

高レベル廃棄物地層処分の人工バリアシステムによる 地下水の化学的緩衝作用とモデル化

1992年9月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4-33

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所

技術開発推進部・技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technology Management Section Tokai Works Power Reactor and Nuclear
Fuel Development Corporation 4-33, Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation) 1992

高レベル廃棄物地層処分の人工バリアシステムによる 地下水の化学的緩衝作用とモデル化

油井三和^{*1} 柴田雅博^{*1} 牧野仁史^{*1}
佐々木康雄^{*1} 梅木博之^{*2} 石黒勝彦^{*2}
石川博久^{*1} 根山敦史^{*3} 千葉 保^{*4}

要旨

高レベル放射性廃棄物地層処分の性能評価において、ガラス固化体からの核種の溶出や溶解度等の評価を行うためには、人工バリアに浸入した地下水の化学的特性がガラス固化体に到達する迄にどのように変化するかを把握することが重要である。

本報告書は、ニアフィールドにおける地下水の化学的特性の変化を把握するため、地下水と人工バリア材料との化学的相互作用に関するモデル化を行ったものである。

はじめに、ニアフィールドで考えられる地下水と人工バリア材料との反応について、モデル化の考え方の整理を行った。地下水と人工バリア材料との相互作用のうち、ベントナイトの化学的緩衝性については、ベントナイト-水反応試験の結果から、モンモリロナイトのイオン交換反応および随伴鉱物の溶解反応を考慮した平衡モデルを用いることで、概ね説明できることを明らかにした。また、オーバーパック地下水の相互作用では、鉄の安定な腐食生成物との平衡反応を考えることとした。

次に、このモデルを用いて、性能評価上設定した5種類の地下水に対し、処分環境下での地下水-ベントナイト-オーバーパックの相互作用について解析を行い、ニアフィールドにおける地下水の化学的特性の変化を明らかにした。

その結果、化学的特性の変化の程度は人工バリアに浸入する地下水組成に依存するものの、地下水は人工バリア材料との化学的相互作用により緩衝作用を受け、もとの地下水特性と比べ、より高pH側、低Eh側にシフトするとともに、これら性能評価上重要な地下水特性は、もとの地下水特性の幅と比べより小さくなることが明らかになった。

また、ベントナイト及びオーバーパックによる地下水のpH、Ehの緩衝作用について、その緩衝性維持時間に関する予察的検討も実施した。

* 1 東海事業所 環境技術開発部 地層処分開発室
* 2 本社 環境技術開発推進本部 処分研究グループ
* 3 現、コンピューターソフト開発株式会社
* 4 日揮株式会社

目 次

1.はじめに	1
2.ニアフィールドにおける地下水の化学的性質の変化	3
3.モデル化の考え方	5
3.1 地下水	5
3.2 ベントナイト-地下水相互作用	5
3.2.1 Wannerモデルの考え方	8
3.2.2 ベントナイト-水反応実験に対するWannerモデルの適用	9
3.3 オーバーパック腐食生成物と地下水の反応	17
4.ニアフィールドにおける地下水の化学的性質の変遷	18
4.1 解析条件	18
4.2 結果および考察	19
4.3 ニアフィールドにおける地下水の化学的変遷に関する解析のまとめ	38
5.ベントナイトによる地下水の化学的緩衝性維持時間の検討	40
5.1 pHに関する化学的緩衝性維持時間	40
5.1.1 地下水の交換回数	40
5.1.2 地下水の交換時間	43
5.1.3 緩衝性維持時間	48
5.2 Ehに関する化学的緩衝性維持時間	48
5.2.1 ベントナイトの黄鉄鉱(FeS ₂)による溶存酸素の消費	48
5.2.2 オーバーパックから拡散してくる二価鉄イオンによる溶存酸素の消費	53
6.まとめ	58
7.今後の課題	59
8.謝辞	60
9.参考文献	61
付録A-1 ベントナイト中の層間イオン量およびWannerモデルで用いた平衡定数の導出	63
付録A-2 ベントナイト-水反応実験	71
付録A-3 ベントナイト-水反応モデルにおける随伴鉱物影響度評価	73
付録A-4 ベントナイト-水反応実験結果とGrambow モデルの比較	78
付録A-5 FeOOH をオーバーパックの安定な腐食生成物と考えた場合の検討	82
付録B-1 ベントナイト-水反応の評価に使用した熱力学データ	85
付録B-2 Eh緩衝性維持時間計算プログラム	131

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物地層処分の多重バリアシステムに関する性能評価は、「地下水シナリオ」に基づいて行われる。「地下水シナリオ」とは、次の様な想定である。すなわち、地下水が人工バリアを構成する緩衝材中に浸入しオーバーパックを徐々に腐食した後、ガラス固化体に到達する。地下水とガラス固化体との接触により放射性核種が溶出し、緩衝材中、地層中を移行し、生物圏に到達するというものである。図 1.1に対象とする人工バリアシステムの具体的仕様例（五月女ほか 1992a）および「地下水シナリオ」を模式的に示す。

地下水シナリオに従って、処分環境における放射性核種の挙動（ガラス固化体からの溶出と溶解度、緩衝材や地層中の拡散、吸着）を把握する上で、その移行媒体となる地下水の化学を理解することは極めて重要である。特に、酸化還元状態に敏感な核種、炭酸錯体を生成する核種であるアクチニド元素やテクネチウム等は地下水の化学的性質により地下水中での化学種が変化するために、その溶解度や吸着挙動は地下水の化学的性質の影響を受ける。

本報告書は、高レベル放射性廃棄物の地層処分システムの性能評価において重要なニアフィールドにおける地下水の化学的特性の変化を把握するため、地下水と人工バリア材料との化学的相互作用について、モデル化を行ったものである。

モデル化の結果得られた人工バリア空隙水組成は、人工バリアシステムの性能評価における放射性核種の溶解度、ガラス固化体の溶解速度の計算及び核種の吸着特性の評価に反映される。

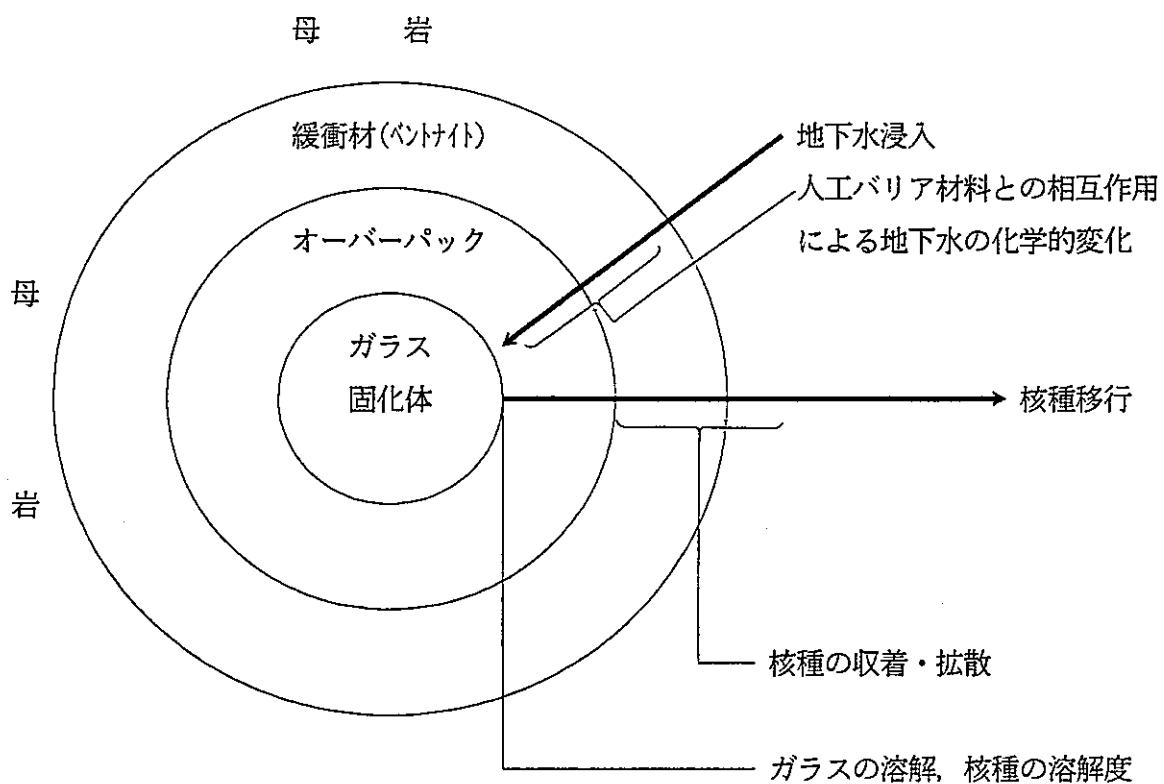
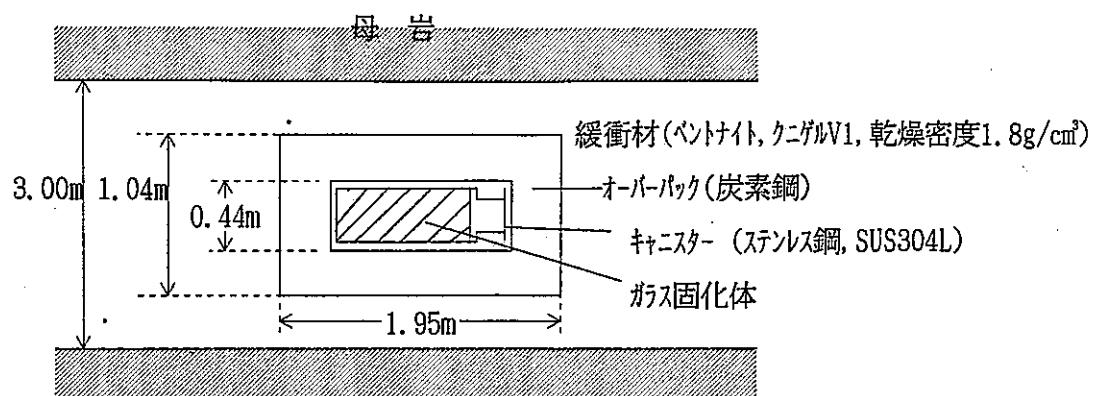


図1.1 人工バリアシステム及び地下水シナリオの概念図

2. ニアフィールドにおける地下水の化学的性質の変化

地下水シナリオによれば、処分場が閉鎖された後、ニアフィールドには岩盤から地下水が浸入し、人工バリアの構成物と相互作用を行う結果、地下水の化学的性質が変化してゆく。この過程において考えられるプロセスは、概念的には図 2.1に示すようなものである。

ニアフィールドの領域を岩体(A)、ベントナイト(B)、オーバーパック(C)、ガラス(D)に分けて考え、処分場閉鎖後の時間の進行に従って、1)掘削・埋め戻しにともない大気中から持ち込まれた O_2 ガスや CO_2 ガスが存在する状態、2)緩衝材は再冠水し、オーバーパックの腐食が開始、継続する状態、3)オーバーパックの腐食が進行し、地下水がガラス固化体に到達した状態、4)ベントナイトの化学的緩衝性能の喪失を仮定した状態、という4つの時間領域を考えることとした。

地下水の化学的性質の変化の過程を図 2.1中の記号と対比させ記述すると以下のとおりである。地下水は岩盤から緩衝材中へ浸入する(A_0)。この際、閉鎖後初期の段階では、処分場の掘削・埋め戻しにともない大気から持ち込まれた空気中の O_2 ガスや CO_2 ガスが存在し、これらの気体の溶解やそれに伴う鉱物の酸化溶解反応が地下水の酸化還元電位(Eh)やpH、炭酸イオン濃度に影響をおよぼすことが考えられる(B_0)。次いで、緩衝材が完全に地下水で飽和された後には気体の溶解の寄与は無く、地下水は緩衝材材料であるベントナイト中のモンモリロナイトのイオン交換反応や随伴鉱物の溶解反応にのみ支配されるものと考えられる(B_1 および B_2 、これらは同じベントナイト空隙水である)。また、ある期間の後にはベントナイトは地下水との接触により、ベントナイトの化学的緩衝性が喪失されることも考えられる(B_3)。緩衝材と平衡となった地下水は、次にオーバーパックと反応を起こす。この際、最終的には安定な腐食生成物と地下水が平衡になるものと考えられる(C_2 および C_3)。また、地下水がガラス固化体と接触した時点では、放射線による酸化やラジカル反応などが考えられ、ガラス溶解や核種の溶解度等に影響を与える可能性がある。

ここで、ガラス固化体に到達する空隙水組成としては、一つは、浸入する地下水(A_0) \Rightarrow ベントナイトによる緩衝効果(B_2) \Rightarrow オーバーパック腐食生成物の平衡(C_2)、またもう一つは、浸入する地下水(A_0) \Rightarrow 緩衝性能を失ったベントナイトとの反応(B_3) \Rightarrow オーバーパック腐食生成物の平衡(C_3)、という2つの過程による地下水の化学的性質の変化が重要となる。

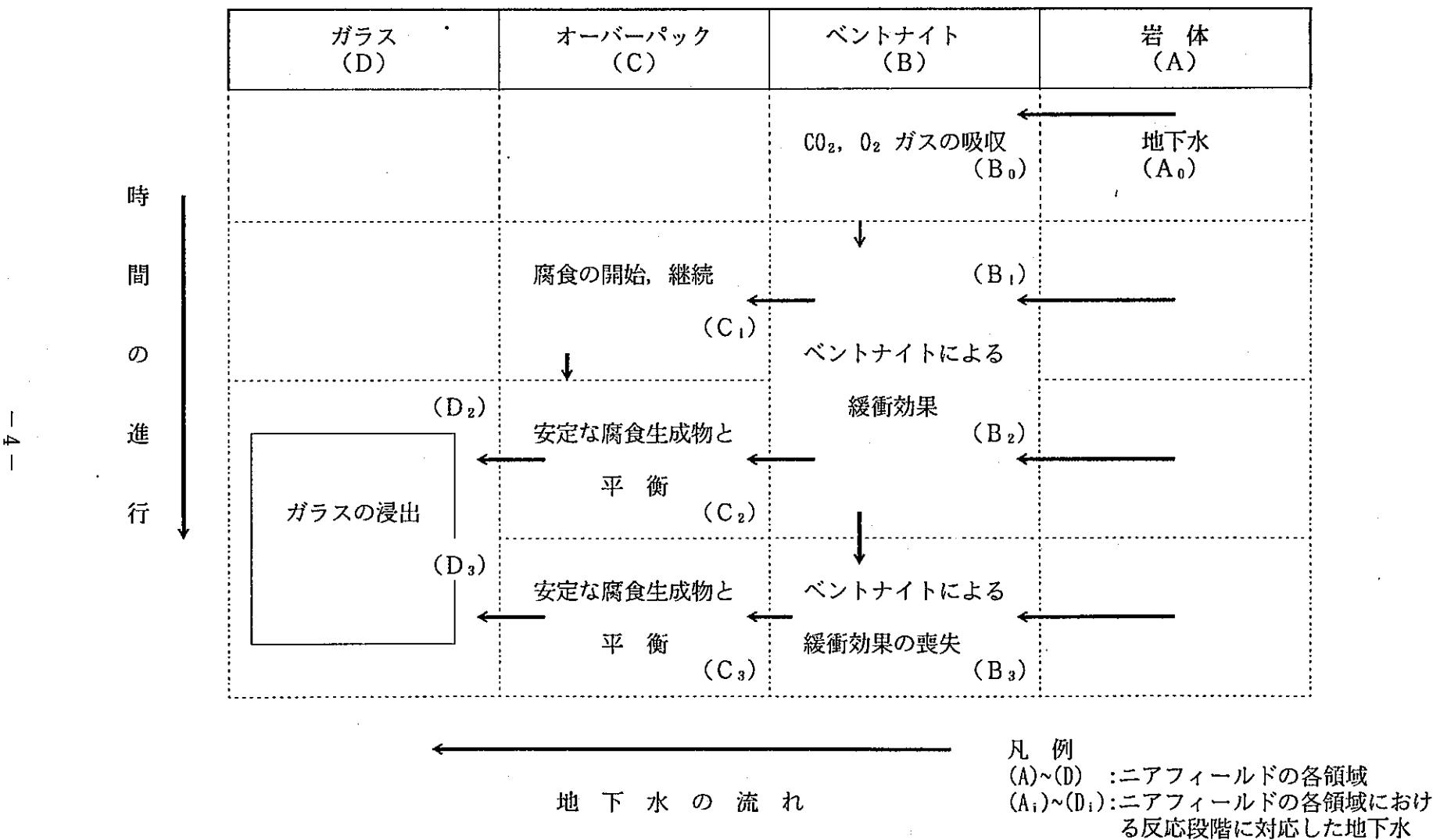


図2.1 ニアフィールドにおける地下水変遷の概念図

3. モデル化の考え方

前章で取り上げた各プロセスに対し、それを記述するためのモデルについて検討を行った。地下水の人工バリア内での滞留時間は長く、人工バリア材料と平衡に達するのに必要となる十分な時間接触していると考えられること、モデルの取扱が比較的容易であること、速度論的解析を行うために必要なデータが不足していることから、ここでは、近似的評価が可能と考えられる平衡論モデルで取り扱うこととした。

3.1 地下水

ニアフィールドに浸入する地下水については、地質環境を幅広く想定した性能評価という我が国のアプローチに基づいて導出されたモデル地下水（油井1992）を想定することとする。これは、降水および海水を起源として、代表的な地球化学的変遷プロセスをモデル化することにより設定されたものである。それによれば、性能評価上の重要な特性であるpH, Eh, イオン濃度を軸として、その現実的な組合せを考え、基本的に、降水系－高pH型、降水系－低pH型、海水系－高pH型および海水系－低pH型の4種類の地下水が考えられている。また仮想的地下水として酸化性の地下水（降水系－酸化性－高pH型）が設定されている。これら5つのタイプの地下水に対して人工バリア中での化学的性質の変化を検討することとする。

3.2 ベントナイト－地下水相互作用

ベントナイトは、モンモリロナイトを主成分とする粘土であり、我が国においても、土木基礎工事用、鑄物生型用等の工業的利用の為に、多く産出されている。モンモリロナイト以外の随伴鉱物として石英、長石、方解石等が含有されている。図1.1に示した人工バリアの仕様例に材料として取り上げたベントナイト製品（山形県月布産、クニゲルV1）の鉱物組成を表3.1に示す。

ベントナイト－地下水相互作用のモデルとして、これまでにWanner(1986), Grambow (1987), Snellmanら(1987), 大江ら(1990)およびArthurら(1991)（固溶体モデル）のモデルが提案されている。各モデルの概要とその比較評価を表3.2に示す。これらの中からモデルの解釈が容易であることやモンモリロナイトのイオン交換反応を取り扱っていること等から Wanner モデルを用いることとし、室内実験とモデルの計算結果を対比することで、その有効性を評価することとした。なお、イオン交換反応の取扱が異なる Grambowモデルについても比較評価を行った。

表3.1 クニゲルV 1の鉱物組成

〔有機物についてはIshikawaら(1990), その他の鉱物については鈴木ら(1992)による。〕

構成鉱物等	含有量
Na-モンモリロナイト	50~55%
石英	30~35%
長石	5~10%
方解石	1~3%
沸石	1~2%以下
沸石(アナルサイト)	1~2%以下
ドロマイ特	1~2%以下
黄鉄鉱	1~2%以下
雲母(黒雲母)	1~2%以下
有機物	0.8%

