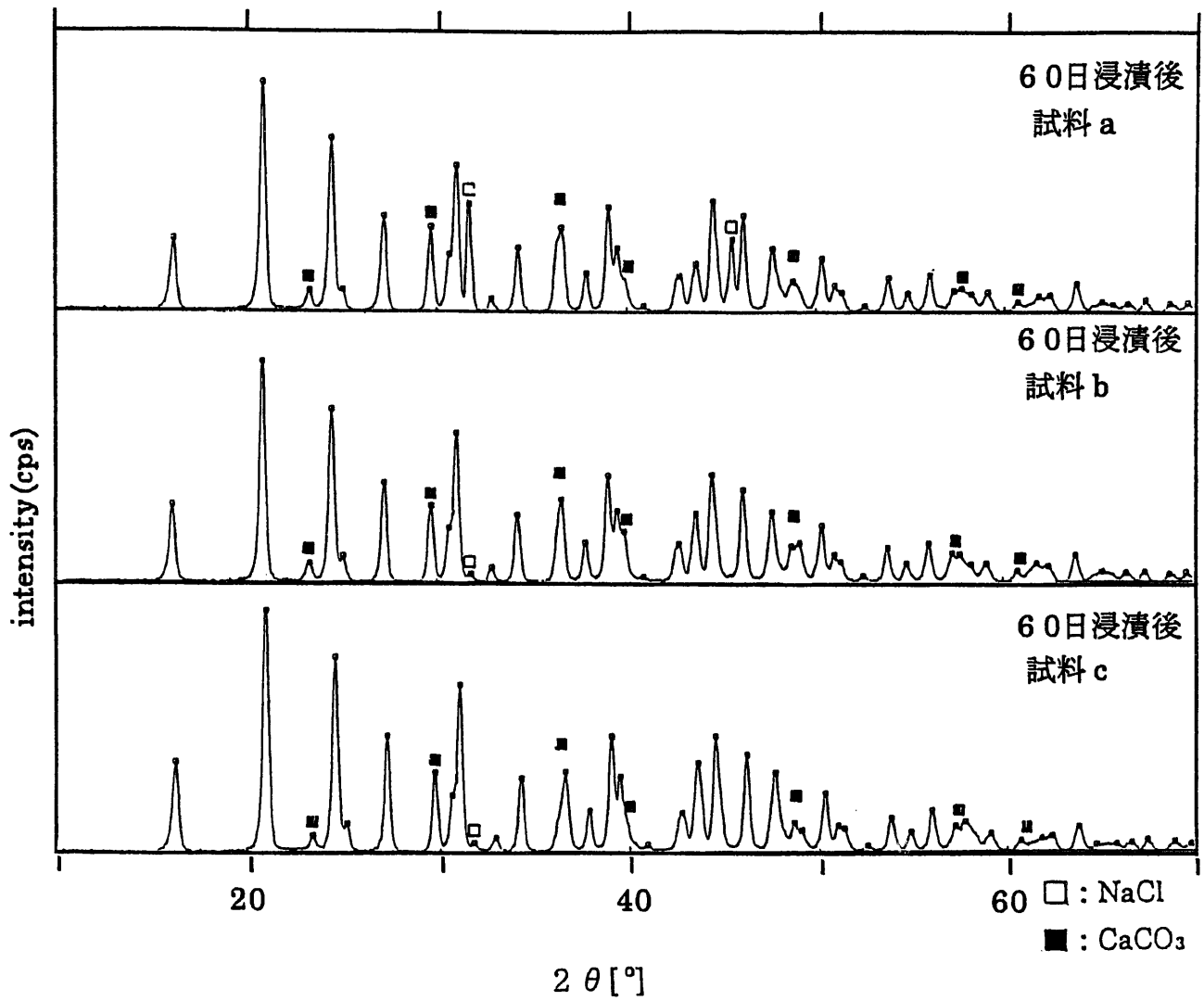


図 12 堆積岩中海水系地下水（茂原地下水）中に  $\text{SmOHCO}_3(\text{cr})$  を浸漬させた後に分離回収した固相の X 線回折パターン（ケース 1）