粒径 250mesh(約60μm)以下が90%以上

〔モンモリロナイトについてはメチレンブルー吸着量による定量, 有機物以外の鉱物はX線回折法による定量, 有機物については重クロム酸法による。〕

表3.2 これまでに提案されているベントナイト-地下水相互作用モデル

モデル 化 の 概 要	平 衡 論 モ デ ル			速度論／平衡論モデル 固 溶 体 モ デ ル ⁴⁾
	Wannerモデル ¹⁾	Grambow モデル ^{2)*}	Snellman モデル ³⁾	
モ デ ル 化 の 概 要	$Z^- + Na^+ = ZNa$, $Z^- + K^+ = ZK$ $2Z^- + Ca^{2+} = Z_2Ca$, $2Z^- + Mg^{2+} = Z_2Mg$ $CaCO_3$ (方解石) + H^+ = $Ca^{2+} + HCO_3^-$ SiO_2 (石英) + $2H_2O$ = $Si(OH)_4(aq)$	Wannerモデルの ①に加え, $Z^- + H^+ = ZH$ を考慮	以下のベントナイト(MX-80)構成成分の溶解平衡を考慮 モンモリロナイト($Na_{0.122}Mg_{0.111}Al_{2.333}Si_{3.667}O_{10}(OH)_2$) マイクロクリン, アルバイト, ドロマイト, 黄鉄鉱, ギブサイト, ホタル石, ハイドロキシアパタイト, 菱マンガン鉱	・スメクタイト等固溶体を構成する ベントナイト成分：各固溶体の端 成分の溶解・沈殿反応で表現 但し端成分を σ とし, 活量, 活量 係数を $a\sigma$, $\lambda\sigma$ とすると $a\sigma = \lambda\sigma \times \sigma$ $\Sigma a\sigma = 1$ (例) モンモリロナイト Na, Ca(75%) バイライト-Na, Ca(25%) ・単純鉱物で表現できるベントナ イト成分：各鉱物の溶解反応で表現
特 徴 ・ 比 較 評 価	・pHは方解石の溶解及びイオン交換により支配される。 ・大気雰囲気では FeS_2 の酸化反応考慮要 ・簡易 ・クニゲルV1の鉱物組成と類似するMX-80の実験データを基本としている。	・pHは H^+ のイオン交 換支配 ・簡易	・Wanner, Grambow 両モデルと異なり仮想イオン交換反応 なし。 ・モンモリロナイトが特定成分	・解説が複雑だが、理論的には最も 基礎がしっかりしている。 ・実験との比較がない。 ・開発途中

1) Wanner H. (1986) Modelling Interaction of Deep Groundwaters with Bentonite and Radionuclide Speciation, EIR-Bericht Nr.589

2) Grambow B. (1987) Nuclear Waste Glass Dissolution: Mechanism, Model and Application, Report to JSS Project Phase IV, JSS-TR-87-02

3) Snellman M. et.al. (1987) Laboratory and Modelling Studies of Sodium Bentonite Groundwater Interaction, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol.84, pp.781-790

4) Arthur R.C. et.al. (1991) Analysis of Buffering in Bentonite-Groundwater Systems, Proceedings of the Second Annual International Conference, Las Vegas, Nevada, pp.1390-1395

*大江ら(1990)のモデルはGrambow モデルに準拠したものである。

3.2.1 Wannerモデルの考え方

Wanner(1986)は、ベントナイトと地下水の相互作用として、大きく次の2つの反応を考えている。

① ベントナイトの主成分であるNa—モンモリロナイトの層間にある Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} のイオン交換反応

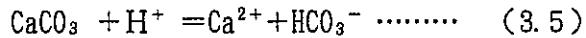
② ベントナイトの随伴鉱物であるケイ酸塩及び炭酸塩鉱物の溶解・沈澱反応

モデルで扱われるモンモリロナイトのイオン交換反応は、 Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} の陽イオン交換であり、次の4つの主要平衡に基づいている。(モンモリロナイト表面のマイナスの電荷を帯びたイオン交換サイトを仮想水溶性化学種 Z^- で表す。)



鉱物の溶解・沈澱反応については、方解石および石英の平衡を考えている。

Wanner(1986)は、ベントナイトの持つpH緩衝性は方解石(CaCO_3)の溶解すなわち、



によって放出される Ca^{2+} がベントナイトに吸着され、反応が右に進むためpHが上がることを、Snellmanらによる実験値(Snellmanほか, 1987)より見い出している。

また、ケイ酸塩の溶解は、ベントナイト中の石英の溶解平衡により、規定されると仮定している。

一方、Grambow(1987)は、pH緩衝性は H^+ のイオン交換反応によるものであるとして、



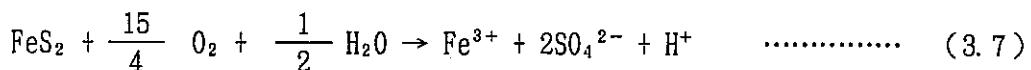
を考え、この式のイオン交換平衡定数として、 $\text{Si(OH)}_4(\text{aq}) = \text{H}^+ + \text{H}_3\text{SiO}_4^-$ の解離反応の値を用いている。大江ら(1990)も同様の考え方に基づいたモデルを提案している。しかし、 H^+ のイオン交換が長期的にもpHを支配していることの実験的確認はなされておらず、また、 H^+ のイオン交換平衡定数の妥当性についても明らかではない。

3.2.2 ベントナイト-水反応実験に対するWannerモデルの適用

上記のWannerモデルの適用性について、実際にベントナイト-水反応実験により検討を行った。

まず、前項に示した、(3.1)～(3.4)式の反応の平衡定数を、実験で使用したクニゲルV1に対し求めた。平衡定数の導出には、随伴鉱物の溶解による影響を避けるため、モンモリロナイトと方解石以外の随伴鉱物の存在しない、クニピアF(Na-モンモリロナイト95%以上)を用いて行ったベントナイト-蒸留水反応平衡実験の結果から導出した。クニピアFはクニゲルV1と同鉱床より産出される精製ベントナイトであり、両製品中のNa-モンモリロナイトは同じ性質を持つと考えられる。平衡定数の導出の詳細を付録A-1に示す。また、クニピアFの層間陽イオン量の値を表3.3に、求められた(3.1)～(3.4)式のイオン交換反応の平衡定数を表3.4に示す。なお、表中には、Wanner (1986)により報告されているNa-ベントナイト(MX-80、米国 Wyoming産)に対する値を併せて示すが、平衡定数に大きな差はなく、イオンの選択性の序列も同じであることがわかる。

次に、大気中でのクニゲルV1-蒸留水反応実験の結果と、これらの平衡定数を用いたWannerモデルによる計算結果との比較を行った。解析においては、前項に述べたWannerモデルに加え、大気中で行った実験であること、およびクニゲルV1中に黄鉄鉱(FeS_2)が含有されており、かつ液固比によらず単位粘土重量あたりほぼ同じ量の SO_4^{2-} が液中に溶出していることから黄鉄鉱(FeS_2)の酸化溶解反応を仮定した。従って(3.1)～(3.5)式の基本的なWannerモデルの反応に加え、以下の(3.7)～(3.9)式の反応を考慮する必要がある。



(3.7)式は、黄鉄鉱の酸化反応(不可逆)であり、(3.8)式はそれに伴う $Fe(OH)_3(s)$ の生成平衡反応である(Stumm and Morgan, 1981)。(3.9)式は、空気中の CO_2 ガスの吸収反応である。

クニゲルV1-蒸留水反応実験の詳細は付録A-2に記載する。浸漬液(振とう、14日後、25°C)組成の液固比依存性について、モデルによる計算値との比較を行った。計算条件を表3.5に示す。計算コードは、PHREEQE 6.0 (Parkhurstほか1980)を使用した。なお使用したデータベースの詳細については、付録B-1に記載した。

比較結果を図3.1(1), (2)に示す。図に示す通り $10^{-1} \sim 10^3 \text{ ml/g}$ の液固比に対するpHは実測値と計算値がほぼ一致している。大気雰囲気におけるpHの液固比依存性は、次のように考えられる。(3.7)式により黄鉄鉱が酸化され SO_4^{2-} が生成されたとすれば、(3.8)式中の $Fe(OH)_3$ の溶解度が小さいために沈殿し、そのために Fe^{3+} 濃度は非常に小さくなる。また、 Na^+ , Ca^{2+} , HCO_3^- の

表3.3 ベントナイト(クニピアF, Na-モンモリロナイト95%以上)
中の層間イオン量

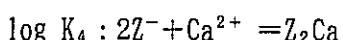
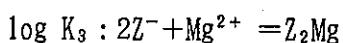
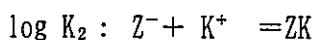
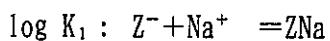
(単位: meq/g)

Na	1.079	(82.7%)
K	0.012	(0.9%)
Mg	0.031	(2.4%)
Ca	0.183	(14.0%)
TOTAL	1.305	
CEC *	1.075	

*日本ベントナイト工業会標準試験方法
(JBAS-106-77)に準拠して測定した。

表3.4 Wannerモデルに含まれるイオン交換平衡定数の計算結果

出典 ペントナイトの種類 $\log K$	P N C データ クニピアF	文 献 値 ¹⁾ MX-80
$\log K_1$	2 0. 0 *	2 0. 0 *
$\log K_2$	2 0. 6	2 0. 4
$\log K_3$	4 0. 2	4 1. 7
$\log K_4$	4 1. 8	4 2. 4



* Z^- が単独では存在しないことを仮定し、任意の値を設定した。

1) Wanner, H. (1986)

Modelling Interaction of Deep Groundwaters with Bentonite and Radionuclide Speciation, EIR-Bericht Nr.589

表3.5 ベントナイト—水反応計算条件一覧表

項目	入力データ 等
ベントナイト中のモンモリロナイト含有量	5.0 wt%
層間陽イオン量（モンモリロナイト重量あたり）	表3.3 参照
イオン交換平衡定数	表3.4 参照
平衡鉱物	SiO ₂ (石英), CaCO ₃ (方解石), Fe(OH) ₃
鉱物の溶解反応	FeS ₂ (黄鉄鉱) の酸化溶解*
平衡気体	CO ₂ (P _{CO₂} = 10 ^{-3.5} atm)
温度	25 °C
熱力学データベース	Si化学種 OECD/NEA TDB ¹⁾ その他の地球化学元素 オリジナルPHREEQEデータベース ²⁾
地球化学コード	PHREEQE 60

* FeS₂ (黄鉄鉱) については、実験より得られた、液中SO₄²⁻ がすべてFeS₂の溶解酸化反応に起因するものと仮定。

1) 例えば, Muller A. B., (1985)

NEA Compilation of Chemical Thermodynamic Data for Minerals Associated with Granite., OECD/NEA

2) Parkhurst, D. L., Thorstenson, D. C. and Plummer, L. N. (1980)

PHREEQE-A Computer Program for Geochemical Calculations., U. S. GEOLOGICAL SURVEY, Water-Resources Investigation, 80-96

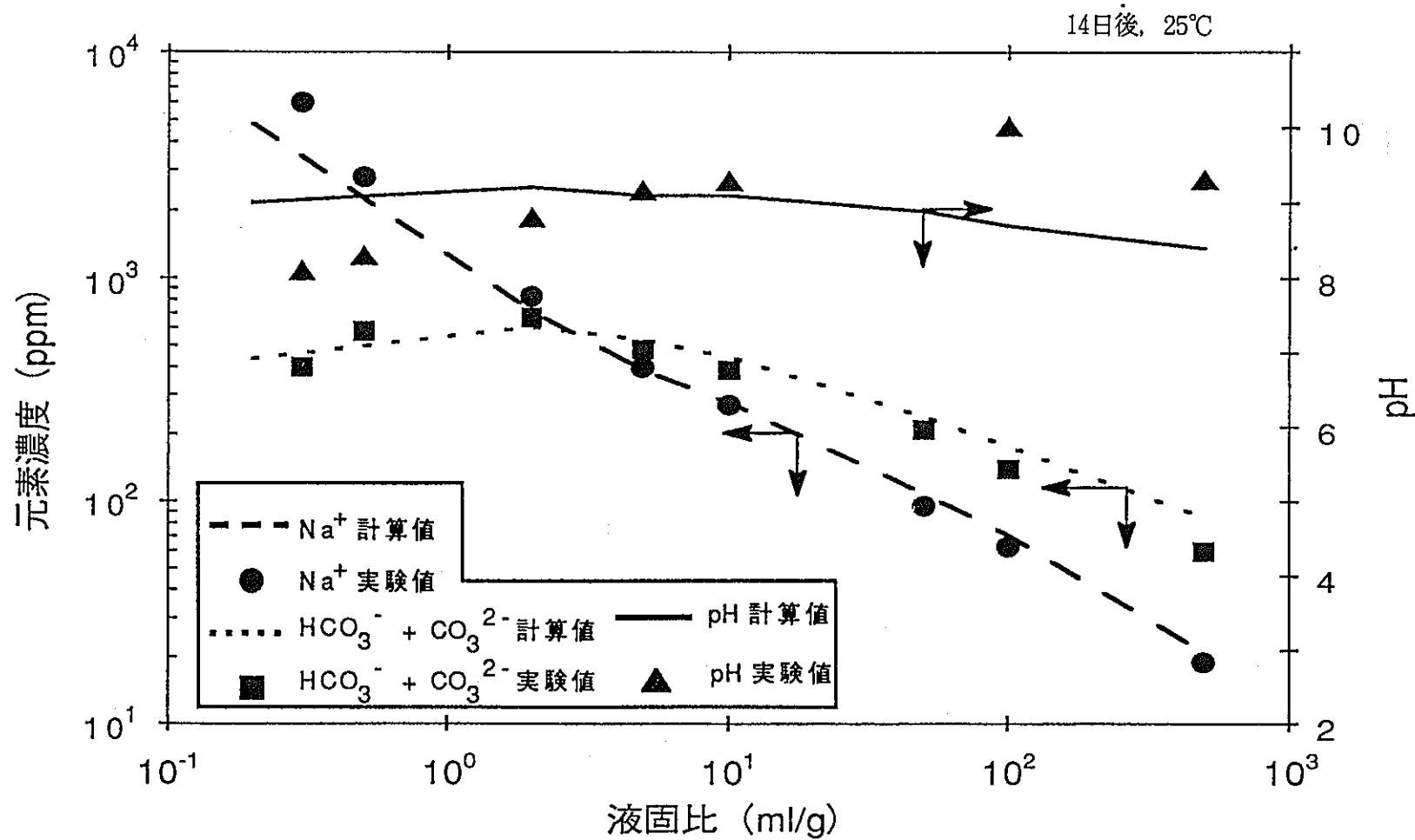


図3.1(1) クニゲルV1 – 蒸留水反応におけるpHおよび液中元素（イオン）濃度の実験値と計算値（PHREEQE）の比較（大気中）

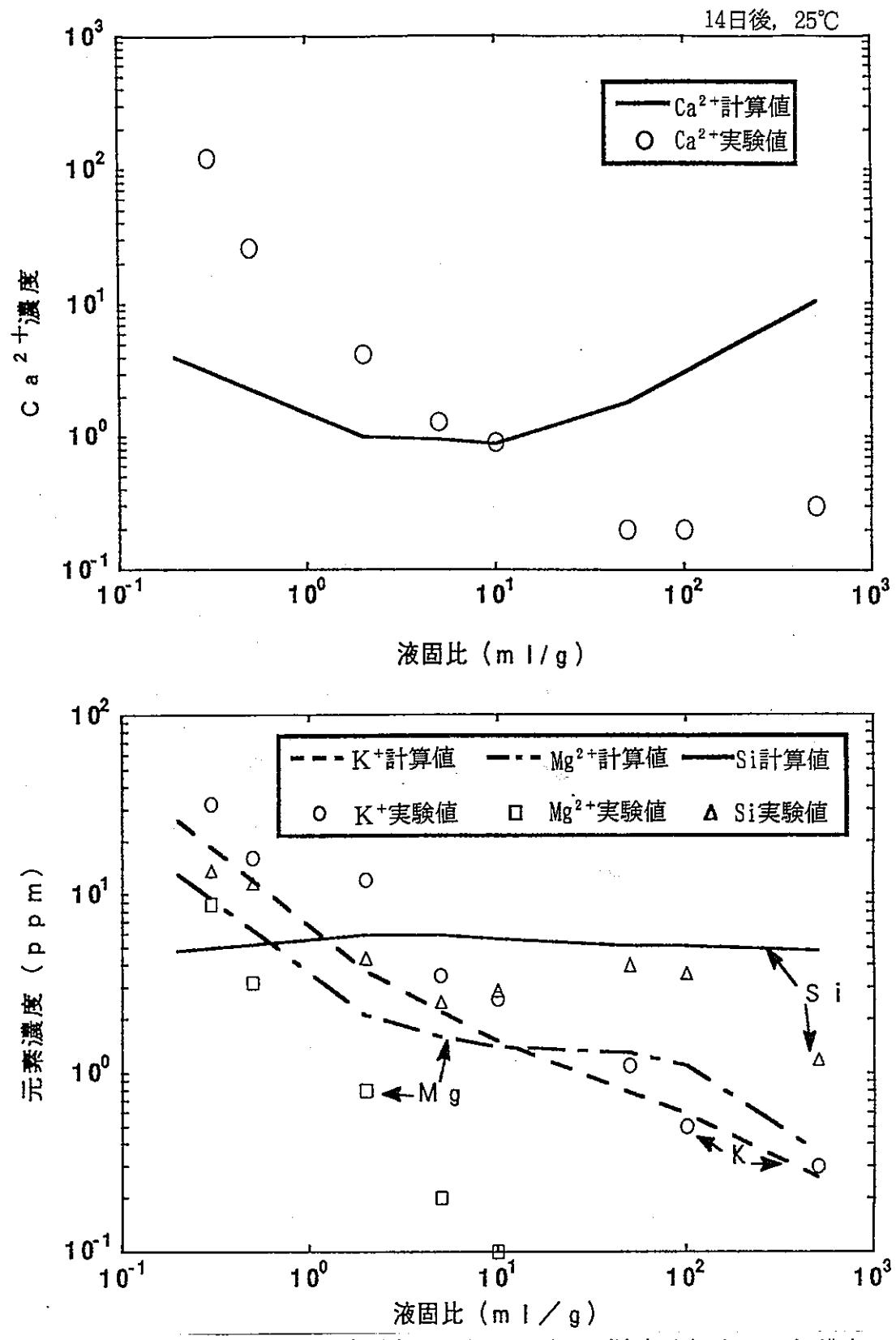
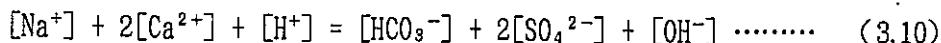


図3.1(2) クニゲルV 1 - 蒸留水反応におけるpHおよび液中元素（イオン）濃度の実験値と計算値 (PHREEQE) の比較 (大気中)

各濃度は(3.1), (3.4), (3.5), (3.9) 式により支配されるため、電気的中性条件の式



が近似的に成立する。従って、液固比が小さくなると、黄鉄鉱の酸化により SO_4^{2-} 濃度が上昇するため $[\text{H}^+]$ が上がる、すなわち、pHが小さくなると推定される。また、この傾向性は(3.7)式により Fe^{3+} が黄鉄鉱の完全酸化により生成したときも、(3.8)式中の Fe(OH)_3 の溶解度が小さいため沈澱し、 H^+ を出す事になり、pHが下がることによっても推定出来る。この傾向は図3.2に示すベントナイト浸漬液に対する鉱物の飽和指数の液固比依存性についての計算をPHREEQE60 を用いて行った結果からも推定される。

以上より大気雰囲気下でのクニゲルV1によるpHの液固比依存性は、黄鉄鉱の酸化に起因していると考えられ、液固比が小さくなる程、単位液量当たりの黄鉄鉱の量が増加するためpHは小さくなると推定される。しかしながら、還元雰囲気では(3.7)～(3.9)式は起こり難く、(3.1) (3.4), (3.5)式が支配的となると考えられるため、大気雰囲気に比べて液固比が小さくなるに従い、pHは上昇すると推定される。

また、 $(\text{HCO}_3^- + \text{CO}_3^{2-})$ 濃度、 Na^+ 濃度についても実測値と計算値に良い一致が認められる。 K^+ 、 Si の各濃度も若干ずれはあるものの液固比依存性の傾向性は一致している。

Ca^{2+} 濃度については、液固比10以下では実験値が計算値を上回り、液固比10以上では逆の傾向が認められる。この原因として、低液固比側では可溶性の塩あるいは方解石以外のCaを含有する鉱物からの Ca^{2+} の溶出が考えられる。また、高液固比側では、方解石の溶解速度(Plummerほか, 1979, 1978)が比較的速いと考えられることからベントナイトに含有される方解石の全量溶解による未平衡が考えられる。このことは、図3.2に示すベントナイト浸漬液に対する主要随伴鉱物等の飽和指数の計算結果からも推定される。

なお、クニゲルV1の構成鉱物のうちWannerモデルで考慮されていない鉱物（沸石、苦灰石等）を加えた解析を試みたが、イオン濃度やpHに大きな影響を与えないことがわかった（付録A-3 参照）。

また、参考として、ここで示した実験結果と Grambowモデルを用いた解析との比較を行った結果を付録A-4 に示す。液固比の低い範囲において、Wannerモデルよりも高いpHを示し、実験結果との一致が良くないことがわかる。

以上の検討結果から、ベントナイト—地下水反応のモデルとして、Wannerモデルを用いることが適切であると考えた。

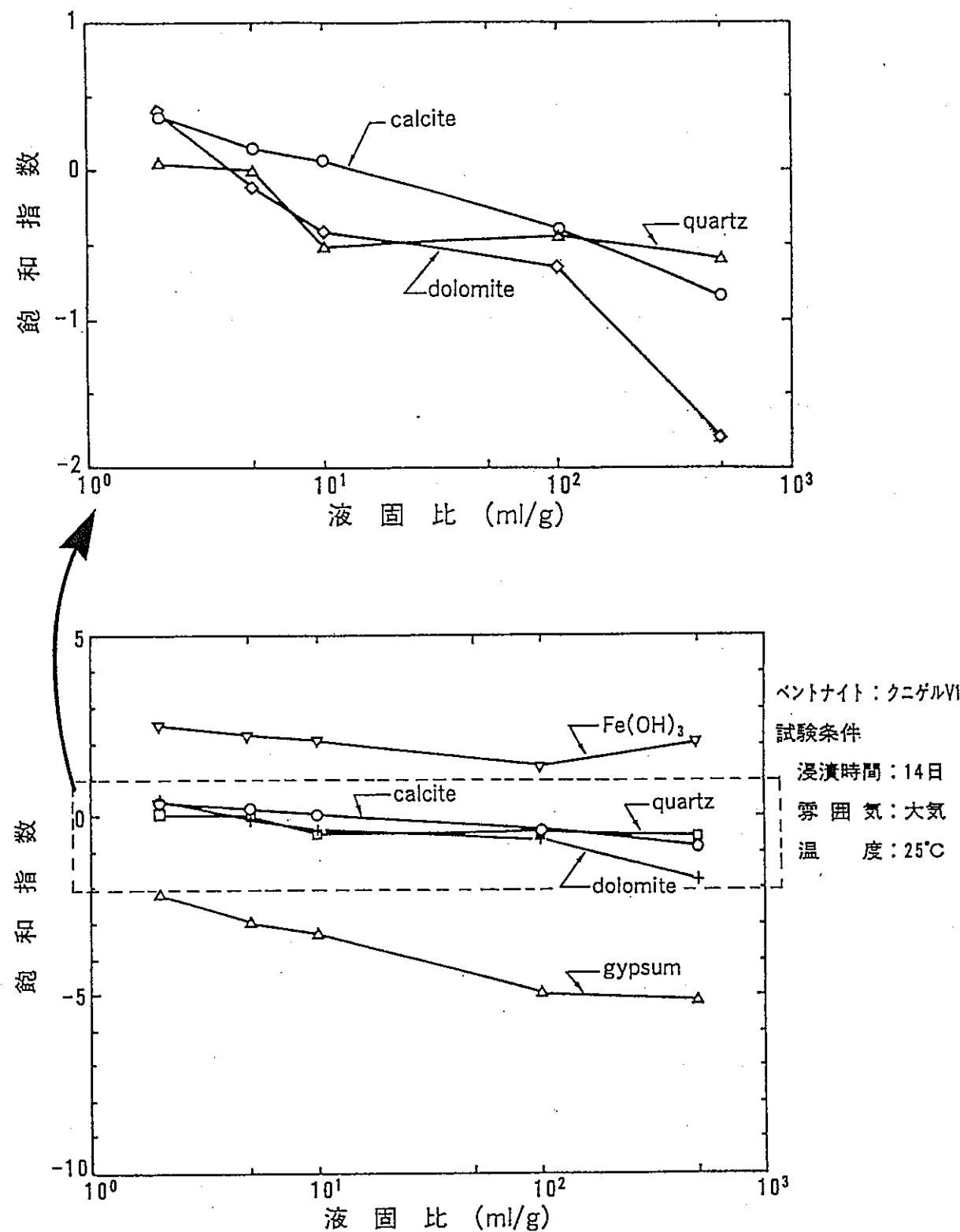


図3.2 ベントナイト浸漬液に対する鉱物の飽和指数解析結果

3.3 オーバーパック腐食生成物と地下水の反応

ベントナイト中の空隙水が炭素鋼(Fe)と接触し、腐食が開始される。この時、地下水の化学的性質に影響を及ぼすと考えられるプロセスは、腐食生成物とベントナイト空隙水との反応である。

安定な腐食生成物としては、緩衝材によって緩衝された液組成や、Fe-O系、Fe-O-H系におけるEh-pH線図により設定することとした。

4. ニアフィールドにおける地下水の化学的性質の変遷

4.1 解析条件

3章で検討したモデル化の考え方に基づき、ニアフィールドにおける地下水の化学的性質の変化に関する解析を実施した。解析に用いた計算コード、データベース、ベントナイト中のモンモリロナイト量およびイオン交換平衡定数は全ての計算において表3.5に示したものと同じ条件である。計算で考慮した平衡鉱物および平衡気体については、2章に示した地下水の変化する過程に従い、図4.1(1)～(5)の左図にそれぞれ記述した。まず、処分場の閉鎖後初期の地下水とベントナイトの反応としては、掘削時に浸入する気体の存在を考慮し、モンモリロナイトのイオン交換平衡反応、随伴鉱物との平衡反応、 O_2 ガスと CO_2 ガスを大気の分圧で与えた気体の溶解平衡反応や黄鉄鉱による O_2 ガスの消費反応を考慮した。次に、緩衝材が地下水で飽和した後では、モンモリロナイトのイオン交換反応平衡および随伴鉱物との溶解平衡のみを考えた。これらの計算での層間陽イオン組成は表3.3に示す通りとした。また、緩衝材の緩衝効果の喪失を仮定した条件として、随伴鉱物である方解石が消失し、層間の交換性陽イオンがすべてCaとなった場合を仮定した計算を行った。方解石が全量消費することと交換性陽イオンが全てCaに変化することは、同時には起こらないことが考えられるが、その両方が起こった状態を仮定した。ベントナイトにより緩衝作用を受けた空隙水は、次にオーバーパック領域へ移動する。この領域ではベントナイトと腐食生成物が共存しており、モンモリロナイトのイオン交換反応、随伴鉱物との平衡反応および腐食生成物との平衡反応を考える。

ただし、仮想的地下水である酸化性の地下水については、緩衝領域での反応は緩衝材外側からの物質移動と酸化還元反応速度に大きく依存するため、オーバーパックとの接触以降について平衡計算を行うこととした。

なお、処分環境でのベントナイトの液固比は、図1.1に示した人工バリアの仕様例に基づき算出した値を用いた。クニゲルV1の真比重は2.7（鈴木ほか 1992）であるので、処分場での使用が考えられている乾燥密度 1.8g/cm³の圧縮ベントナイトでは、

$$\text{空隙率} = 1 - 1.8 / (2.7 \times 0.999) = 0.333$$

$$\text{液固比 (ml/g)} = 0.333 / (2.7 \times 0.666) = 0.185$$

と計算される。

また、海水系地下水中の活量係数の補正については、0.3M以上では活量係数が変わらないとする変形Daviesの式（Brownほか、1990）を使用している。イオン*i*に対する活量係数(γ_i)は下記の式で与えられる。

$$\log \gamma_i (I) = -0.5102 Z_i^2 \frac{\sqrt{I}}{1+\sqrt{I}} - 0.3 I \quad (I \leq 0.3M)$$

$$\log \gamma_i (I) = \log \gamma_i (0.3) \quad (I > 0.3M)$$

ここで、 Z_i はイオン*i*の電荷、 I はイオン強度を示す。

4.2 結果および考察

3.1 項に述べた5種類の地下水に対し、ニアフィールドにおける地下水変遷の各段階での水質の変化について解析した結果を地下水のpH, peおよび重要なイオン濃度に基づいて、図4.1(1)～(5)の右図にそれぞれ示す。表4.1(1)～(5)には、地下水組成変遷の解析結果の詳細を示す。

なお、peは下記の式で定義される。

$$pe = F \cdot Eh / (2.3 RT)$$

ここで、F；ファラデー定数、Eh；酸化還元電位、R；気体定数、T；絶対温度である。

地下水水質の変化についての解析結果を以下に検討する。

仮想的な酸化性地下水を除く基本的な4種類の地下水に対し、各変遷領域での変化を考える。

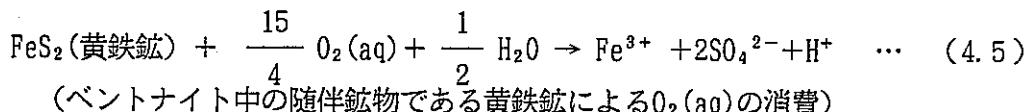
B ; 地下水—ベントナイト相互作用

B₀ ; 圧縮ベントナイトへの地下水浸入の段階

ベントナイト中に処分場操業時に取り込まれたO₂ガス、CO₂ガスの吸収・消費の段階であり、ここで考えられる支配的反応は、3.2.2項で述べた大気雰囲気下でのベントナイト水反応実験に適用したモデルと同様のものである。それらは以下の通りである。



(他のアルカリ、アルカリ土類金属イオン間のイオン交換平衡も含むが、他のイオンは、初期の層間陽イオン量が少ないと、イオン交換により変化する液中の濃度が他の隨伴鉱物の溶解に影響しないこと等により、それらは、支配的ではない。)



濃度 : mol/l

	ガラス	オーバーパック	ペントナイト	岩体		ガラス	オーバーパック	ペントナイト	岩体
閉鎖後 ($t \leq 50 \sim 10^2$ yr)			$P_{CO_2} = 10^{-3.5}$ atm $P_{O_2} = 10^{-0.7}$ atm Naモンモリロナイトのイオン交換 方解石, 石英 \downarrow 地下水 Naモンモリロナイトのイオン交換 方解石, 石英, 黄鉄鉱			閉鎖後 ($t \leq 50 \sim 10^2$ yr)		pH 9.7 p_e -5.8 Na^+ 5.2×10^{-2} Ca^{2+} ≈0 CO_3^{2-} 9.4×10^{-3} HCO_3^- 2.5×10^{-2} SO_4^{2-} 2.6×10^{-4}	
腐食の開始 ・継続 ($t > 50 \sim 10^2$ yr)		腐食の継続		$P_{CO_2} = 10^{-3.5}$ atm $P_{O_2} = 10^{-0.7}$ atm $P_{CO_2} = 10^{-1.0}$ atm \downarrow 方解石 アルバイト 石英 白雲母 カオリナイト 黄鉄鉱	雨水 \downarrow 地下水	腐食の開始 ・継続 ($t > 50 \sim 10^2$ yr)			pH 8.7 p_e -4.8 Na^+ 7.2×10^{-3} Ca^{2+} 3.8×10^{-5} CO_3^{2-} 2.3×10^{-4} HCO_3^- 6.6×10^{-3} SO_4^{2-} 1.3×10^{-4}
安定な腐食生成物と平衡 ($t \leq 4 \times 10^3 \sim 2 \times 10^7$ yr)			Naモンモリロナイトのイオン交換 方解石 石英 黄鉄鉱	地下水		安定な腐食生成物と平衡 ($t \leq 4 \times 10^3 \sim 2 \times 10^7$ yr)		pH 10.3 p_e -6.7 Na^+ 4.4×10^{-2} Ca^{2+} ≈0 CO_3^{2-} 1.3×10^{-2} HCO_3^- 7.3×10^{-3} SO_4^{2-} 1.2×10^{-4}	
ペントナイトによる緩衝効果の喪失 ($t > 4 \times 10^3 \sim 2 \times 10^7$ yr)			Ca モンモリロナイトのイオン交換 石英, 磁鉄鉱	地下水		ペントナイトによる緩衝効果の喪失 ($t > 4 \times 10^3 \sim 2 \times 10^7$ yr)		pH 9.0 p_e -5.8 Na^+ 1.6×10^{-3} Ca^{2+} 3.0×10^{-3} CO_3^{2-} 3.7×10^{-4} HCO_3^- 5.7×10^{-3} SO_4^{2-} 1.2×10^{-4}	pH 9.1 p_e -5.1 Na^+ 1.5×10^{-3} Ca^{2+} 3.0×10^{-3} CO_3^{2-} 4.1×10^{-4} HCO_3^- 5.6×10^{-3} SO_4^{2-} 1.3×10^{-4}

(地下水との反応段階)

(組成)

図4.1(1) ニアフィールドにおける地下水との反応モデル及び組成の変遷
(降水系-高pH型地下水)

濃度 : mol/l

	ガラス	オーバーパック	ベントナイト	岩体		ガラス	オーバーパック	ベントナイト	岩体
閉鎖後 (t≤50~10 ² yr)			$\text{CO}_2 \text{ P}_{\text{CO}_2} = 10^{-3.5} \text{ atm}$ $\text{O}_2 \text{ P}_{\text{O}_2} = 10^{-0.7} \text{ atm}$ Naモンモリロナイトのイオン交換 方解石, 石英 \downarrow Naモンモリロナイトのイオン交換 方解石, 石英, 黄鉄鉱	雨水 \downarrow 地下水 $\text{P}_{\text{CO}_2} = 10^{-3.5} \text{ atm}$ $\text{P}_{\text{O}_2} = 10^{-0.7} \text{ atm}$ \downarrow $\text{P}_{\text{CO}_2} = 10^{-1.0} \text{ atm}$ \downarrow アルバイト カオリナイト \downarrow 方解石 アルバイト 石英 磁鉄鉱 \downarrow アルバイト 石英 磁鉄鉱			pH 9.7 $\text{pe} -5.8$ $\text{Na}^+ 5.0 \times 10^{-2}$ $\text{Ca}^{2+} \approx 0$ $\text{CO}_3^{2-} 1.0 \times 10^{-2}$ $\text{HCO}_3^- 2.3 \times 10^{-2}$ $\text{SO}_4^{2-} 2.4 \times 10^{-4}$		
腐食の開始 ・継続 (t>50~10 ² yr)		腐食の継続							pH 5.7 $\text{pe} -2.7$ $\text{Na}^+ 2.5 \times 10^{-3}$ $\text{Ca}^{2+} 2.0 \times 10^{-3}$ $\text{CO}_3^{2-} 2.8 \times 10^{-7}$ $\text{HCO}_3^- 8.2 \times 10^{-3}$ $\text{SO}_4^{2-} -$
安定な腐食生成物と平衡 (t≤5×10 ² ~ 2×10 ⁵ yr)			Naモンモリロナイトのイオン交換 方解石 石英 黄鉄鉱	地下水 有機炭素 $(1.2 \times 10^{-1} \text{ mol/l})$			pH 8.1 $\text{pe} -5.2$ $\text{Na}^+ 1.3 \times 10^{-1}$ $\text{Ca}^{2+} 5.6 \times 10^{-5}$ $\text{CO}_3^{2-} 1.6 \times 10^{-3}$ $\text{HCO}_3^- 1.3 \times 10^{-1}$ $\text{SO}_4^{2-} 2.7 \times 10^{-13}$		
ベントナイトによる緩衝効果の喪失 (t>5×10 ² ~ 2×10 ⁵ yr)			Caモンモリロナイトのイオン交換 石英, 磁鉄鉱	地下水			pH 8.1 $\text{pe} -5.2$ $\text{Na}^+ 1.4 \times 10^{-1}$ $\text{Ca}^{2+} 1.6 \times 10^{-5}$ $\text{CO}_3^{2-} 1.5 \times 10^{-3}$ $\text{HCO}_3^- 1.3 \times 10^{-1}$ $\text{SO}_4^{2-} 2.6 \times 10^{-13}$		
							pH 5.8 $\text{pe} -2.8$ $\text{Na}^+ 5.9 \times 10^{-4}$ $\text{Ca}^{2+} 3.0 \times 10^{-3}$ $\text{CO}_3^{2-} 3.8 \times 10^{-7}$ $\text{HCO}_3^- 9.5 \times 10^{-3}$ $\text{SO}_4^{2-} 7.2 \times 10^{-15}$	pH 5.8 $\text{pe} -2.8$ $\text{Na}^+ 5.9 \times 10^{-4}$ $\text{Ca}^{2+} 3.0 \times 10^{-3}$ $\text{CO}_3^{2-} 4.0 \times 10^{-7}$ $\text{HCO}_3^- 9.7 \times 10^{-3}$ $\text{SO}_4^{2-} 7.6 \times 10^{-15}$	

(地下水との反応段階)

(組成)

図4.1(2) ニアフィールドにおける地下水との反応モデル及び組成の変遷
(降水系-低pH型地下水)

濃度 : mol/l

	ガラス	オーバーパック	ベントナイト	岩体		ガラス	オーバーパック	ベントナイト	岩体
閉鎖後 ($t \leq 50 \sim 10^2$ yr)			$\text{CO}_2 P_{\text{CO}_2} = 10^{-3.5}$ atm $\text{O}_2 P_{\text{O}_2} = 10^{-0.7}$ atm Naモンモリロナイトのイオン交換 方解石, 石英 ↓ 地下水 Naモンモリロナイトのイオン交換 方解石, 石英, 黄鉄鉱			閉鎖後 ($t \leq 50 \sim 10^2$ yr)		pH 8.6 pe -4.4 Na^+ 6.3×10^{-1} Ca^{2+} 3.8×10^{-4} CO_3^{2-} 1.3×10^{-4} HCO_3^- 2.7×10^{-3} SO_4^{2-} 3.0×10^{-2}	
腐食の開始 ・継続 ($t > 50 \sim 10^2$ yr)		腐食の継続		海水 ↓ ドロマイト 白雲母 石英 有機炭素 $(5.5 \times 10^{-2} \text{ mol/l})$		腐食の開始 ・継続 ($t > 50 \sim 10^2$ yr)		pH 7.9 pe -5.0 Na^+ 6.2×10^{-1} Ca^{2+} 3.5×10^{-4} CO_3^{2-} 1.4×10^{-4} HCO_3^- 1.6×10^{-2} SO_4^{2-} 6.1×10^{-5}	
安定な腐食生成物と平衡			Naモンモリロナイトのイオン交換 方解石 石英 黄鉄鉱	地下水		安定な腐食生成物と平衡		pH 8.1 pe -5.3 Na^+ 6.0×10^{-1} Ca^{2+} 2.7×10^{-4} CO_3^{2-} 1.6×10^{-4} HCO_3^- 1.1×10^{-2} SO_4^{2-} 2.2×10^{-5}	

(地下水との反応段階)

(組成)

図4.1(3) ニアフィールドにおける地下水との反応モデル及び組成の変遷
(海水系-高pH型地下水)