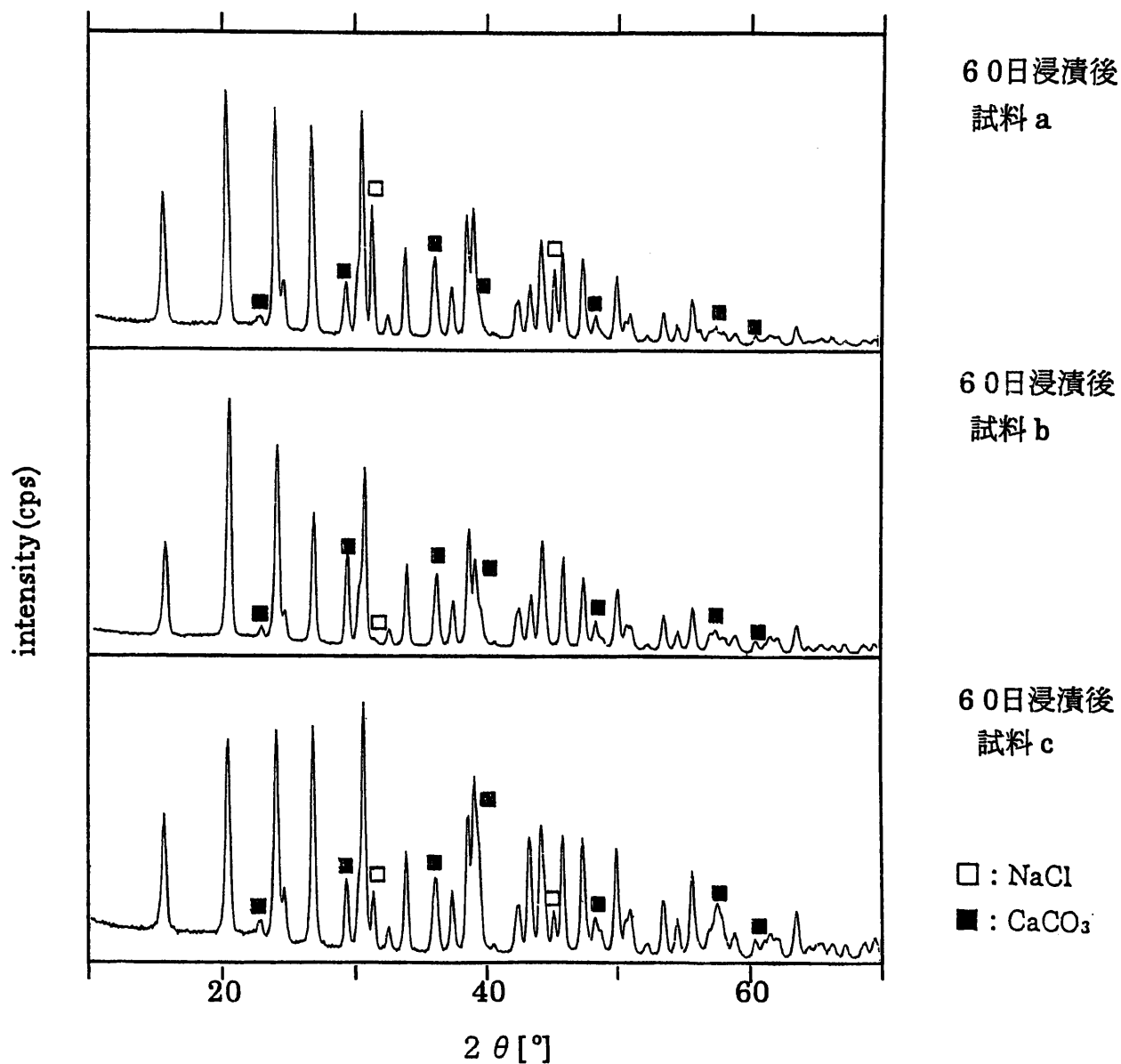


図 13 堆積岩中海水系地下水（茂原地下水）中に  $\text{SmOHCO}_3(\text{cr})$  を浸漬させた後に分離回収した固相の X 線回折パターン（ケース 2）

表5 Sm および炭酸化学種に関する熱力学データ

化学種	反応式	log $\beta$
SmOHCO <sub>3</sub>	$\text{SmOHCO}_3 \rightarrow \text{Sm}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O} - 3\text{H}^+$	-8.69 <sup>11)</sup>
Sm(CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> <sup>3-</sup>	$\text{Sm}^{3+} + 3\text{CO}_3^{2-} \rightarrow \text{Sm}(\text{CO}_3)_3^{3-}$	
Sm(CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> <sup>-</sup>	$\text{Sm}^{3+} + 2\text{CO}_3^{2-} \rightarrow \text{Sm}(\text{CO}_3)_2^-$	13.2 <sup>11)</sup>
SmCO <sub>3</sub> <sup>+</sup>	$\text{Sm}^{3+} + \text{CO}_3^{2-} \rightarrow \text{SmCO}_3^+$	8.64 <sup>11)</sup>
Sm(OH) <sub>3</sub>	$\text{Sm}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O} - 3\text{H}^+ \rightarrow \text{Sm}(\text{OH})_3$	
Sm(OH) <sub>3</sub> (aq)	$\text{Sm}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O} - 3\text{H}^+ \rightarrow \text{Sm}(\text{OH})_3(\text{aq})$	-24.9 <sup>11)</sup>
Sm(OH) <sub>2</sub> <sup>+</sup>	$\text{Sm}^{3+} + 2\text{H}_2\text{O} - 2\text{H}^+ \rightarrow \text{Sm}(\text{OH})_2^+$	-21.7 <sup>11)</sup>
SmOH <sup>2+</sup>	$\text{Sm}^{3+} + \text{H}_2\text{O} - \text{H}^+ \rightarrow \text{SmOH}^{2+}$	-7.2 <sup>11)</sup>
SmSO <sub>4</sub> <sup>+</sup>	$\text{Sm}^{3+} + \text{SO}_4^{2-} \rightarrow \text{SmSO}_4^+$	3.54 <sup>12)</sup>
SmF <sub>2</sub> <sup>+</sup>	$\text{Sm}^{3+} + \text{F}^- \rightarrow \text{SmF}_2^+$	
SmF <sub>2</sub> <sup>2+</sup>	$\text{Sm}^{3+} + 2\text{F}^- \rightarrow \text{SmF}_2^{2+}$	
SmNO <sub>3</sub> <sup>2+</sup>	$\text{Sm}^{3+} + \text{NO}_3^{2-} \rightarrow \text{SmNO}_3^{2+}$	
CO <sub>2</sub> (aq)	$\text{CO}_3^{2-} + 2\text{H}^+ - \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2(\text{aq})$	16.681 <sup>13)</sup>
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	$\text{CO}_3^{2-} + \text{H}^+ \rightarrow \text{HCO}_3^-$	10.327 <sup>13)</sup>
H <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	$\text{CO}_3^{2-} + 2\text{H}^+ \rightarrow \text{H}_2\text{CO}_3$	16.681 <sup>10)</sup>

表6 地球化学計算のための入力条件

化学種	花こう岩中降水系	堆積岩中降水系	堆積岩中海水系
Ca <sup>2+</sup>	3.23	1.7	229
Mg <sup>2+</sup>		0.03	315
Na <sup>+</sup>	10.9	45.5	10700
K <sup>+</sup>	0.31	0.38	3020
Fe <sup>2+</sup>			1.43
H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub> (aq)	6.267		112
Cl <sup>-</sup>	1.57	1.02	18800
CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup>	39.65	97.65	70
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	20.2	0.862	22.3
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>		0.04	
B(OH) <sub>3</sub> (aq)			70.91
F <sup>-</sup>	0.13	4.55	
Br <sup>-</sup>			136
I <sup>-</sup>			131

単位：ppm

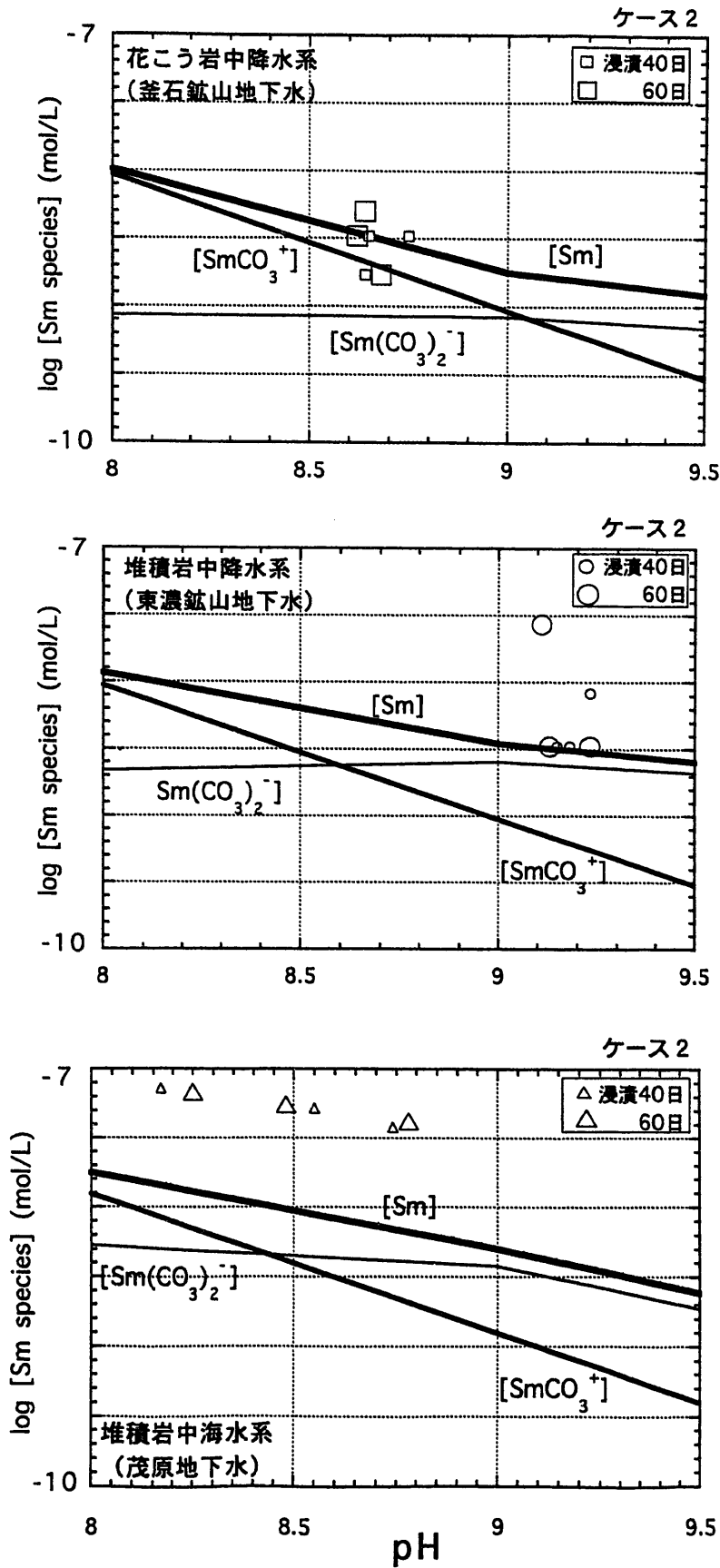


図 14 地下水の pH と Sm 濃度との関係。実線は地球化学計算によって求めた各々の地下水中の Sm 化学種の溶解度変化を示す。

の全有機炭素濃度は69~100ppm, フミン酸は47~123ppm,フルボ酸は66~178ppmである。酢酸などのさらに低分子量の有機化合物については濃度のデータがないが、資源として回収されるほどこの地下水にはメタンが溶存していることを考えれば、分解の進んだ低分子量の有機化合物の存在は十分に考えられる。Sm 溶解度を増大させる因子として、分子量の比較的小さな(分画分子量<10000)有機酸などが寄与していることが考えられる。

この堆積岩中海水系地下水中の溶存有機酸のキャラクタリゼーションとSm との反応に関する検討は今後の課題である。

#### 4. まとめ

実地下水に含まれる有機物がSm の溶解度に及ぼす影響を把握するため、異なる濃度の有機物を含む花こう岩中降水系、堆積岩中降水系、堆積岩中海水系の3種類の地下水に、SmOHCO<sub>3</sub>(cr)を溶解させてSm 濃度を測定した。

その結果、初期条件での全有機炭素(TOC)濃度が1.2~8.1ppmの花こう岩中降水系および堆積岩中降水系地下水では、Sm の溶解度は、有機物の存在しない系について計算されたSmOHCO<sub>3</sub>(cr)の溶解度とほぼ一致し、SmCO<sub>3</sub><sup>+</sup>, Sm(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub><sup>-</sup>の生成が溶解度を支配しているものと考えられた。一方、堆積岩中海水系地下水では初期条件でのTOC濃度が49.5~53.5ppmであり、SmOHCO<sub>3</sub>(cr)の溶解度は有機物の存在しない系での計算値よりも数倍高い値となった。この理由の一つとして、分画分子量<10000の有機酸とSm との錯体生成が考えられた。

#### 5. 謝辞

本研究は(株)日立製作所への委託研究として実施したもので、個々に示した実験データは同社の笹平朗博士、深澤哲生博士、鴨志田守氏、堀川豊彦氏によるものである。また、地球化学計算にあたって、原子カシステム(株)の吉田泰氏より協力を得た。サイクル機構の佐藤治夫博士には有益な助言を得た。以上の方々に深謝申し上げる。