濃度 : mol/l

	ガラス	オーバーパック	ベントナイト	岩体		ガラス	オーバーパック	ベントナイト	岩体
閉鎖後 ($t \leq 50 \sim 10^2$ yr)			$\text{CO}_2 P_{\text{CO}_2} = 10^{-3.5}$ atm $\text{O}_2 P_{\text{O}_2} = 10^{-0.7}$ atm Naモンモリロナイトのイオン交換 方解石, 石英 \downarrow 地下水 Naモンモリロナイトのイオン交換 方解石, 石英, 黄鉄鉱			閉鎖後 ($t \leq 50 \sim 10^2$ yr)		pH 8.6 $\text{pe} -4.3$ $\text{Na}^+ 6.3 \times 10^{-1}$ $\text{Ca}^{2+} 4.6 \times 10^{-4}$ $\text{CO}_3^{2-} 1.2 \times 10^{-4}$ $\text{HCO}_3^- 2.5 \times 10^{-3}$ $\text{SO}_4^{2-} 3.0 \times 10^{-2}$	
腐食の開始 ・継続 ($t > 50 \sim 10^2$ yr)			腐食の継続		海水 \downarrow 方解石 白雲母 石英 カリ長石 アルバイト ドロマイト 有機炭素 (1.1×10^{-1} mol/l)	腐食の開始 ・継続 ($t > 50 \sim 10^2$ yr)		pH 7.2 $\text{pe} -4.1$ $\text{Na}^+ 6.5 \times 10^{-1}$ $\text{Ca}^{2+} 4.3 \times 10^{-4}$ $\text{CO}_3^{2-} 1.1 \times 10^{-4}$ $\text{HCO}_3^- 5.0 \times 10^{-2}$ $\text{SO}_4^{2-} 2.5 \times 10^{-3}$	pH 6.3 $\text{pe} -3.1$ $\text{Na}^+ 4.8 \times 10^{-1}$ $\text{Ca}^{2+} 2.3 \times 10^{-3}$ $\text{CO}_3^{2-} 3.6 \times 10^{-6}$ $\text{HCO}_3^- 1.5 \times 10^{-2}$ $\text{SO}_4^{2-} 1.3 \times 10^{-3}$
安定な腐食生成物と平衡 ($t \leq 1 \times 10^3 \sim 4 \times 10^5$ yr)			Naモンモリロナイトのイオン交換 方解石 石英 黄鉄鉱	地下水		安定な腐食生成物と平衡 ($t \leq 1 \times 10^3 \sim 4 \times 10^5$ yr)		pH 7.3 $\text{pe} -4.1$ $\text{Na}^+ 6.3 \times 10^{-1}$ $\text{Ca}^{2+} 4.0 \times 10^{-4}$ $\text{CO}_3^{2-} 1.2 \times 10^{-4}$ $\text{HCO}_3^- 4.6 \times 10^{-2}$ $\text{SO}_4^{2-} 2.2 \times 10^{-3}$	
ベントナイトによる緩衝効果の喪失 ($t > 1 \times 10^3 \sim 4 \times 10^5$ yr)			Caモンモリロナイトのイオン交換 石英, 磁鉄鉱	地下水		ベントナイトによる緩衝効果の喪失 ($t > 1 \times 10^3 \sim 4 \times 10^5$ yr)		pH 6.4 $\text{pe} -3.0$ $\text{Na}^+ 3.0 \times 10^{-1}$ $\text{Ca}^{2+} 1.2 \times 10^{-1}$ $\text{CO}_3^{2-} 4.2 \times 10^{-6}$ $\text{HCO}_3^- 1.5 \times 10^{-2}$ $\text{SO}_4^{2-} 2.0 \times 10^{-3}$	pH 6.3 $\text{pe} -3.0$ $\text{Na}^+ 3.0 \times 10^{-1}$ $\text{Ca}^{2+} 1.2 \times 10^{-1}$ $\text{CO}_3^{2-} 3.0 \times 10^{-6}$ $\text{HCO}_3^- 1.3 \times 10^{-2}$ $\text{SO}_4^{2-} 1.4 \times 10^{-3}$

(地下水との反応段階)

(組成)

図4.1(4) ニアフィールドにおける地下水との反応モデル及び組成の変遷。
(海水系-低pH型地下水)

濃度 : mol/l

	ガラス	オーバーパック	ベントナイト	岩体		ガラス	オーバーパック	ベントナイト	岩体
閉鎖後 ($t \leq 50 \sim 10^2$ yr)				地下水		閉鎖後 ($t \leq 50 \sim 10^2$ yr)			
腐食の開始 ・継続 ($t > 50 \sim 10^2$ yr)		腐食の継続		雨水 $P_{CO_2} = 10^{-3.5}$ atm $P_{O_2} = 10^{-0.7}$ atm 方解石 アルバイト 石英 白雲母 カオリナイト	岩体と接している外側境界条件と腐食生成物と接している内側境界条件の範囲内の組成変化	腐食の開始 ・継続 ($t > 50 \sim 10^2$ yr)			
安定な腐食生成物と平衡		Naモンモリロナイトのイオン交換 方解石, 石英 $Fe(II)(9.2 \times 10^{-4} M)^*$ ↓ Naモンモリロナイトのイオン交換 方解石, 石英, 磁鉄鉱 黄鉄鉱		地下水		安定な腐食生成物と平衡	pH 10.9 pe -7.9 Na^+ 4.3×10^{-2} Ca^{2+} ≈ 0 CO_3^{2-} 1.4×10^{-2} HCO_3^- 2.4×10^{-3} SO_4^{2-} 4.2×10^{-5}		岩体と接している外側境界条件と腐食生成物と接している内側境界条件の範囲内の組成変化
ベントナイトによる緩衝効果の喪失		Caモンモリロナイトのイオン交換 石英 $Fe(II)(9.2 \times 10^{-4} M)^*$ ↓ Caモンモリロナイトのイオン交換 石英, 磁鉄鉱, 黄鉄鉱		地下水		ベントナイトによる緩衝効果の喪失	pH 10.5 pe -7.5 Na^+ 4.8×10^{-5} Ca^{2+} 1.1×10^{-3} CO_3^{2-} 5.5×10^{-5} HCO_3^- 3.0×10^{-5} SO_4^{2-} 4.1×10^{-5}		

(地下水との反応段階)

図4.1(5) ニアフィールドにおける地下水との反応モデル及び組成の変遷
(降水系-酸化性-高pH型地下水(仮想的地下水))

(組成)

* もとの地下水中の $O_2(aq)$ を消費するために必要な
 Fe^{2+} のオーバーパックからの供給を考慮

表4.1(1) ニアフィールドにおける降水系—高pH型地下水組成の変遷 (mol/l)

	地下水 (A)	CO_2, O_2 が含む ペントナイトとの平衡 (B ₀)	ペントナイト との平衡 (B ₁ , B ₂)	緩衝液と Fe_3O_4 との平衡 (C ₂)	緩衝性喪失 ペントナイトとの平衡 (B ₃)	緩衝性喪失ペ ントナイトと Fe_3O_4 との平衡 (C ₃)
pH pe	8.7 -4.8	9.7 -5.8	10.3 -6.7	10.3 -7.3	9.1 -5.1	9.0 -5.8
Ca^{2+}	3.8×10^{-5}	≈ 0	≈ 0	≈ 0	3.0×10^{-3}	3.0×10^{-3}
Mg^{2+}	—	3.0×10^{-5}	3.0×10^{-5}	3.0×10^{-5}	—	—
Na^+	7.2×10^{-3}	5.2×10^{-2}	4.4×10^{-2}	4.4×10^{-2}	1.5×10^{-3}	1.6×10^{-3}
K^+	1.9×10^{-8}	1.4×10^{-4}	1.1×10^{-4}	1.1×10^{-4}	1.2×10^{-8}	1.2×10^{-8}
Fe(total) Fe(II) _T	6.3×10^{-5} 6.3×10^{-5} Fe^{2+}	1.3×10^{-4} 1.3×10^{-4} Fe^{2+} FeOH^+	6.2×10^{-5} 5.7×10^{-5} FeOH^+ Fe^{2+}	4.2×10^{-12} 4.1×10^{-12} FeOH^+ Fe^{2+}	6.3×10^{-5} 6.3×10^{-5} Fe^{2+} FeOH^+	2.1×10^{-10} 2.1×10^{-10} Fe^{2+} FeOH^+
Fe(III) _T	2.0×10^{-9} Fe(OH)_4^-	5.3×10^{-7} Fe(OH)_4^-	5.4×10^{-6} Fe(OH)_4^-	9.5×10^{-14} Fe(OH)_4^-	1.1×10^{-8} Fe(OH)_4^-	5.4×10^{-15} Fe(OH)_4^-
C (total) CO_3^{2-} HCO_3^- H_2CO_3	6.9×10^{-3} 2.3×10^{-4} 6.6×10^{-3} 2.4×10^{-5}	3.8×10^{-2} 9.4×10^{-3} 2.5×10^{-2} 1.0×10^{-5}	2.5×10^{-2} 1.3×10^{-2} 7.3×10^{-3} 6.0×10^{-7}	2.5×10^{-2} 1.3×10^{-2} 7.3×10^{-3} 6.1×10^{-7}	6.9×10^{-3} 4.1×10^{-4} 5.6×10^{-3} 9.8×10^{-6}	6.9×10^{-3} 3.7×10^{-4} 5.7×10^{-3} 1.1×10^{-5}
S (total) S(-II) _T	1.3×10^{-4} 8.7×10^{-12} HS^-	2.6×10^{-4} 1.3×10^{-11} HS^-	1.2×10^{-4} 5.8×10^{-11} HS^-	1.2×10^{-4} 4.1×10^{-6} HS^-	1.3×10^{-4} 1.1×10^{-11} HS^-	1.3×10^{-4} 4.8×10^{-6} HS^-
S(VI) _T	1.3×10^{-4} SO_4^{2-}	2.6×10^{-4} SO_4^{2-}	1.2×10^{-4} SO_4^{2-}	1.2×10^{-4} SO_4^{2-}	1.3×10^{-4} SO_4^{2-}	1.2×10^{-4} SO_4^{2-}
$\text{SiO}_2(\text{aq})$	1.8×10^{-4}	2.7×10^{-4}	7.8×10^{-4}	7.8×10^{-4}	1.9×10^{-4}	1.8×10^{-4}
F^-	—	—	—	—	—	—
Sr^{2+}	—	—	—	—	—	—
Cl^-	—	—	—	—	—	—
Li^+	—	—	—	—	—	—
Br^-	—	—	—	—	—	—

〔 Fe, S の濃度については液中の主要化学種を合わせて記載した。 (表4.1(2)～(5)についても
同様である。) 〕

表4.1(2) ニアフィールドにおける降水系—低pH型地下水組成の変遷 (mol/l)

	地下水 (A)	CO ₂ , O ₂ ガス含む ペントナイトとの平衡 (B ₀)	ペントナイト との平衡 (B ₁ , B ₂)	緩衝液と Fe ₃ O ₄ との平衡 (C ₂)	緩衝性喪失 ペントナイトとの平衡 (B ₃)	緩衝性喪失ペ ントナイトと, Fe ₃ O ₄ との平衡 (C ₃)
pH pe	5.7 -2.7	9.7 -5.8	8.1 -5.2	8.1 -5.2	5.8 -2.8	5.8 -2.8
Ca ²⁺	2.0×10 ⁻³	≒0	5.6×10 ⁻⁵	1.6×10 ⁻⁵	3.0×10 ⁻³	3.0×10 ⁻³
Mg ²⁺	—	3.0×10 ⁻⁵	1.5×10 ⁻⁴	1.5×10 ⁻⁴	—	—
Na ⁺	2.5×10 ⁻³	5.0×10 ⁻²	1.3×10 ⁻¹	1.4×10 ⁻¹	5.9×10 ⁻⁴	5.9×10 ⁻⁴
K ⁺	—	1.3×10 ⁻⁴	3.8×10 ⁻⁴	3.9×10 ⁻⁴	—	—
Fe(total) Fe(II) _T	8.2×10 ⁻⁴ 8.2×10 ⁻⁴ Fe ²⁺	9.5×10 ⁻⁴ 9.4×10 ⁻⁴ Fe ²⁺ FeOH ⁺	8.3×10 ⁻⁴ 8.3×10 ⁻⁴ Fe ²⁺	4.6×10 ⁻⁸ 4.6×10 ⁻⁸ Fe ²⁺	8.3×10 ⁻⁴ 8.3×10 ⁻⁴ Fe ²⁺	7.1×10 ⁻⁴ 7.1×10 ⁻⁴ Fe ²⁺
Fe(III) _T	6.9×10 ⁻¹⁴ Fe(OH) ₂ ⁺	6.3×10 ⁻⁸ Fe(OH) ₄ ⁻	2.2×10 ⁻¹¹ Fe(OH) ₄ ⁻ Fe(OH) ₂ ⁺ Fe(OH) ₃	1.1×10 ⁻¹³ Fe(OH) ₄ ⁻ Fe(OH) ₂ ⁺ Fe(OH) ₃	7.4×10 ⁻¹⁴ Fe(OH) ₂ ⁺	6.2×10 ⁻¹⁴ Fe(OH) ₂ ⁺
C (total) CO ₃ ²⁻ HCO ₃ ⁻ H ₂ CO ₃	1.3×10 ⁻¹ 2.8×10 ⁻⁷ 1.0×10 ⁻² 8.2×10 ⁻³ 3.0×10 ⁻²	3.8×10 ⁻² 1.6×10 ⁻³ 2.3×10 ⁻² 1.3×10 ⁻¹ 8.1×10 ⁻³	1.9×10 ⁻¹ 1.6×10 ⁻³ 1.3×10 ⁻¹ 1.8×10 ⁻³	2.0×10 ⁻¹ 1.5×10 ⁻³ 1.3×10 ⁻¹ 1.9×10 ⁻³	1.3×10 ⁻¹ 4.0×10 ⁻⁷ 9.7×10 ⁻³ 3.2×10 ⁻²	1.3×10 ⁻¹ 3.8×10 ⁻⁷ 9.5×10 ⁻³ 3.2×10 ⁻²
S (total) S(-II) _T	—	2.4×10 ⁻⁴ 4.6×10 ⁻¹² HS ⁻	5.3×10 ⁻¹¹ 5.3×10 ⁻¹¹ HS ⁻	5.3×10 ⁻¹¹ 5.3×10 ⁻¹¹ HS ⁻	3.6×10 ⁻¹⁰ 3.6×10 ⁻¹⁰ H ₂ S	3.6×10 ⁻¹⁰ 3.6×10 ⁻¹⁰ H ₂ S
S(VI) _T	—	2.4×10 ⁻⁴ SO ₄ ²⁻	2.7×10 ⁻¹³ SO ₄ ²⁻	2.6×10 ⁻¹³ SO ₄ ²⁻	7.6×10 ⁻¹⁵ SO ₄ ²⁻	7.2×10 ⁻¹⁵ SO ₄ ²⁻
SiO ₂ (aq)	1.6×10 ⁻⁴	2.9×10 ⁻⁴	1.5×10 ⁻⁴	1.5×10 ⁻⁴	1.5×10 ⁻⁴	1.5×10 ⁻⁴
F ⁻	—	—	—	—	—	—
Sr ²⁺	—	—	—	—	—	—
Cl ⁻	—	—	—	—	—	—
Li ⁺	—	—	—	—	—	—
Br ⁻	—	—	—	—	—	—

表4.1(3) ニアフィールドにおける海水系—高pH型地下水組成の変遷 (mol/l)

	地下水 (A)	CO_2, O_2 を含む ペントナイトとの平衡 (B ₀)	ペントナイト との 平 衡 (B ₁ , B ₂)	緩衝液と Fe_3O_4 との平衡 (C ₂ , C ₃)
pH	8.0	8.6	7.9	8.1
pe	-5.2	-4.4	-5.0	-5.3
Ca^{2+}	2.2×10^{-4}	3.8×10^{-4}	3.5×10^{-4}	2.7×10^{-4}
Mg^{2+}	1.5×10^{-4}	2.2×10^{-3}	1.9×10^{-3}	1.8×10^{-3}
Na^+	6.0×10^{-1}	6.3×10^{-1}	6.2×10^{-1}	6.0×10^{-1}
K^+	2.2×10^{-4}	1.8×10^{-3}	1.7×10^{-3}	1.7×10^{-3}
Fe(total)	5.6×10^{-8}	5.8×10^{-5}	1.7×10^{-15}	5.2×10^{-3}
Fe(II) _T	5.6×10^{-8}	5.8×10^{-5}	1.7×10^{-15}	5.2×10^{-3}
Fe(HS) ₃ ⁻		Fe^{2+}	Fe(HS) ₃ ⁻	Fe(HS) ₃ ⁻
Fe(HS) ₂			Fe(HS) ₂	Fe(HS) ₂
Fe(III) _T	2.0×10^{-21}	4.5×10^{-10}	2.9×10^{-29}	9.9×10^{-18}
Fe(OH) ₄ ⁻		Fe(OH) ₄ ⁻	Fe(OH) ₂ ⁺	Fe(OH) ₄ ⁻
Fe(OH) ₂ ⁺		Fe(OH) ₃	Fe(OH) ₃	Fe(OH) ₂ ⁺
Fe(OH) ₃			Fe(OH) ₄ ⁻	Fe(OH) ₃
C (total)	4.8×10^{-2}	3.7×10^{-3}	4.9×10^{-2}	4.1×10^{-2}
CO_3^{2-}	2.1×10^{-4}	1.3×10^{-4}	1.4×10^{-4}	1.6×10^{-4}
HCO_3^-	1.8×10^{-2}	2.7×10^{-3}	1.6×10^{-2}	1.1×10^{-2}
H_2CO_3	2.8×10^{-4}	1.0×10^{-5}	3.5×10^{-4}	1.3×10^{-4}
S (total)	2.9×10^{-2}	3.0×10^{-2}	3.0×10^{-2}	3.0×10^{-2}
S(-II) _T	2.8×10^{-2}	1.0×10^{-11}	3.0×10^{-2}	3.0×10^{-2}
HS ⁻		HS ⁻	HS ⁻	HS ⁻
S(VI) _T	7.3×10^{-5}	3.0×10^{-2}	6.1×10^{-5}	2.2×10^{-5}
SO_4^{2-}		SO_4^{2-}	SO_4^{2-}	SO_4^{2-}
NaSO_4^-		NaSO_4^-	NaSO_4^-	NaSO_4^-
$\text{SiO}_2(\text{aq})$	1.5×10^{-4}	1.4×10^{-4}	1.3×10^{-4}	1.4×10^{-4}
F^-	7.6×10^{-5}	7.9×10^{-5}	7.9×10^{-5}	7.9×10^{-5}
Sr^{2+}	9.5×10^{-5}	9.8×10^{-5}	9.8×10^{-5}	9.8×10^{-5}
Cl^-	5.5×10^{-1}	5.8×10^{-1}	5.8×10^{-1}	5.8×10^{-1}
Li^+	3.0×10^{-5}	3.1×10^{-5}	3.1×10^{-5}	3.1×10^{-5}
Br^-	8.4×10^{-4}	8.8×10^{-4}	8.8×10^{-4}	8.8×10^{-4}

表4.1(4) ニアフィールドにおける海水系—低pH型地下水組成の変遷 (mol/l)

	地下水 (A)	CO ₂ , O ₂ が含む ベントナイトとの平衡 (B ₀)	ベントナイト と の 平 衡 (B ₁ , B ₂)	緩衝液と Fe ₃ O ₄ との平衡 (C ₂)	緩衝性喪失 ベントナイトとの平衡 (B ₃)	緩衝性喪失ベントナイトと, Fe ₃ O ₄ との平衡 (C ₃)
pH pe	6.3 -3.1	8.6 -4.3	7.2 -4.1	7.3 -4.1	6.3 -3.0	6.4 -3.0
Ca ²⁺	2.3×10 ⁻³	4.6×10 ⁻⁴	4.3×10 ⁻⁴	4.0×10 ⁻⁴	1.2×10 ⁻¹	1.2×10 ⁻¹
Mg ²⁺	4.6×10 ⁻²	5.0×10 ⁻³	5.3×10 ⁻³	5.0×10 ⁻³	3.4×10 ⁻²	3.4×10 ⁻²
Na ⁺	4.8×10 ⁻¹	6.3×10 ⁻¹	6.5×10 ⁻¹	6.3×10 ⁻¹	3.0×10 ⁻¹	3.0×10 ⁻¹
K ⁺	1.0×10 ⁻²	2.4×10 ⁻³	2.5×10 ⁻³	2.4×10 ⁻³	3.1×10 ⁻³	3.1×10 ⁻³
Fe(total) Fe(II) _T	5.6×10 ⁻⁸ 5.6×10 ⁻⁸ Fe(HS) ₂ Fe(HS) ₃ ⁻	5.8×10 ⁻⁶ 5.8×10 ⁻⁶ Fe ²⁺	3.4×10 ⁻¹⁶ 3.4×10 ⁻¹⁶ Fe(HS) ₃ ⁻ Fe(HS) ₂	8.3×10 ⁻³ 8.3×10 ⁻³ Fe(HS) ₂ Fe(HS) ₃ ⁻	1.1×10 ⁻¹⁶ 1.1×10 ⁻¹⁶ Fe(HS) ₂ Fe(HS) ₃ ⁻	1.1×10 ⁻² 1.1×10 ⁻² Fe(HS) ₂
Fe(III) _T	2.0×10 ⁻²¹ Fe(OH) ₂ ⁺	3.9×10 ⁻¹⁰ Fe(OH) ₄ ⁻	3.5×10 ⁻³⁰ Fe(OH) ₂ ⁺	2.9×10 ⁻¹⁵ Fe(OH) ₂ ⁺	3.4×10 ⁻³⁰ Fe(OH) ₂ ⁺	2.5×10 ⁻¹⁴ Fe(OH) ₂ ⁺
C (total) CO ₃ ²⁻ HCO ₃ ⁻ H ₂ CO ₃	4.1×10 ⁻² 3.6×10 ⁻⁶ 1.5×10 ⁻² 1.1×10 ⁻²	3.6×10 ⁻³ 1.2×10 ⁻⁴ 2.5×10 ⁻³ 1.0×10 ⁻⁵	7.1×10 ⁻² 1.1×10 ⁻⁴ 5.0×10 ⁻² 4.5×10 ⁻³	6.3×10 ⁻² 1.2×10 ⁻⁴ 4.6×10 ⁻² 3.5×10 ⁻³	4.3×10 ⁻² 3.0×10 ⁻⁶ 1.3×10 ⁻² 1.1×10 ⁻²	4.3×10 ⁻² 4.2×10 ⁻⁶ 1.5×10 ⁻² 9.6×10 ⁻³
S (total) S(-II) _T	2.9×10 ⁻² 2.7×10 ⁻² H ₂ S	3.0×10 ⁻² 1.0×10 ⁻¹¹ HS ⁻	3.0×10 ⁻² 2.7×10 ⁻² HS ⁻ H ₂ S	3.0×10 ⁻² 2.8×10 ⁻² Fe(HS) ₂ Fe(HS) ₃ ⁻ HS ⁻ H ₂ S	3.0×10 ⁻² 2.8×10 ⁻² H ₂ S	3.0×10 ⁻² 2.8×10 ⁻² Fe(HS) ₂ Fe(HS) ₃ ⁻
S(VI) _T	1.3×10 ⁻³ SO ₄ ²⁻ NaSO ₄ ⁻	3.0×10 ⁻² SO ₄ ²⁻ NaSO ₄ ⁻	2.5×10 ⁻³ SO ₄ ²⁻ NaSO ₄ ⁻	2.2×10 ⁻³ SO ₄ ²⁻ NaSO ₄ ⁻	1.4×10 ⁻³ CaSO ₄ ²⁻ SO ₄ ²⁻	2.0×10 ⁻³ CaSO ₄ ²⁻ SO ₄ ²⁻
SiO ₂ (aq)	1.5×10 ⁻⁴	1.4×10 ⁻⁴	1.3×10 ⁻⁴	1.3×10 ⁻⁴	1.4×10 ⁻⁴	1.4×10 ⁻⁴
F ⁻	7.6×10 ⁻⁵	7.9×10 ⁻⁵	7.9×10 ⁻⁵	7.9×10 ⁻⁵	7.9×10 ⁻⁵	7.9×10 ⁻⁵
Sr ²⁺	9.5×10 ⁻⁶	9.8×10 ⁻⁵	9.8×10 ⁻⁵	9.8×10 ⁻⁵	9.8×10 ⁻⁵	9.8×10 ⁻⁵
Cl ⁻	5.5×10 ⁻¹	5.8×10 ⁻¹	5.8×10 ⁻¹	5.8×10 ⁻¹	5.8×10 ⁻¹	5.8×10 ⁻¹
Li ⁺	3.0×10 ⁻⁵	3.1×10 ⁻⁵	3.1×10 ⁻⁵	3.1×10 ⁻⁵	3.1×10 ⁻⁵	3.1×10 ⁻⁵
Br ⁻	8.4×10 ⁻⁴	8.8×10 ⁻⁴	8.8×10 ⁻⁴	8.8×10 ⁻⁴	8.8×10 ⁻⁴	8.8×10 ⁻⁴

表4.1(5) ニアフィールドにおける降水系—酸化性—高pH型地下水
 (仮想的地下水) 組成の変遷 (mol/l)

	地下水 (A)	CO ₂ , O ₂ ガス含む ベントナイトとの平衡 (B ₀)	ベントナイト との平衡 (B ₁ , B ₂)	緩衝液と Fe ₃ O ₄ との平衡 (C ₂)	緩衝性喪失 ベントナイトとの平衡 (B ₃)	緩衝性喪失ベントナイトと Fe ₃ O ₄ との平衡 (C ₃)
pH pe	10.0 10.6	—	—	10.9 -7.9	—	10.5 -7.5
Ca ²⁺	1.0×10^{-4}	—	—	≈ 0	—	1.1×10^{-3}
Mg ²⁺	—	—	—	3.0×10^{-5}	—	—
Na ⁺	3.7×10^{-4}	—	—	4.3×10^{-2}	—	4.8×10^{-5}
K ⁺	9.7×10^{-10}	—	—	1.1×10^{-4}	—	3.5×10^{-11}
Fe(total) Fe(II) _T	—	—	—	3.1×10^{-12} 2.9×10^{-12} Fe(OH) ₃ ⁻ FeOH ⁺ Fe(OH) ₂ 2.8×10^{-13} Fe(OH) ₄ ⁻	—	2.6×10^{-12} 2.5×10^{-12} FeOH ⁺ Fe(OH) ₃ ⁻ Fe(OH) ₂ 1.4×10^{-13} Fe(OH) ₄ ⁻
Fe(III) _T	—	—	—	—	—	—
C (total) CO ₃ ²⁻ HCO ₃ ⁻ H ₂ CO ₃	1.3×10^{-4} 4.2×10^{-5} 8.1×10^{-5} 1.7×10^{-8}	—	—	2.1×10^{-2} 1.4×10^{-2} 2.4×10^{-3} 6.1×10^{-8}	—	1.3×10^{-4} 5.5×10^{-5} 3.0×10^{-5} 1.8×10^{-9}
S (total) S(-II) _T	—	—	—	4.5×10^{-5} 3.4×10^{-6} HS ⁻	—	4.3×10^{-5} 1.2×10^{-6} HS ⁻
S(VI) _T	—	—	—	4.2×10^{-5} SO ₄ ²⁻	—	4.1×10^{-5} SO ₄ ²⁻
SiO ₂ (aq)	4.4×10^{-4}	—	—	2.2×10^{-3}	—	1.1×10^{-3}
F ⁻	—	—	—	—	—	—
Sr ²⁺	—	—	—	—	—	—
Cl ⁻	—	—	—	—	—	—
Li ⁺	—	—	—	—	—	—
Br ⁻	—	—	—	—	—	—

空気中から持ち込まれた O_2 ガスは地下水に溶け込み $O_2(aq)$ となる(4.4)式)。しかし、黄鉄鉱(FeS_2)の酸化により $O_2(aq)$ は消費され(4.5)式)、Ehは依然低い値を保つ。pHについては、方解石の溶解(4.2)式)が支配的となり、反応が右に進行することでpHは上昇する。降水系-高pH型地下水の例(図4.1(1))では、浸入してくる地下水のpeの値が-4.8であるのに対し、反応後の空隙水の値は-5.8であり、pHについては、8.7から9.7に変化している。また、方解石の溶解にともなう Ca^{2+} の放出により(4.1)式のイオン交換平衡は右に傾き、 Na^+ は増加する。降水系-高pH型地下水の例では Ca^{2+} はモンモリロナイト層間に取り込まれ液中濃度はほぼ0となり、 Na 濃度は 7.2×10^{-3} から $5.2 \times 10^{-2} mol/l$ に増加する。

なお、Si濃度については、石英の溶解(4.3)式)に支配され、pHが増加することで、 $Si(OH)_4(aq)$ の解離反応($Si(OH)_4(aq) = H^+ + SiO(OH)_3^-$ 等)が進み、Si濃度は上昇する。

B₁ および B₂ ; 圧縮ベントナイトが完全に地下水により飽和された段階

ここでは、海水系-高pH型地下水を除く3種類の地下水については、方解石($CaCO_3$)の溶解により(4.2)式の反応が右に進み、pHが上昇する。また、同時に($CO_3^{2-} + HCO_3^-$)濃度の増加およびイオン交換(4.1)式)による Ca 濃度の低下と Na 濃度の増加が認められている。降水系-高pH型地下水の例では、pHが8.7から10.3に、 Na 濃度は 7.2×10^{-3} から $1.3 \times 10^{-2} mol/l$ にそれぞれ増加する。また、海水系-高pH型地下水は浸入する地下水自身が方解石に対しほば飽和であるために、方解石の溶解は起こらず、pHの上昇は認められない。また、Ehについては、いずれの地下水においてもpH変化に伴う変化が認められる。

B₃ ; 圧縮ベントナイト中方解石が全て消費され、Na-モンモリロナイトがCa-モンモリロナイトに変化した段階

pHの変化に影響を及ぼす主たる反応(例えば、方解石の溶解反応(4.2)式)が存在しないため、結果として岩体中の地下水水質と近いものになっている。

ただし、海水系-高pH型地下水は、方解石に対してほぼ飽和であるため方解石が消費され緩衝能が喪失することなく、B₃は考えない。

C ; オーバーパック腐食生成物との反応による緩衝液(B)の変化

C₁ ; ベントナイト空隙水が炭素鋼(Fe)と接触し、腐食が開始され安定な腐食生成物形成に至るまでの段階

図4.1(1)～(4), 表4.1(1)～(4)中には示していないが、ここでは、最終的に安定な腐食生成物を形成する過程で存在し得る腐食生成物として、 Fe(OH)_2 , FeCO_3 , FeS_2 , FeOOH および Fe_3O_4 を考え、これらを平衡鉱物としてB₁との反応計算を行ったが、Ehを除いてB₁はほとんど変化しなかった。

本報告書においては、最終的にガラス固化体と接する地下水の化学的性質の導出を目的としていること、最終的には最も安定な腐食生成物との平衡に到達すると考えられることから、この領域に対する詳細な検討は行わないこととした。

C₂, C₃ ; ベントナイト空隙水と炭素鋼の最終的に安定な腐食生成物とが平衡になった段階

安定な腐食生成物として、まず、熱力学的に安定な酸化物系での腐食生成物を考えることとした。浸入してくる各地下水およびベントナイトにより緩衝された空隙水をpH-Ehダイヤグラム上にプロットした結果(図4.2(1)～(4))より、酸化物系での安定な腐食生成物として磁鉄鋼(Fe_3O_4)を仮定することとした。

B₂ ⇒ C₂, B₃ ⇒ C₃における地下水水質の変化では、降水系の地下水では磁鉄鉱の沈殿が、海水系地下水では磁鉄鉱の溶解が起きており、それにともなうFe濃度の変化が認められる。またC₂においては同時に方解石の溶解沈殿反応が起こっている。pH, Ehの顕著な変化は認められない。

なお、参考として、Fe-O-H系の腐食生成物を考え、図4.3に示すEh-pH線図より、 FeOOH を安定な腐食生成物とした場合についての空隙水組成の解析を行い、 Fe_3O_4 を考えた場合との比較を行った。詳細を付録A-5に示すがFe濃度が若干変化する以外に大きな変化は認められなかった。

なお、降水系一酸化性一低pH型地下水(仮想的地下水)は、緩衝材領域では4.1項にも示したように、平衡計算での評価が困難であり、緩衝材中(B領域)では、浸入してくる地下水とオーバーパック腐食生成物と平衡となった空隙水との範囲内での組成となっていると考えられる。オーバーパック領域では、オーバーパックからの二価鉄イオンにより地下水中の溶存酸素が消費され、安定な腐食生成物(Fe_3O_4)との平衡反応に至ると仮定することで、peが10.6から-7.9へと変化しており、Ehが大きく低下している(図4.1(5), 図4.2(5), 表4.1(5))。

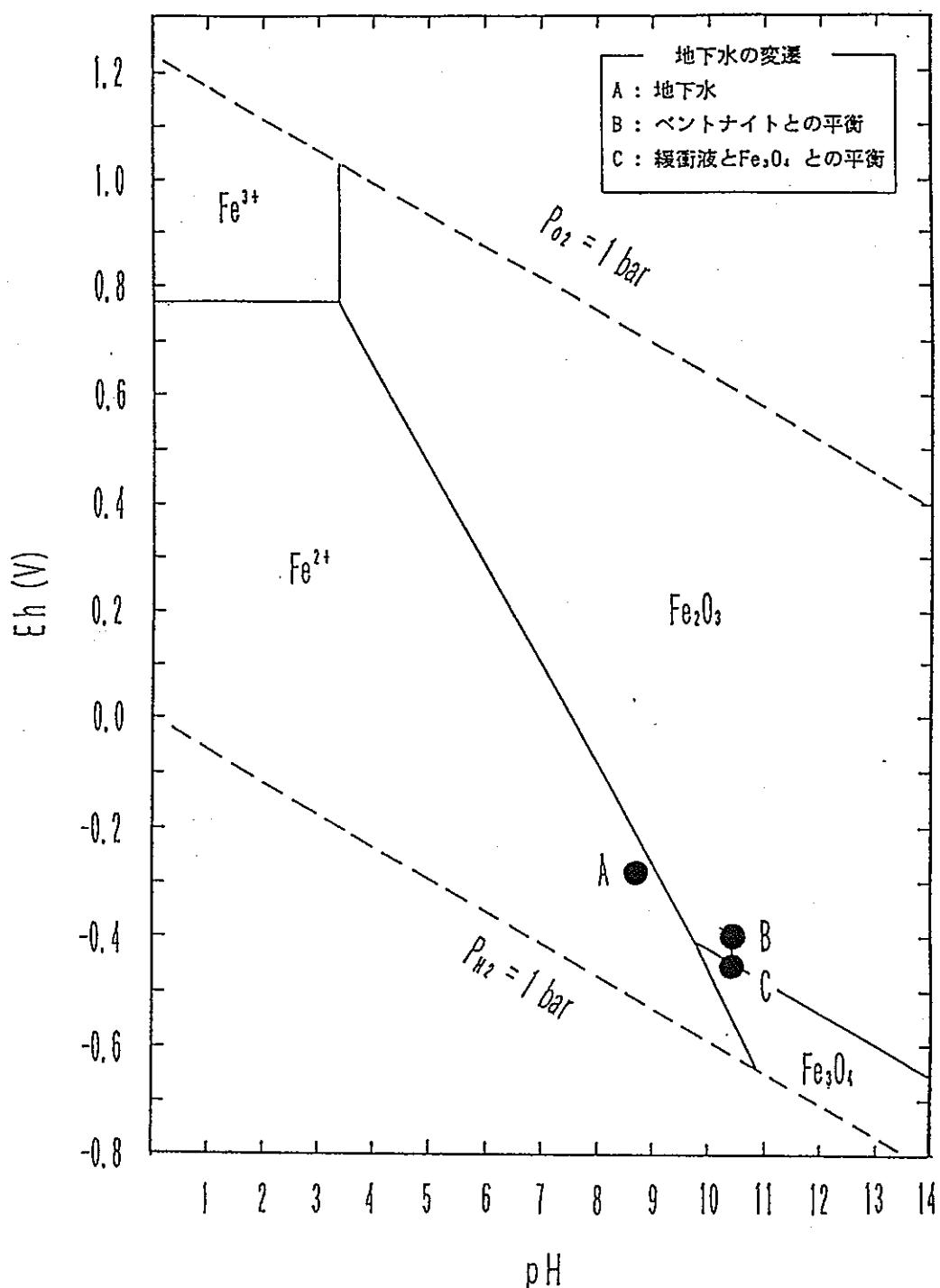


図4.2(1) 降水系—高pH型地下水でのFe-O系のEh-pH線図
(鉄濃度はオーバーパック腐食生成物との反応による空隙水(C_2)の値を用いた。)

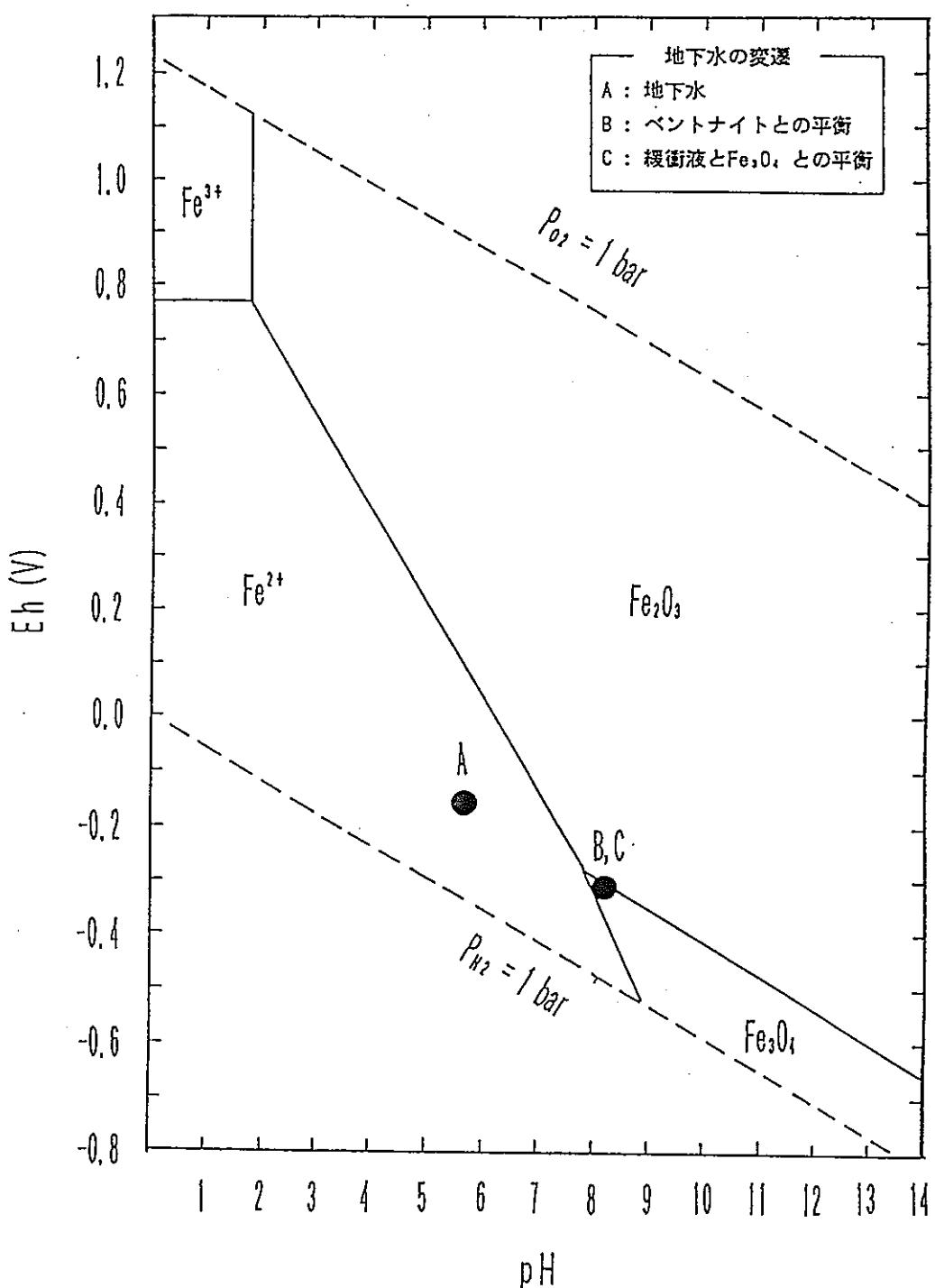


図4.2(2) 降水系—低pH型地下水でのFe-O系のEh-pH線図
(鉄濃度はオーバーパック腐食生成物との反応による空隙水(C_2)の値を用いた。)