#### 6. 文献

- 1) 菅野卓治：フミン物質の性質と核種移行への影響 *放射性廃棄物研究* 1(2), 131-162 (1995).
- 2) Kim, J. I., Rhee, D. S. and Buckau, G. : Complexation of Am(III) with humic acids of different origin. *Radiochimica Acta* 52/53, 49-55 (1991).
- 3) 朽山修：フミン酸の酸解離特性 *放射性廃棄物研究* 1(2), 187-198 (1995).
- 4) 笹本広、瀬尾俊弘、油井三和、佐々木康雄：釜石鉱山における地下水の地球化学的研究(1) *動燃技術資料 TN8410* 96-203 (1996).
- 5) Seo, T. and Yoshida, H.: Natural analogue studies of the Tono uranium deposit in Japan. *Proceedings of 5th CEC natural analogue working group meeting and Alligator River Analogue Project (ARAP) Final workshop, Toledo, Spain, Oct.5-9, 1992, Maravic, H. and*

- Smellie, J. (eds.), 141-146 (1992)
- 6) Kamei, G., Yusa, Y., and Arai, T.: A natural analogue of nuclear waste glass in compacted bentonite. *Applied Geochemistry* **14** (1999, in press).
  - 7) A. N. Christensen : Hydrothermal preparation of rare earth hydroxy-carbonates. The crystal structure of  $\text{NdOHCO}_3$ . *Acta Chemica Scandinavia* **27**, 2973-2982 (1973).
  - 8) 澁谷早苗、牧野仁史、吉川英樹、油井三和：水酸化炭酸サマリウム ( $\text{SmOHCO}_3$ )の溶解度測定と加水分解平衡定数の算出 *動燃技術資料* **TN8410** 95-031 (1995).
  - 9) 金持真理子、佐藤治夫、笹平朗：フミン酸およびベントナイトに由来する有機物のサマリウム溶解度に及ぼす影響評価 *動燃技術資料* (1999, 公開準備中).
  - 10) Parkhurst, D.L., Thorstensen, D.C., and Plummer, L.N.: PHREEQE-a computer program for geochemical calculations. U.S. Geological Survey, Water-resources investigations 80-90 (1980).
  - 11) 澁谷早苗：3価ランタニドの溶解度測定, *動燃技報* **97**, 67-75 (1996).
  - 12) Cross, J. E., Ewart, F. T. and Tweed, C. J.: Thermochemical modelling with application to nuclear waste processing and disposal, AERE-R12324 (1987).
  - 13) Silva, R. J., Bidoglio, G., Robouch, P. B., Wanner, H. and Puigdomenech, I.: Chemical thermodynamics of Americium, OED/NEA, Elsevier (1995).

7. 添付資料 計算資料

DATA READ FROM DISK

ELEMENTS

SPECIES

LOOK MIN

198-03-10 Sm(OH)<sub>3</sub>->kground water

50120000 0 0 0

SOLUTION 1

GROUND

8	0	2	9	4.99	25	1			
4	3.230D+00	6	1.090D+01	7	3.100D-01	13	6.267D+00	14	1.570D+00
15	3.965D+01	16	2.020D+01	20	1.300D-01				

\*\*\*\* INPUT UNKNOWN

MINERALS

SMOHCO3	4	4	-8.7	0.00E+00	0	0	
35	1	3	1	1	-1	15	1
		0	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0	0

1SOLUTION NUMBER 1

GROUND WATER

TOTAL MOLALITIES OF ELEMENTS

ELEMENT	MOLALITY	LOG MOLALITY
CA	8.075664D-05	-4.0928
NA	4.739520D-04	-3.3243
K	7.949372D-06	-5.0997
SI	6.528350D-05	-4.1852
CL	4.486083D-05	-4.3481
C	6.608877D-04	-3.1799
S	2.104756D-04	-3.6768
F	6.842668D-06	-5.1648

---DESCRIPTION OF SOLUTION---

PH	=	9.0000
PE	=	4.9860
ACTIVITY H2O	=	1.0000
IONIC STRENGTH	=	0.0012
TEMPERATURE	=	25.0000
ELECTRICAL BALANCE	=	-5.4289D-04
THOR	=	3.9064D-03
TOTAL ALKALINITY	=	7.0457D-04
ITERATIONS	=	9

## DISTRIBUTION OF SPECIES

I	SPECIES	Z	MOLALITY	LOG MOLAL	ACTIVITY	LOG ACT	GAMMA	LOG GAM
1	H+	1	1.04E-09	-8.984	1.00E-09	-9	9.64E-01	-0.016
2	E-	-1	1.03E-05	-4.986	1.03E-05	-4.986	1.00E+00	0
3	H2O(L)	0	1.00E+00	0	1.00E+00	0	1.00E+00	0
4	CA+2	2	7.49E-05	-4.126	6.41E-05	-4.193	8.57E-01	-0.067
6	NA+	1	4.73E-04	-3.325	4.55E-04	-3.342	9.62E-01	-0.017
7	K+	1	7.94E-06	-5.1	7.63E-06	-5.117	9.61E-01	-0.017
13	H4SIO4(A)	0	5.62E-05	-4.25	5.62E-05	-4.25	1.00E+00	0
14	CL-	-1	4.49E-05	-4.348	4.31E-05	-4.365	9.61E-01	-0.017
15	CO3-2	-2	3.27E-05	-4.485	2.80E-05	-4.552	8.57E-01	-0.067
16	SO4-2	-2	2.08E-04	-3.683	1.78E-04	-3.75	8.56E-01	-0.068
20	F-	-1	6.84E-06	-5.165	6.57E-06	-5.182	9.61E-01	-0.017
62	OH-	-1	1.04E-05	-4.985	9.95E-06	-5.002	9.61E-01	-0.017
64	CAOH+	1	1.68E-08	-7.774	1.62E-08	-7.791	9.62E-01	-0.017
88	SIO2(OH)	-2	4.75E-10	-9.323	4.06E-10	-9.391	8.55E-01	-0.068
89	SIO(OH)3	-1	9.05E-06	-5.043	8.70E-06	-5.06	9.62E-01	-0.017
90	SI2O3(OH)	-2	3.70E-10	-9.432	3.16E-10	-9.501	8.55E-01	-0.068
91	SI2O2(OH)	-1	2.61E-08	-7.584	2.51E-08	-7.601	9.62E-01	-0.017
92	SI3O6(OH)	-3	6.33E-15	-14.199	4.45E-15	-14.352	7.03E-01	-0.153
93	SI3O5(OH)	-3	7.97E-14	-13.099	5.60E-14	-13.252	7.03E-01	-0.153
94	SI4O8(OH)	-4	9.34E-18	-17.03	4.99E-18	-17.302	5.34E-01	-0.273
95	SI4O7(OH)	-3	4.49E-16	-15.348	3.15E-16	-15.501	7.03E-01	-0.153
96	SI4O3(OH)	-3	1.78E-25	-24.749	1.25E-25	-24.902	7.03E-01	-0.153
111	CO2(AQ)	0	1.35E-06	-5.871	1.35E-06	-5.871	1.00E+00	0
112	HCO3-	-1	6.22E-04	-3.207	5.98E-04	-3.223	9.62E-01	-0.017
113	H2CO3	0	1.34E-06	-5.872	1.34E-06	-5.871	1.00E+00	0
115	CACO3	0	3.02E-06	-5.52	3.02E-06	-5.52	1.00E+00	0
116	CAHCO3+	1	5.09E-07	-6.294	4.89E-07	-6.31	9.62E-01	-0.017
119	NACO3-	-1	2.46E-07	-6.609	2.37E-07	-6.626	9.62E-01	-0.017
120	NAHCO3	0	1.53E-07	-6.814	1.53E-07	-6.814	1.00E+00	0
132	HSO4-	-1	1.80E-11	-10.746	1.73E-11	-10.763	9.62E-01	-0.017
133	CASO4	0	2.32E-06	-5.634	2.32E-06	-5.634	1.00E+00	0
135	NASO4-	-1	4.22E-07	-6.375	4.06E-07	-6.392	9.62E-01	-0.017
136	KSO4-	-1	9.99E-09	-8	9.61E-09	-8.017	9.62E-01	-0.017
178	HF(AQ)	0	9.95E-12	-11.002	9.95E-12	-11.002	1.00E+00	0
179	HF2-	-1	1.87E-16	-15.727	1.80E-16	-15.744	9.62E-01	-0.017
184	HF AQ	0	9.72E-12	-11.012	9.72E-12	-11.012	1.00E+00	0
185	HF2-	-1	2.52E-16	-15.598	2.43E-16	-15.615	9.62E-01	-0.017
186	CAF+	1	3.82E-09	-8.418	3.67E-09	-8.435	9.62E-01	-0.017