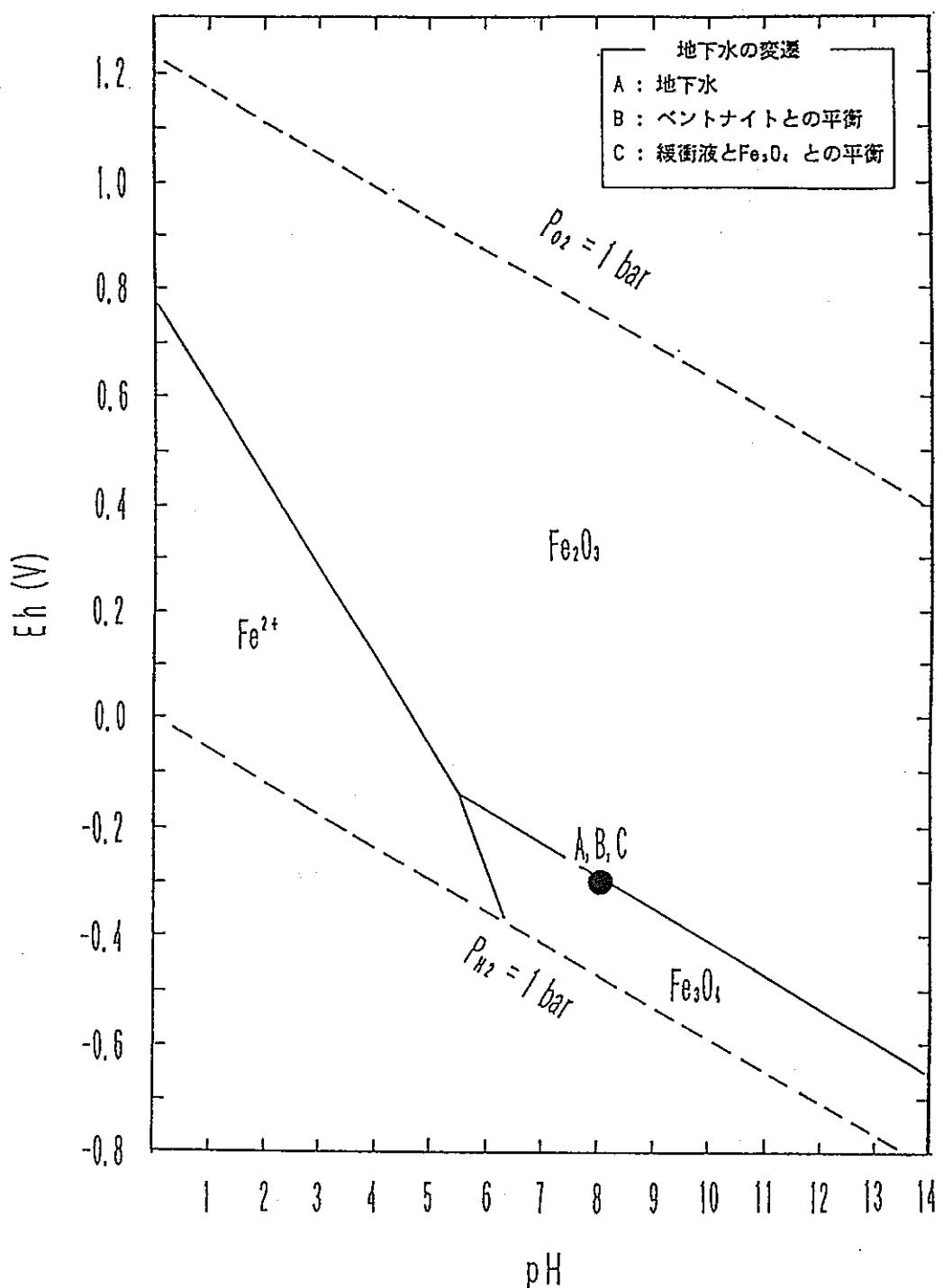


図4.2(3) 海水系—高pH型地下水でのFe-O系のEh-pH線図
(鉄濃度はオーバーパック腐食生成物との反応による空隙水(C_2)の値を用いた。)

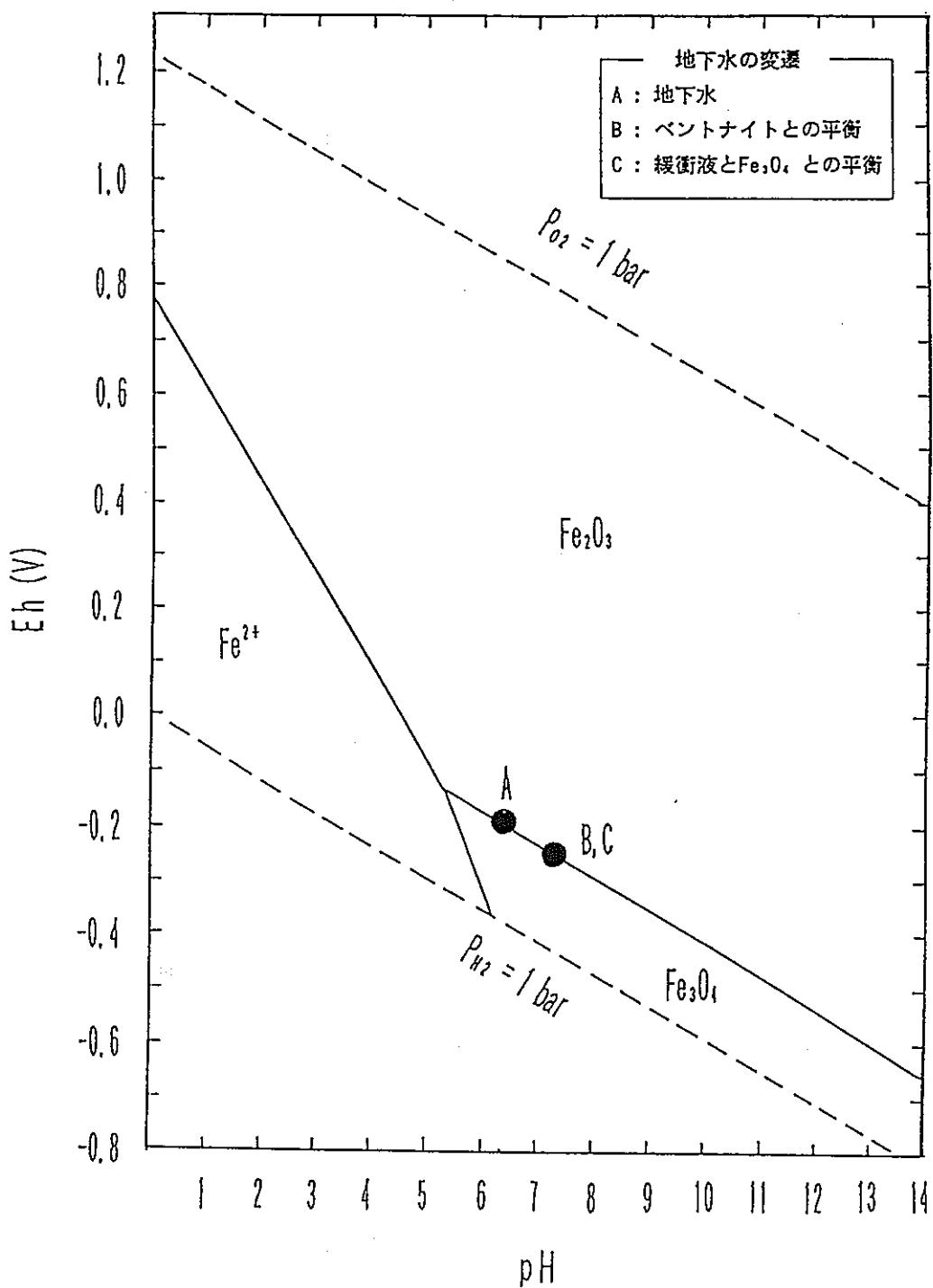


図4.2(4) 海水系一低pH型地下水でのFe-O系のEh-pH線図
(鉄濃度はオーバーパック腐食生成物との反応による空隙水(C_2)の値を用いた。)

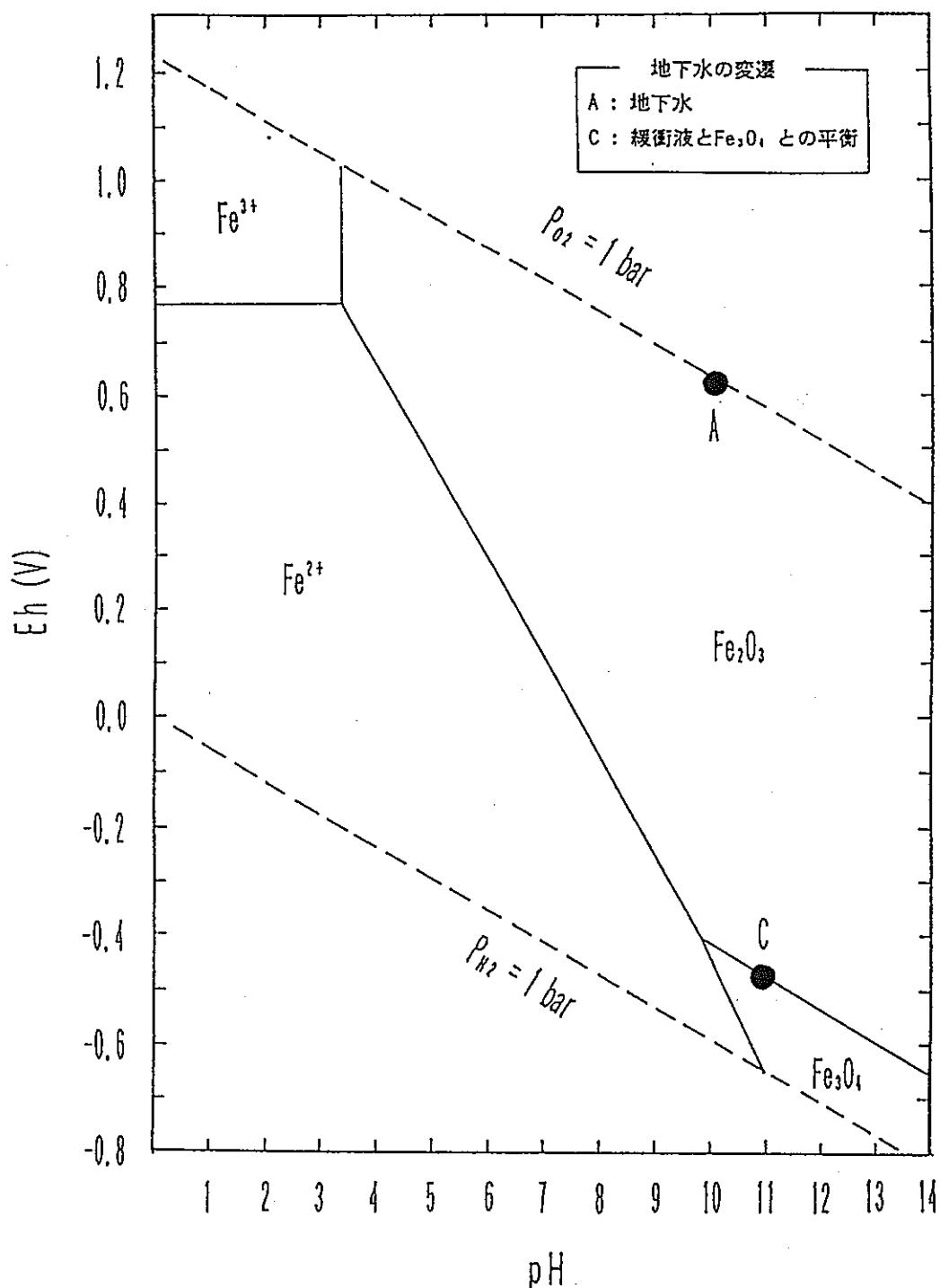


図4.2(5) 降水系-酸化性-高pH地下水（仮想的地下水）でのFe-O系のEh-pH線図
(鉄濃度はオーバーパック腐食生成物との反応による空隙水(C_2)の値を用いた。)

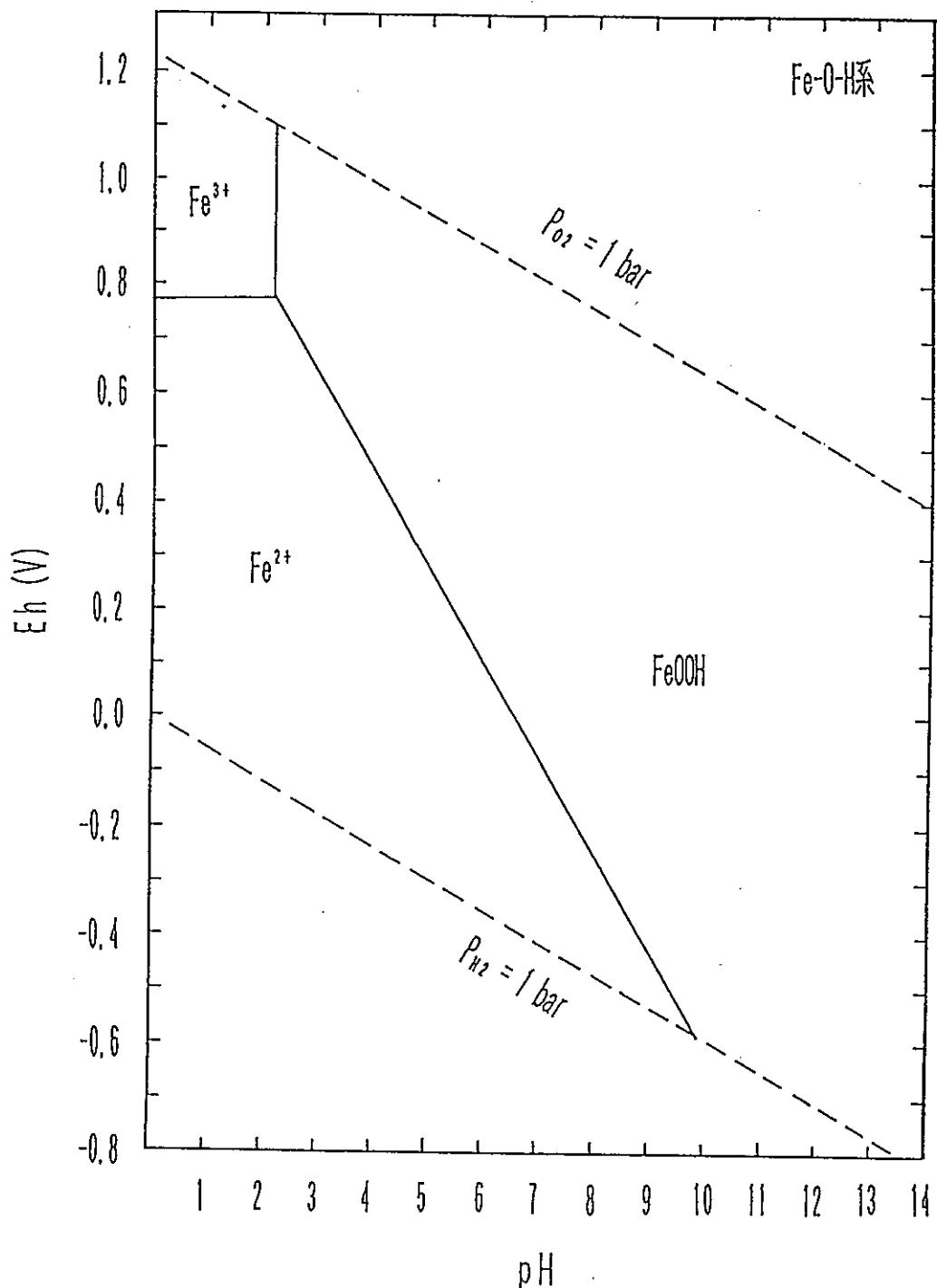


図4.3 Fe-O-H系のEh-pH線図($[\text{Fe}] = 10^{-8} \text{ mol/l}$)

4.3 ニアフィールドにおける地下水の化学的変遷に関する解析のまとめ

4.2項で示した解析結果より、ニアフィールド内の地下水に対する人工バリア材の化学的緩衝性の一般的傾向をまとめると図4.4に示すようになる。

降水系地下水ではNa-モンモリロナイトのイオン交換及び方解石の溶解平衡によりpH, Na⁺, HCO₃⁻濃度は上昇方向にシフトし(pHは約6～10から8～11へ, Na⁺濃度は約4×10⁻⁴～7×10⁻³ mol/lから約4×10⁻²～10⁻¹mol/lへ, (HCO₃⁻+CO₃²⁻) 濃度は約10⁻⁴～8×10⁻³mol/lから約2×10⁻²～10⁻¹mol/lへ), また, Ehについては仮想的酸化性地下水が侵入したとしてもオーバーパックの腐食生成物等によりかなり低い幅にシフトし, peの値で約-5～11から約-8～-5へと変化する。

一方, 海水系地下水では, 海水のNa⁺濃度が高いため化学的緩衝性のシフト幅は降水系に比べかなり小さいことがわかる。

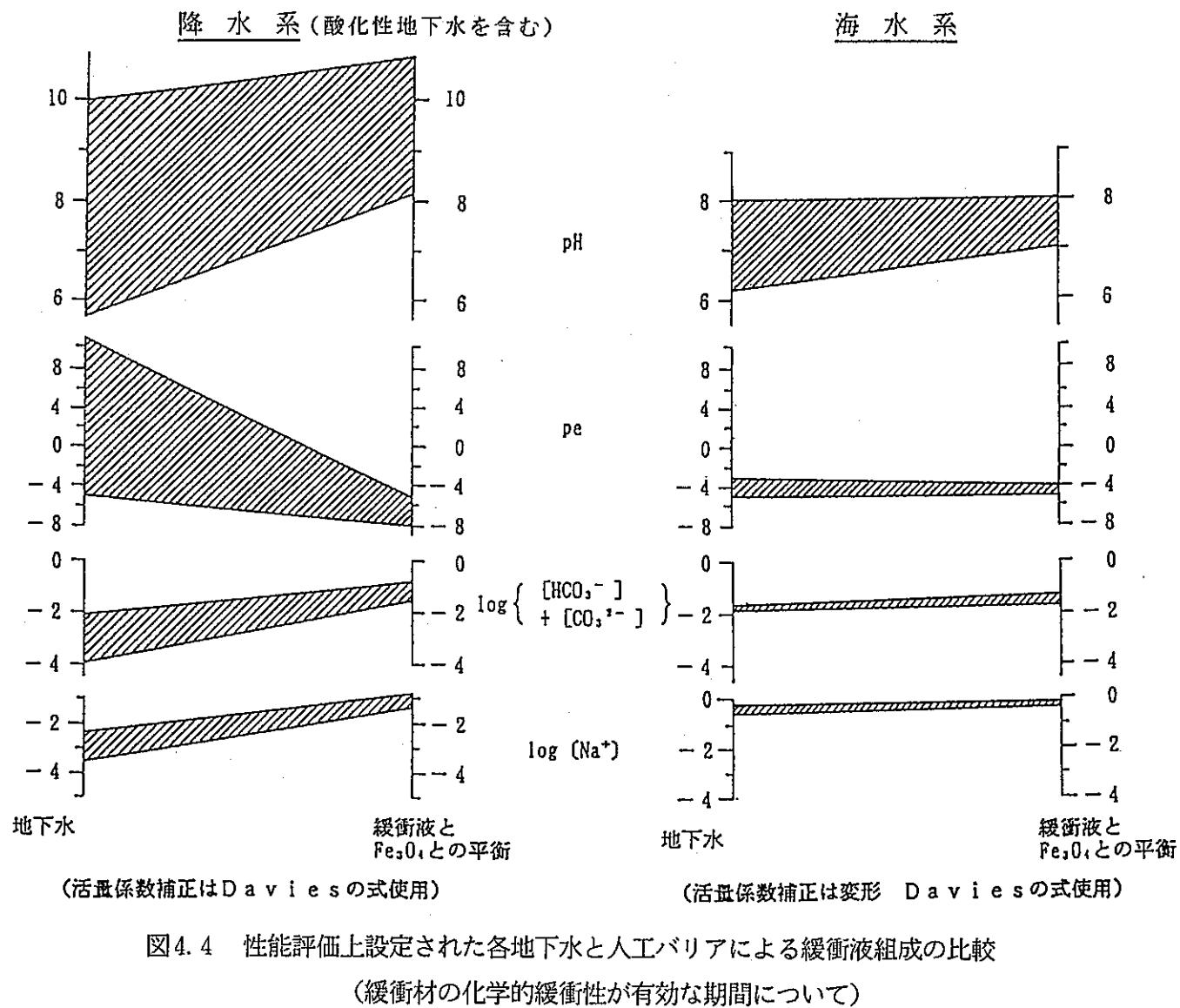


図4.4 性能評価上設定された各地下水と人工バリアによる緩衝液組成の比較

(緩衝材の化学的緩衝性が有効な期間について)

5. ベントナイトによる地下水の化学的緩衝性維持時間の検討

人工バリア材による地下水の化学的緩衝作用には、それらを構成する成分の消費を伴うために、緩衝性を持続する時間には限りがある。以上に述べた人工バリア中での地下水変遷モデルにおいては、ベントナイトのpH緩衝性は、ベントナイト中方解石がすべて消費された時点で消失すると仮定している。そこで、本章では前章まで取り扱った4種類の還元性のモデル地下水を対象として、ベントナイト空隙水の方解石の溶解を考慮したpH緩衝性維持時間の検討を行った。また、緩衝材中のEhは、4種類の還元性のモデル地下水を考える限りでは、還元環境が維持される。ここでは、仮想的に溶存酸素を含む酸化性地下水が人工バリア内に浸入し続けた場合のEh緩衝性維持時間について、その概略を把握するための試算も行った。

5.1 pHに関する化学的緩衝性維持時間

ベントナイトと地下水の相互作用の進行は、地下水がベントナイト中を移動する速度と地下水とベントナイト構成鉱物との化学反応の速度により時間的、空間的に決定される。ベントナイトの化学的緩衝性維持時間を検討するためには、地下水の浸入と化学反応を同時に考慮して、物質移行と反応速度論を連成させて考える必要があるが、速度定数に関する知見は十分なものではない。ここでは概略の評価でもあり、ベントナイト中の地下水の移動は拡散によっており（畠中ほか1992），化学反応の速度に比して十分遅いものと仮定することとする。これに基づけば、図5.1に示すような、ベントナイト中の空隙水がある滞留時間をもってバッチ的に交換され、各バッチにおいて与えられた地下水とベントナイトは瞬時に化学平衡に達するという地下水交換モデルを考えることができる。また、ベントナイト中では空隙水は瞬時に混合され、空間的な偏りは無いとする。

地下水交換モデルによって、ベントナイト中方解石を全て消費するまでの地下水交換回数を計算し、これと一回の地下水の滞留時間（=交換時間）とによりベントナイトの化学的緩衝性維持時間を求めることができる。

5.1.1 地下水の交換回数

図5.1に示した地下水交換モデルに従って、ベントナイト中方解石を全て消費するまでの地下水交換回数を計算する。計算のフローを図5.2に示す。ベントナイトと地下水との化学反応計算には地球化学コードPHREEQE60(Parkhurst ほか, 1980)を用い、解析は、降水系-高pH型、降水系-低pH型および海水系-低pH型の3種類の地下水に対して行った。海水系-高pH型地下水では地下水自身が方解石に対してほぼ飽和であるため、方解石の消失によるpH緩衝性の喪失はないものと考えられる。人工バリア材として考えられているベントナイト(クニゲルV1)中方解石の含有量は表3.1に示す様に1～3%の範囲であることから、この範囲内の含有量を考慮することとした。

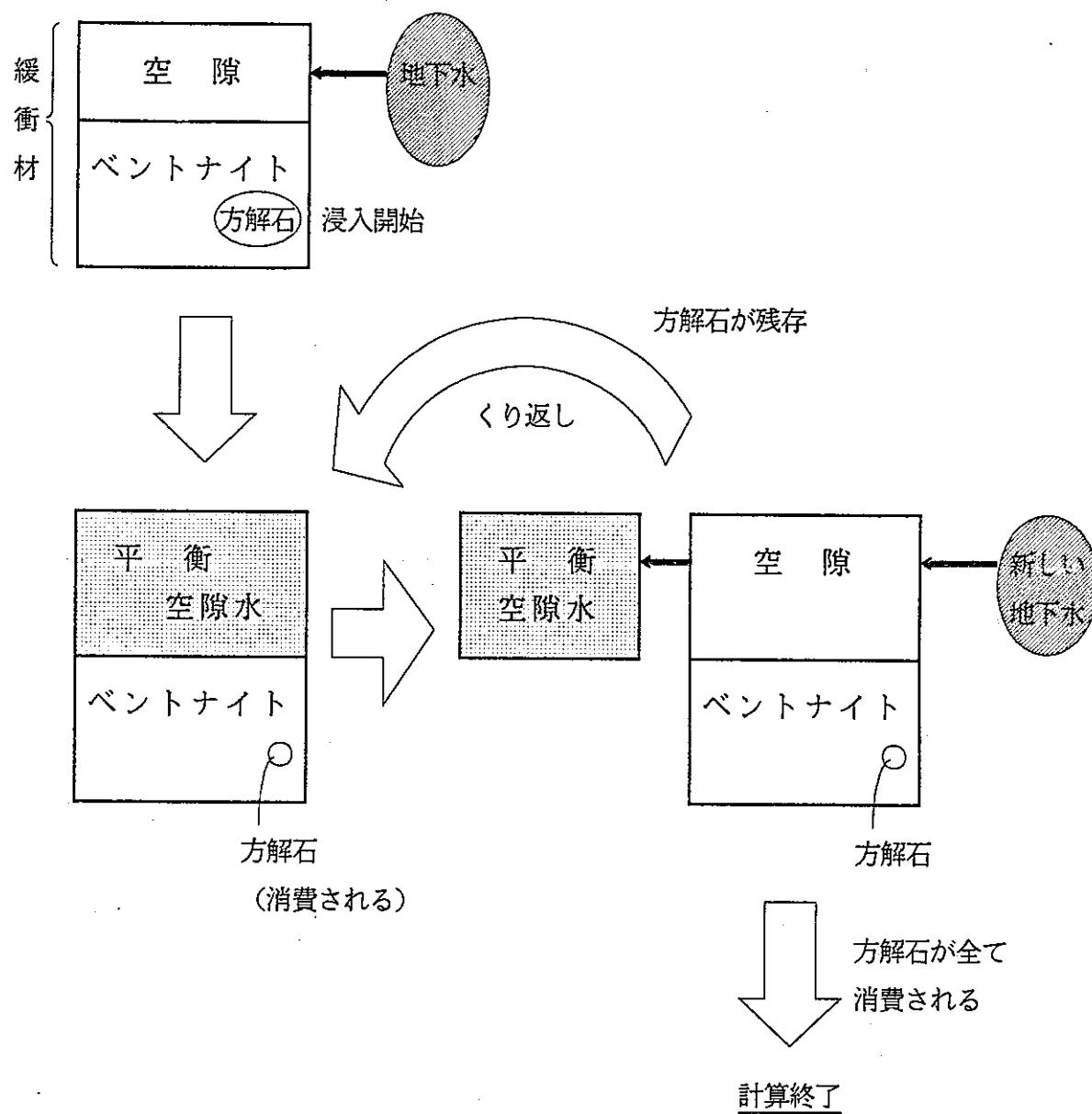


図5.1 地下水交換モデルの概念図

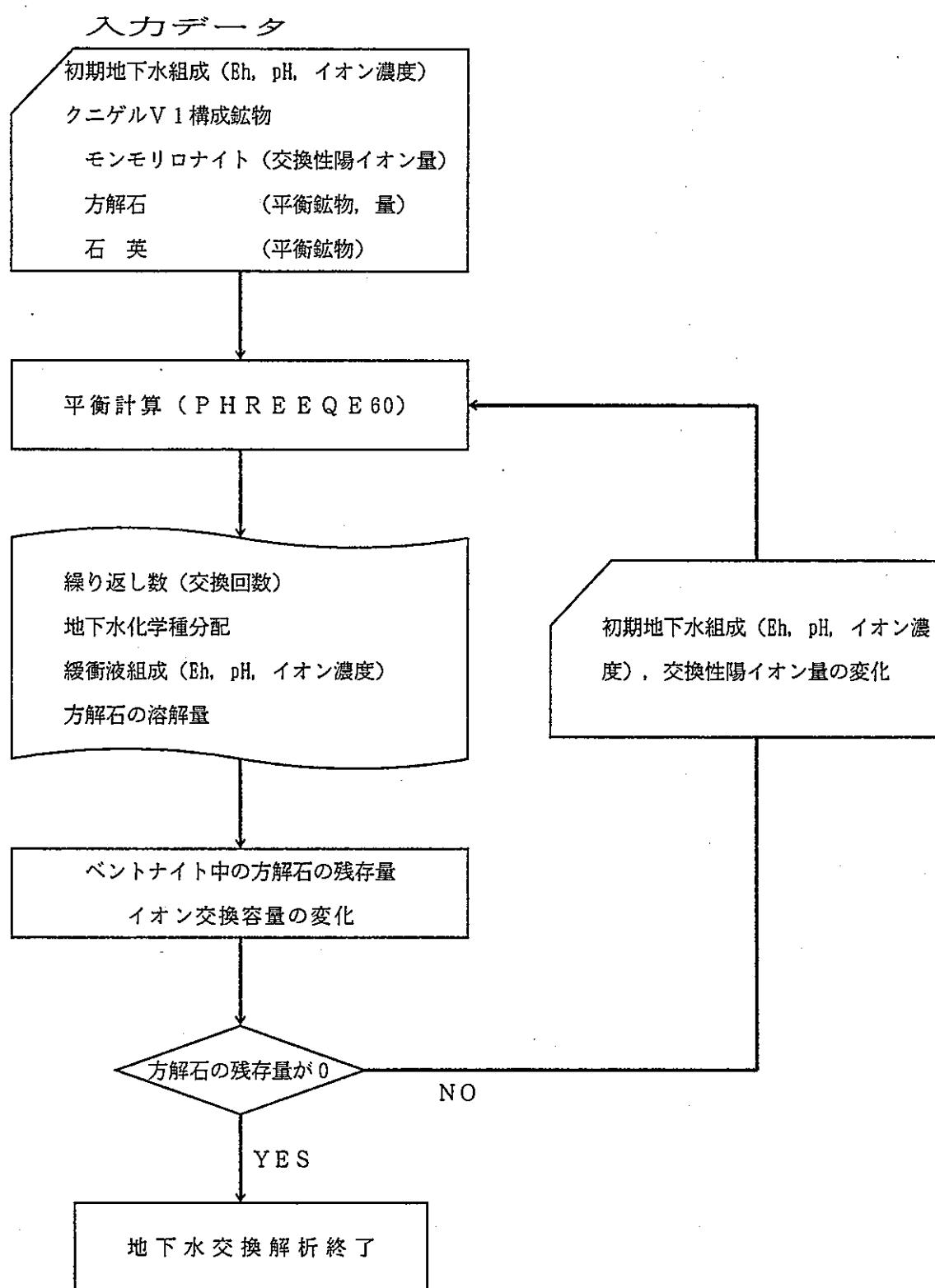


図5.2 地下水交換モデルによる計算のフロー

この条件に基づき方解石を消費するために必要な交換回数を計算した結果、方解石の含有量に従って降水系－高pH型地下水では50回～5000回以上、降水系－低pH型地下水では6回～49回、海水系－低pH型地下水では13回～139回となった。ここで、降水系－高pH型の場合に、交換回数が5000回以上となっているが、この原因是、数千回の交換回数において方解石の溶解量が極めて小さく(10^{-6}mol/l のオーダー)なるためである。

5.1.2 地下水の交換時間

一方、一回あたりの地下水交換時間を評価する簡易モデルとしては、緩衝材空隙体積を単位時間に緩衝材に流入する地下水量で除する方法(Wanner, 1986, 安ほか, 1991)が考えられている。ここでは、空隙水中のイオンの交換を緩衝材の外側境界から取り去られていく物質移動現象としてより直接的にとらえることとした。このため、Chambréら(1982a, b)による円柱状ガラス固化体からの核種の放出率を算出するために導出された解析解を利用した試算を行った。Chambréらのモデルでのガラス固化体をベントナイトに置き換えて、ベントナイト中の HCO_3^- (方解石の溶解により生成される HCO_3^-)の放出率を求め、この逆数から HCO_3^- 全量放出に要した時間を求めた。ただし、岩体の HCO_3^- の初期濃度は0とし、緩衝材の空隙水中の HCO_3^- 濃度は位置によらず一定と仮定した。

以下に、用いた解析解を示す。

① 周辺岩盤が多孔質媒体の場合

移流支配および拡散支配のそれぞれの場合について、解析で考慮する体系の概念図を図5.3に示す。放出率は以下の式で与えられる。

$$f = \frac{8 \cdot \varepsilon \cdot (\tau D U_1)^{1/2}}{(\pi R)^{3/2} \varepsilon_0} (1 + R/L) \quad Pe > 4 \quad (5.1)$$

$$f = \beta \varepsilon \tau D / \varepsilon_0 \quad Pe \ll 4 \quad (5.2)$$

(5.1)式は、移流支配を考慮した円柱状ソースに対するものであり、 $(1 + R/L)$ は、円柱の両端を考慮する際の補正項である。また、(5.2)式は、拡散支配を考慮した球状ソースに対するものである。

ここで、

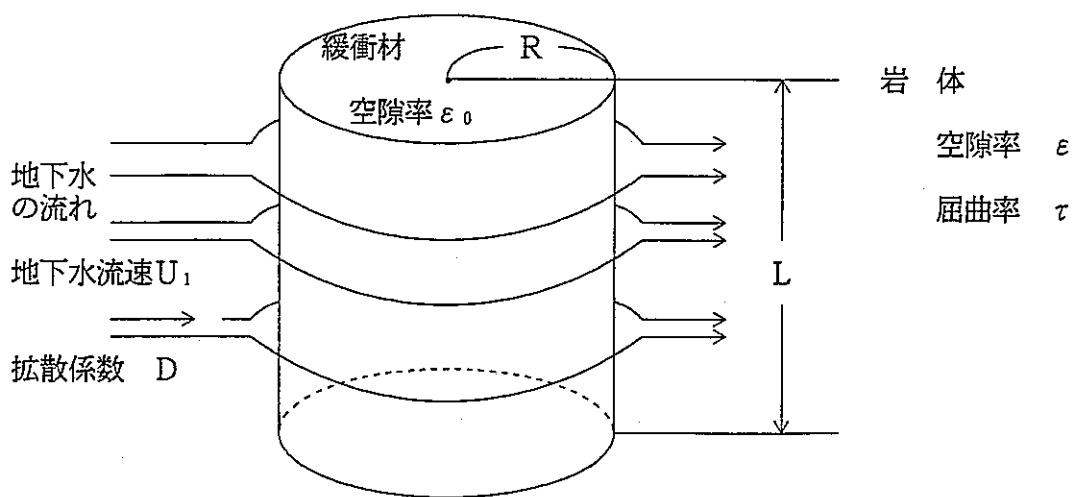
f : 放出率 (fractional release rate) [1/yr]

D : 自由水中の HCO_3^- の拡散係数 [m^2/yr]

U_1 : 岩体中の地下水流速 ($= K_e \cdot \Delta H / \varepsilon$) [m/yr]

K_e : 透水係数 [m/yr]

a) 移流支配



b) 拡散支配 (球状ソースを仮定)

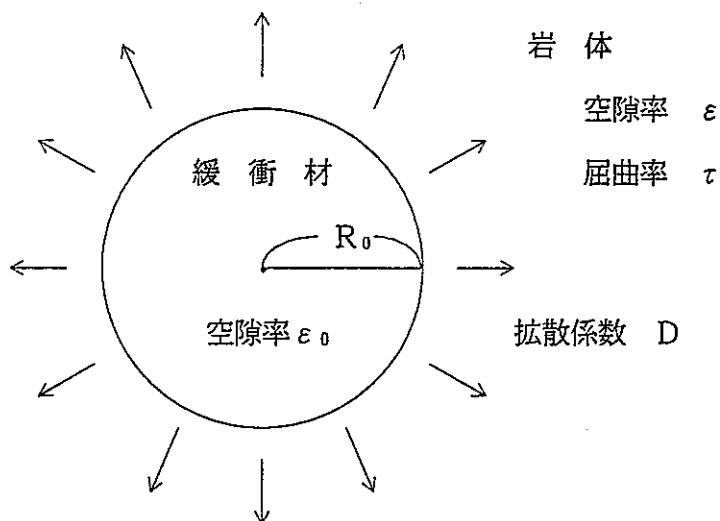


図5.3 外孔質媒体の地下水交換を評価するモデルの概念図

ΔH : 動水勾配

R	: 緩衝材を含めた人工バリアシステムの半径	[m]
L	: 緩衝材を含めた人工バリアシステムの長さ	[m]
β	: 形状因子 (ここでは球の場合の $\beta = 3/R_0^2$ を仮定)	[1/m ²]
R_0	: 人工バリアの体積を球形等価とした時の半径	[m]
ε_0	: 緩衝材の空隙率	
ε	: 岩体の空隙率	
τ	: 岩体の屈曲率	
P_e	: ペクレ数 ($= R U_1 / D \tau$)	

② 周辺岩盤が亀裂性媒体の場合

解析で考慮する体系の概念図を図5.4に示す。放出率は以下の式で与えられる。

$$f = \frac{8 \cdot (2b) \cdot (D \cdot U_2 \cdot R)^{1/2}}{\sqrt{\pi} \cdot \varepsilon_0 \cdot V} \quad (5.3)$$

(5.3) 式は、円柱状のソース(5.1)式から、固化体1本あたりのベントナイトに対し、固化体と垂直な亀裂が1本存在するという設定により導出した。亀裂中は何も充填されていないものと考え、 $\varepsilon = 1$ 、 $\tau = 1$ とした。

ここで、

U_2	: 亀裂内流速 ($= K_e \cdot \Delta H \cdot L / 2b$)	[m/yr]
2b	: 亀裂開口幅	[m]
V	: 緩衝材の体積	[m ³]

多孔質媒体、亀裂性媒体両ケースで使用したパラメータを表5.1に示す。人工バリアの仕様については図1.1に従う。なおガラス固化体1本あたりの緩衝材長さは五月女ら(1992b)による1本あたりの占有面積から7mとした。媒体の透水係数および動水勾配は、畠中ら(1992)による天然バリア中の核種移行解析における設定値を用い、多孔質媒体の空隙率および屈曲率は、凝灰岩の値(佐藤ほか1992)等を参考に設定した。本設定条件でのペクレ数の計算から、解析は拡散支配の条件のもとで行った。

以上の条件に基づき1回の交換で要する時間を計算した結果、多孔質媒体では、空隙率および屈曲率に従い約75~3000年/回、亀裂状媒体では、約35,000年/回となる。