---- LOOK MIN IAP ----



PHASE	LOG IAP	LOG KT	LOG IAP/KT
CALCITE	-8.745	-8.4834	-0.2616
ARAGONIT	-8.745	-8.3387	-0.4063
GYP SUM	-7.9429	-4.6039	-3.339
ANHYDRIT	-7.9429	-4.38	-3.5629
FLUORITE	-14.5572	-10.96	-3.5972
SIL GEL	-4.2503	-2.7	-1.5503
SIL GLAS	-4.2503	-3.02	-1.2303
LIME, QU	13.8071	32.7	-18.8929
CHALCEDO	-4.2503	-3.49	-0.7603
QUARTZ	-4.2503	-3.78	-0.4703
SILICA H	-18.2363	-2.47	-15.7663
CO2 GAS	-5.8714	-1.4653	-4.4061
O2 GAS	-30.136	-2.96	-27.176
H2 GAS	-31.122	-3.15	-27.972
H2S GAS	-92.957	-1	-91.957
CH4 GAS	-93.3691	-2.86	-90.5091
SILI(AM)	-4.2503	-2.71	-1.5403
H(G)	-13.986	35.61	-49.596
H2(G)	-27.972	0	-27.972
O(G)	27.972	82.15	-54.178
O2(G)	55.944	83.09	-27.146
H2O(G)	0	1.5	-1.5
CA(CR)	-14.1649	96.85	-111.0149
CA(G)	-14.1649	122.08	-136.2449
CAO(CR)	13.8071	32.7	-18.8929
NA(CR)	-8.328	45.89	-54.218
NA(G)	-8.328	59.38	-67.708
K(CR)	-10.1033	49.49	-59.5933
K(G)	-10.1033	60.09	-70.1933
SI(CR)	-60.1943	62.93	-123.1243
SI(G)	-60.1943	133.97	-194.1643
SIO2(QUA	-4.2503	-4	-0.2503
CL(G)	0.6207	41.44	-40.8193
CL2(G)	1.2415	45.98	-44.7385
HCL(G)	-13.3653	6.29	-19.6553
C(CR)	-78.4961	-32.15	-46.3461
C(G)	-78.4961	85.45	-163.9461
CO(G)	-50.5242	-14.64	-35.8842
CO2(G)	-22.5522	-18.15	-4.4022
S(CR)	-105.666	-35.84	-69.826
S(G)	-105.666	5.63	-111.296
S2(G)	-211.3319	-57.71	-153.6219

SO2(G)	-49.722	-478.35	428.628
H2S(G)	-133.638	-41.7	-91.938
F(G)	-0.1962	60.23	-60.4262
F2(G)	-0.3923	98.64	-99.0323
HF(G)	-14.1822	1.07	-15.2522
SIF4(G)	-60.9789	-15.33	-45.6489

1STEP NUMBER 1

0-----

TOTAL MOLALITIES OF ELEMENTS

-----

ELEMENT	MOLALITY	LOG MOLALITY
CA	8.075664D-05	-4.0928
NA	4.739520D-04	-3.3243
K	7.949372D-06	-5.0997
SI	6.528350D-05	-4.1852
CL	4.486083D-05	-4.3481
C	6.608877D-04	-3.1799
S	2.104756D-04	-3.6768
F	6.842668D-06	-5.1648

----PHASE BOUNDARIES----

PHASE	DELTA PHASE*	LOG IAP	LOG KT	LOG IAP/KT
SMOHCO3	2.773403D-08	-7.1980	-7.1980	0.0000

\* NEGATIVE DELTA PHASE INDICATES PRECIPITATION  
AND POSITIVE DELTA PHASE INDICATES DISSOLUTION.

---- LOOK MIN IAP ----

PHASE	LOG IAP	LOG KT	LOG IAP/KT
CALCITE	-8.745	-8.4834	-0.2616
ARAGONIT	-8.745	-8.3387	-0.4063
GYPHUM	-7.9429	-4.6039	-3.339
ANHYDRIT	-7.9429	-4.38	-3.5629
FLUORITE	-14.5572	-10.96	-3.5972
SIL GEL	-4.2503	-2.7	-1.5503
SIL GLAS	-4.2503	-3.02	-1.2303
LIME, QU	13.8071	32.7	-18.8929
CHALCEDO	-4.2503	-3.49	-0.7603
QUARTZ	-4.2503	-3.78	-0.4703
SILICA H	-8.2124	-2.47	-5.7424

CO2 GAS	-5.8715	-1.4653	-4.4061
O2 GAS	-70.2317	-2.96	-67.2717
H2 GAS	-11.0742	-3.15	-7.9242
H2S GAS	-12.7656	-1	-11.7656
CH4 GAS	-13.1778	-2.86	-10.3178
SM(OH)3	13.8622	16.4	-2.5378
SM2(SO4)	-37.5257	-8.33	-29.1957
SM2(CO3)	-39.9322	-26.75	-13.1822
SILI(AM)	-4.2503	-2.71	-1.5403
SMOHCO3	-8.69	-8.69	0
H(G)	-3.9621	35.61	-39.5721
H2(G)	-7.9242	0	-7.9242
O(G)	7.9242	82.15	-74.2258
O2(G)	15.8483	83.09	-67.2417
H2O(G)	0	1.5	-1.5
CA(CR)	5.883	96.85	-90.967
CA(G)	5.883	122.08	-116.197
CAO(CR)	13.8071	32.7	-18.8929
NA(CR)	1.696	45.89	-44.194
NA(G)	1.696	59.38	-57.684
K(CR)	-0.0794	49.49	-49.5694
K(G)	-0.0794	60.09	-60.1694
SI(CR)	-20.0986	62.93	-83.0286
SI(G)	-20.0986	133.97	-154.0686
SIO2(QUA	-4.2503	-4	-0.2503
CL(G)	-9.4032	41.44	-50.8432
CL2(G)	-18.8064	45.98	-64.7864
HCL(G)	-13.3653	6.29	-19.6553
C(CR)	-38.4005	-32.15	-6.2505
C(G)	-38.4005	85.45	-123.8505
CO(G)	-30.4763	-14.64	-15.8363
CO2(G)	-22.5522	-18.15	-4.4022
S(CR)	-45.5225	-35.84	-9.6825
S(G)	-45.5225	5.63	-51.1525
S2(G)	-91.0449	-57.71	-33.3349
SO2(G)	-29.6742	-478.35	448.6758
H2S(G)	-53.4466	-41.7	-11.7466
F(G)	-10.2201	60.23	-70.4501
F2(G)	-20.4402	98.64	-119.0802
HF(G)	-14.1822	1.07	-15.2522
SIF4(G)	-60.9789	-15.33	-45.6489

TOTAL MOLALITIES OF ELEMENTS

```

-----
ELEMENT      MOLALITY      LOG MOLALITY
CA           8.075664D-05  -4.0928
NA           4.739520D-04  -3.3243
K            7.949372D-06  -5.0997
SI           6.528350D-05  -4.1852
CL           4.486083D-05  -4.3481
C            6.609154D-04  -3.1799
S            2.104756D-04  -3.6768
F            6.842668D-06  -5.1648
SM           2.773403D-08  -7.5570

```

----DESCRIPTION OF SOLUTION----

```

PH           =      9.0000
PE           =     -5.0380
ACTIVITY H2O =      1.0000
IONIC STRENGTH =     0.0012
TEMPERATURE =     25.0000
ELECTRICAL BALANCE = -5.4289D-04
THOR        =     3.9065D-03
TOTAL ALKALINITY =     7.0459D-04
ITERATIONS  =      22

```

-----  
DISTRIBUTION OF SPECIES  
-----

I	SPECIES	Z	MOLALITY	LOG MOLAL	ACTIVITY	LOG ACT	GAMMA	LOG GAMMA
1	H+	1	1.04E-09	-8.984	1.00E-09	-9	9.64E-01	-0.016
2	E-	-1	1.09E+05	5.038	1.09E+05	5.038	1.00E+00	0
3	H2O(L)	0	1.00E+00	0	1.00E+00	0	1.00E+00	0
4	CA+2	2	7.49E-05	-4.126	6.41E-05	-4.193	8.57E-01	-0.067
6	NA+	1	4.73E-04	-3.325	4.55E-04	-3.342	9.62E-01	-0.017
7	K+	1	7.94E-06	-5.1	7.63E-06	-5.117	9.61E-01	-0.017
13	H4SIO4(A	0	5.62E-05	-4.25	5.62E-05	-4.25	1.00E+00	0
14	CL-	-1	4.49E-05	-4.348	4.31E-05	-4.365	9.61E-01	-0.017
15	CO3-2	-2	3.27E-05	-4.485	2.80E-05	-4.552	8.57E-01	-0.067
16	SO4-2	-2	2.08E-04	-3.683	1.78E-04	-3.75	8.56E-01	-0.068
20	F-	-1	6.84E-06	-5.165	6.57E-06	-5.182	9.61E-01	-0.017
35	SM+3	3	1.04E-13	-12.984	7.28E-14	-13.138	7.03E-01	-0.153
61	H2 (AQ)	0	8.43E-12	-11.074	8.43E-12	-11.074	1.00E+00	0
62	OH-	-1	1.04E-05	-4.985	9.95E-06	-5.002	9.61E-01	-0.017

64	CAOH+	1	1.68E-08	-7.774	1.62E-08	-7.791	9.62E-01	-0.017
88	SiO2(OH)	-2	4.75E-10	-9.323	4.06E-10	-9.391	8.55E-01	-0.068
89	SiO(OH)3	-1	9.05E-06	-5.043	8.70E-06	-5.06	9.62E-01	-0.017
90	Si2O3(OH)	-2	3.70E-10	-9.432	3.16E-10	-9.501	8.55E-01	-0.068
91	Si2O2(OH)	-1	2.61E-08	-7.584	2.51E-08	-7.601	9.62E-01	-0.017
92	Si3O6(OH)	-3	6.33E-15	-14.198	4.45E-15	-14.352	7.03E-01	-0.153
93	Si3O5(OH)	-3	7.97E-14	-13.099	5.60E-14	-13.252	7.03E-01	-0.153
94	Si4O8(OH)	-4	9.34E-18	-17.029	4.99E-18	-17.302	5.34E-01	-0.273
95	Si4O7(OH)	-3	4.49E-16	-15.348	3.15E-16	-15.501	7.03E-01	-0.153
96	Si4O3(OH)	-3	1.78E-25	-24.749	1.25E-25	-24.902	7.03E-01	-0.153
111	CO2(AQ)	0	1.35E-06	-5.871	1.35E-06	-5.871	1.00E+00	0
112	HCO3-	-1	6.22E-04	-3.207	5.98E-04	-3.223	9.62E-01	-0.017
113	H2CO3	0	1.34E-06	-5.872	1.34E-06	-5.871	1.00E+00	0
114	CH4 (AQ)	0	6.64E-14	-13.178	6.64E-14	-13.178	1.00E+00	0
115	CACO3	0	3.02E-06	-5.52	3.02E-06	-5.52	1.00E+00	0
116	CAHCO3+	1	5.09E-07	-6.294	4.89E-07	-6.31	9.62E-01	-0.017
119	NACO3-	-1	2.46E-07	-6.609	2.37E-07	-6.626	9.62E-01	-0.017
120	NAHCO3	0	1.53E-07	-6.814	1.53E-07	-6.814	1.00E+00	0
124	S-2	-2	2.06E-21	-20.687	1.76E-21	-20.755	8.56E-01	-0.067
125	SO3-2	-2	9.93E-16	-15.003	8.49E-16	-15.071	8.55E-01	-0.068
126	S2O3-2	-2	7.70E-20	-19.113	6.58E-20	-19.182	8.55E-01	-0.068
127	HS-	-1	1.83E-11	-10.736	1.76E-11	-10.754	9.61E-01	-0.017
128	H2S(AQ)	0	1.72E-13	-12.766	1.72E-13	-12.766	1.00E+00	0
129	HSO3-	-1	1.47E-17	-16.834	1.41E-17	-16.851	9.62E-01	-0.017
130	HS2O3-	-1	2.66E-27	-26.575	2.56E-27	-26.592	9.62E-01	-0.017
131	H2SO3(AQ)	0	9.74E-25	-24.011	9.75E-25	-24.011	1.00E+00	0
132	HSO4-	-1	1.80E-11	-10.746	1.73E-11	-10.763	9.62E-01	-0.017
133	CASO4	0	2.32E-06	-5.634	2.32E-06	-5.634	1.00E+00	0
135	NASO4-	-1	4.22E-07	-6.375	4.06E-07	-6.392	9.62E-01	-0.017
136	KSO4-	-1	9.99E-09	-8	9.61E-09	-8.017	9.62E-01	-0.017
178	HF(AQ)	0	9.95E-12	-11.002	9.95E-12	-11.002	1.00E+00	0
179	HF2-	-1	1.87E-16	-15.727	1.80E-16	-15.744	9.62E-01	-0.017
184	HF (AQ)	0	9.72E-12	-11.012	9.72E-12	-11.012	1.00E+00	0
185	HF2-	-1	2.52E-16	-15.598	2.43E-16	-15.615	9.62E-01	-0.017
186	CAF+	1	3.82E-09	-8.418	3.67E-09	-8.435	9.62E-01	-0.017
714	SMOH+2	2	5.38E-12	-11.27	4.59E-12	-11.338	8.55E-01	-0.068
715	SM(OH)2+	1	1.51E-17	-16.821	1.45E-17	-16.838	9.62E-01	-0.017
716	SM(OH)(a)	0	9.16E-12	-11.038	9.17E-12	-11.038	1.00E+00	0
717	SMCO3+	1	9.27E-10	-9.033	8.91E-10	-9.05	9.62E-01	-0.017
718	SM(CO3)2	-1	9.44E-10	-9.025	9.08E-10	-9.042	9.62E-01	-0.017
719	SMSO4+	1	4.67E-14	-13.331	4.49E-14	-13.348	9.62E-01	-0.017