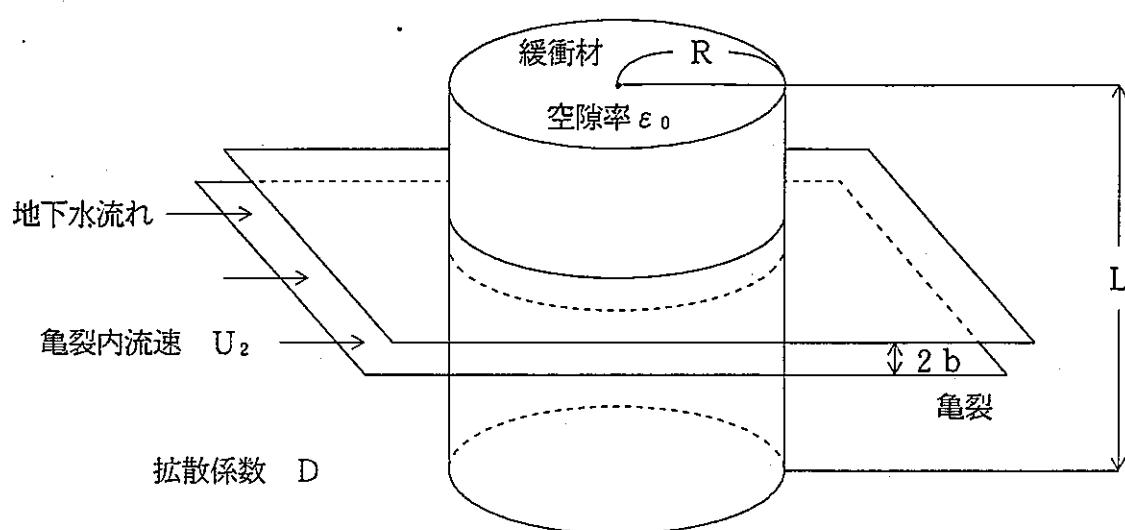


図5.4 亀裂性媒体の地下水交換を評価するモデルの概念図

表 5.1 pH緩衝性維持時間の解析で用いたパラメータ

モ デ ル	パ ラ メ ー タ	設 定 値
多孔質媒体 及び 亀裂性媒体	D [m ² /yr]	6.3 × 10 ⁻² ¹⁾
	ΔH	0.05 ²⁾
	R [m]	1.5
	L [m]	7.0
	ε ₀	0.33
多孔質媒体	K _e [m/s]	2 × 10 ⁻¹⁰ ²⁾
	β [1/m ²]	0.58
	R ₀ [m]	2.28
	τ	0.2 ~ 0.01
	ε	0.6 ~ 0.3
亀裂性媒体	K _e [m/s]	1 × 10 ⁻¹⁰
	V [m ³]	4.95
	z _b [m]	1.0 ⁻⁴

1) Brandberg F., Skagius K. (1991)

Porosity, Sorption and Diffusivity Data Compiled for the SKB 91 Study,
 SKB TECHNICAL REPORT 91-16 (自由水中の拡散係数の値を引用)

2) 畑中耕一郎, 仲島邦彦, 内藤守正, 高瀬博康, 梅木博之, 石黒勝彦 (1992)

天然バリアの核種遅延効果に関する感度解析

動燃事業団技術資料(PNC TN1410 92-086)

5.1.3 緩衝性維持時間

方解石消費に必要な地下水交換回数と一回あたりの地下水交換時間の計算結果から、最小値、最大値を組み合わせることによりpH緩衝性維持時間を概略計算した。地下水交換時間については、亀裂状媒体に対する交換時間よりも多孔質媒体に対する交換時間がより短いので、保守的に多孔質媒体のケースで得られた約75～3000年／回を採用し、各地下水の緩衝性維持時間を求ることとした。その結果、pH緩衝性維持時間は、浸入する地下水組成、方解石の含有量や周囲の岩体の水理条件によって変化し、降水系－高pH型の地下水の緩衝性維持時間は、約4000～1500万年となり、降水系－低pH型地下水は、約500～15万年、海水系－低pH型地下水は、約1000～40万年となった。

5.2 E h 緩衝性維持時間

緩衝材空隙水の酸化還元状態は、浸入する地下水の化学的性質、ベントナイト中の還元性物質の存在、オーバーパックからの鉄の供給等多くの要因に影響される。ここでは、緩衝材中の酸化還元状態は、空隙水中の溶存酸素濃度と二価鉄イオン濃度に支配されると考え、①緩衝材中の黄鉄鉱による溶存酸素の消費、②オーバーパックから拡散してくる二価鉄イオンによる溶存酸素の消費、を考慮した2通りの試算を行った。

緩衝材空隙への酸素の供給形態として、処分場の建設・操業により取り込まれた空気中の酸素および溶存酸素を含む仮想的酸化性地下水の浸入の2つを考える。これらに対して、黄鉄鉱の酸化溶解およびオーバーパックの腐食による二価鉄の供給を考える。

解析の対象となる緩衝材の概念図を図5.5に示す。

解析の際の条件は以下のように設定した。

- ① 初期の空隙水中には、処分場の掘削、閉鎖にともない緩衝材中の空隙に存在していた空気中すべての酸素が溶解していると仮定する。
- ② 緩衝材外側の地下水は、酸化性であり、保守的大気平衡と同等の溶存酸素を含むものと仮定する。溶存酸素は緩衝材外側の地下水から拡散により浸入する。
- ③ 緩衝材内側（オーバーパック／緩衝材界面）での溶存酸素は、オーバーパック腐食生成物との反応により完全に消費され、内側境界での溶存酸素濃度は0とする。

5.2.1 ベントナイト中に含まれる黄鉄鉱(FeS_2)による溶存酸素の消費

黄鉄鉱の酸化溶解反応は3.2.2項に示した(3.7)式に従うため、鉄と酸素の消費量（当量）の割合は鉄1molに対し、溶存酸素 $15/4\text{ mol}$ である。また、この反応は図5.6に示す反応経路に従うと考えられている(Stumm and Morgan, 1981)。この反応速度は、二価鉄イオンの酸化反応である(5.4)式に律速されると仮定し、反応速度は(5.5)式で与えられる(Stumm and Morgan, 1981)として計算を行うこととする。

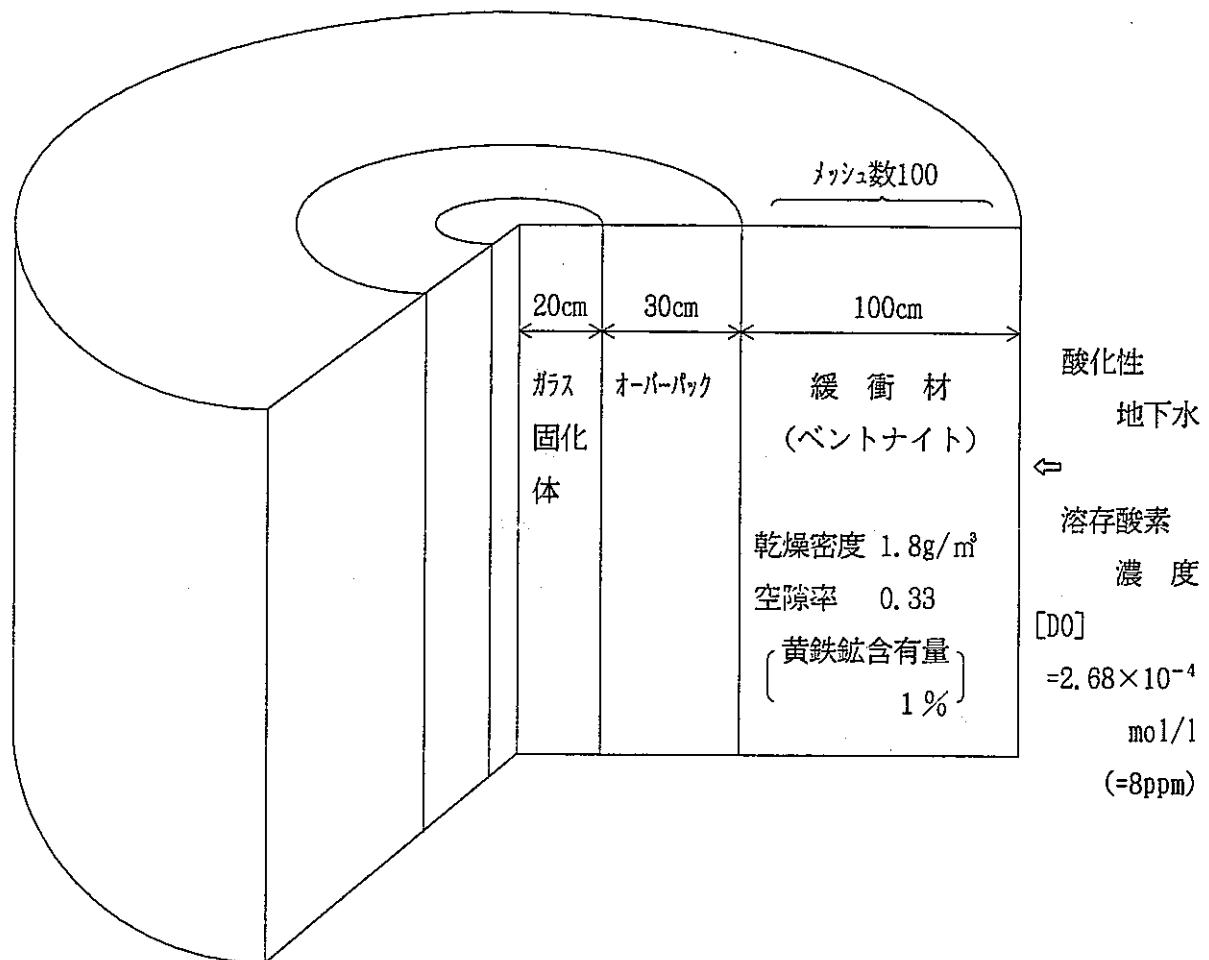


図5.5 E h緩衝性維持時間評価の解析対象概念図

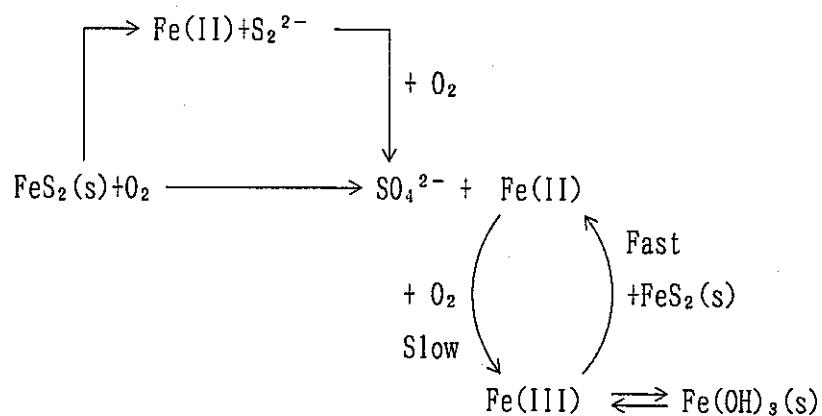
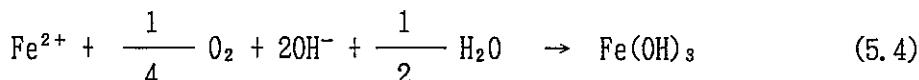


図5.6 黄鉄鉱の酸化反応モデル(Stumm and Morgan, 1981)



$$\frac{d [\text{Fe}^{2+}]}{dt} = -k [\text{Fe}^{2+}] [\text{OH}^-]^2 P_{\text{O}_2} \quad (5.5)$$

ここで, k : 反応速度定数 $(\text{1}/\text{mol}^2 \cdot \text{atm} \cdot \text{min})$

$[\text{Fe}^{2+}]$: Fe^{2+} イオン濃度 (mol/l)

$[\text{OH}^-]$: OH^- イオン濃度 (mol/l)

P_{O_2} : 酸素分圧 (atm)

大気中の溶存酸素濃度はヘンリーの法則に従い酸素分圧に比例するものとして、(5.5)式中の反応速度定数の換算を行う。緩衝材中の溶存酸素は濃度勾配に依存する拡散現象により移行するとする。また、緩衝材中の二価鉄イオンは、溶存酸素との反応で消費された量に相当する量が黄鉄鉱の溶解により速やかに供給されるとし、空隙水中の二価鉄濃度は時間に依存せず一定とする。ただし、計算の際に分割した領域中での二価鉄消費量が、初期の黄鉄鉱存在量（含有量を1%とする）を超えた時刻以降、その領域では、黄鉄鉱の溶解による二価鉄イオンの供給は起こらないこととする。

すなわち、緩衝材中の溶存酸素および二価鉄イオンの濃度変化は(5.6)式および(5.7)式で記述される。

$$\frac{\partial [\text{DO}]}{\partial t} = D_{\text{O}_2} \frac{\partial^2 [\text{DO}]}{\partial x^2} - \frac{15}{4} k' [\text{Fe}^{2+}] [\text{OH}^-]^2 [\text{DO}] \quad (5.6)$$

$$\frac{\partial [\text{Fe}^{2+}]}{\partial t} = D_{\text{Fe}} \frac{\partial^2 [\text{Fe}^{2+}]}{\partial x^2} - k' [\text{Fe}^{2+}] [\text{OH}^-]^2 [\text{DO}] \quad (5.7)$$

ここで、 D_{O_2} : 溶存酸素の実効拡散係数 (cm^2/min)

D_{Fe} : 二価鉄イオンの実効拡散係数 (cm^2/min)

k' : 反応速度定数 $(\text{1}/\text{mol}^3 \cdot \text{min})$

$[\text{DO}]$: 溶存酸素濃度 (mol/l)

$[\text{Fe}^{2+}]$: Fe^{2+} イオン濃度 (mol/l)

$[\text{OH}^-]$: OH^- イオン濃度 (mol/l)

解析に用いたパラメータ、境界条件および初期条件を表5.2に示した。

表5.2 黄鉄鉱の消費によるEh緩衝性維持時間の解析に用いたパラメータおよび設定条件

パラメータ	設定値	設定根拠
D_{O_2} 緩衝材中の溶存酸素の実効拡散係数 [cm ² min ⁻¹]	8.1×10^{-5}	D_{O_2}, D_{Fe} は水の実効拡散係数 D_e の値を代用 $D_e = \varepsilon \tau D_w$ ε : 間隙率 = 0.33 τ : 屈曲率 = 0.18 D_w : 自由水中の拡散係数 = 1.36×10^{-3} [m ² /年]
D_{Fe} 緩衝材中のFe ²⁺ の実効拡散係数 [cm ² min ⁻¹]	8.1×10^{-5}	
k' 二価鉄の酸化還元速度定数 [l ³ min ⁻¹ mol ⁻³]	6.3×10^{16}	二価鉄の酸化還元速度定数 k 8.0×10^{13} [l ² · atm ⁻¹ · min ⁻¹ · mol ⁻²] 酸素のヘンリーリー一定数 (at 25°C) 4.35×10^4 [atm] 酸素分圧 0.21 [atm]として計算
x 緩衝材厚さ [cm]	100	図1.1 参照
[DO] 溶存酸素濃度 [mol/l] 初期条件	8.59×10^{-3}	空隙中に存在する酸素がすべて空隙水に溶解したとする。
境界条件 内側(オーバーパック側) 外側(岩体側)	0 2.68×10^{-4}	大気平衡水
[Fe ²⁺] 二価鉄濃度 [mol/l] 初期条件	2.44×10^{-11}	pH 9.7の溶液に対する、黄鉄鉱-赤鉄鉱との平衡より算出
境界条件 内側(オーバーパック側) 外側(岩体側)	2.44×10^{-11} 0	

反応速度定数 k' は次のように換算される。大気中の酸素分圧を 0.21 atm 、酸素のヘンリー定数を $4.35 \times 10^4 \text{ atm}$ (25°C) とすると、ヘンリーの法則

$$P = E x$$

P : 気相分圧 [atm]

E : ヘンリー定数 [atm]

x : モル分率

より、液中での溶存酸素のモル分率は

$$0.21 / 4.35 \times 10^4 = 4.83 \times 10^{-6}$$

と計算される。1 l 中の水(H_2O)のモル数は、水の分子量が 18 であるので、

$$1000/18 = 55.56 [\text{mol}]$$

であり、大気平衡水の溶存酸素濃度は

$$55.56 \times 4.83 \times 10^{-6} = 2.68 \times 10^{-4} [\text{mol/l}]$$

と計算される。それゆえ、反応速度定数 k' は、

$$k \times 0.21 / (2.68 \times 10^{-4}) = 6.3 \times 10^{16} [\text{l}^3/\text{mol}^3 \cdot \text{min}]$$

となる。

各初期条件、境界条件は以下に示すように決められた。

溶存酸素の初期濃度は、ベントナイト空隙と同体積の空气中に存在する酸素がすべて空隙水中に溶解するものとする。 25°C で酸素分圧を 0.21 atm とすると、空気 1 l 中の酸素のモル数は、

$$\frac{0.21}{22.4} \times \frac{273}{298} = 8.59 \times 10^{-3} [\text{mol/l}_{(\text{air})}]$$

であり、これが、そのまま溶存酸素濃度 [DO] mol/l となる。

また、外側境界の溶存酸素濃度は、大気平衡水であり、溶存酸素濃度は上述のとおり $2.68 \times 10^{-4} \text{ mol/l}$ と計算される。

また、二価鉄イオンの初期濃度は次のように設定した。酸化性の環境では、黄鉄鉱の酸化溶解により水酸化第二鉄 (Fe(OH)_3) が生成し(3.2.2 項(3.7), (3.8) 式参照)，さらに安定な赤鉄鉱(Fe_2O_3) に変化すると考え、黄鉄鉱-赤鉄鉱の平衡を、PHREEQE60 により計算することで求め、 $2.44 \times 10^{-11} \text{ mol/l}$ と設定した。この際の空隙水 pH は 4.2 項に示す降水系地下水に対して気體の吸収を考慮した緩衝材空隙水 (R_o) の値を参考に 9.7 とした。

以上の条件のもとに、緩衝材中の溶存酸素濃度の変化および黄鉄鉱の消費量を計算した。解析のための計算プログラムを付録B-2に示す。

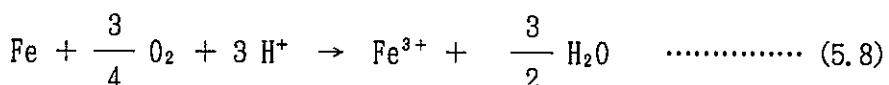
初期に存在していた溶存酸素は緩衝材中に存在する黄鉄鉱によりすべて消費され、黄鉄鉱が存在する間は緩衝材の外側部分を除き、溶存酸素は 10^{-10} mol/l以下であり、還元性となる。消費される二価鉄イオン量の経時変化を図5.7に示す。ベントナイト中の黄鉄鉱含有量を1%とすると、解析対象領域（高さは単位高さ(1cm)）中には二価鉄イオンが約9.4mol存在している。この全量が消費されるのに要する時間はおよそ 8.4×10^4 年と計算される。

安ら(1991)は、黄鉄鉱の消費による還元性維持時間を計算し、厚さ30cmの緩衝材中の黄鉄鉱の消費に要する時間を 1×10^7 年としている。安ら(1991)の計算においては、化学反応速度、溶存酸素の拡散速度は考慮せず、黄鉄鉱の消費は、(3.7)式の反応を化学量論的に扱い、地下水交換時間のみを考慮した回分式モデルである。一方、本計算においては、酸化性の地下水が浸入し続けるという仮定をしているため、緩衝材外側で常に大気平衡の酸化性地下水と二価鉄イオンが接触していることになり、この部分での二価鉄イオンの消費が緩衝材内部の領域と比較し、非常に速く進行することから、消費に要する時間が短く計算される。

5.2.2 オーバーパックから拡散してくる二価鉄イオンによる溶存酸素の消費

緩衝材に溶存酸素が含まれた酸化性の地下水が浸入し続けるとすると、長期間の後には緩衝材中の黄鉄鉱は消失することが考えられるが、緩衝材内側にはオーバーパックの腐食生成物が存在している。そこで、オーバーパックの腐食生成物による還元性維持機能についての試算を行った。

金属鉄の酸化は下記の(5.8)式に従うと仮定し、鉄と酸素の消費量（当量）の割合は鉄1molに対し、溶存酸素 $3/4$ molであるとする。また、この反応の速度は、前項と同様に二価鉄イオンの酸化反応である(5.4)式に律速されると仮定し、反応速度は(5.5)式で与えられることとして取り扱う。



緩衝材中の溶存酸素濃度の変化は(5.9)式で、二価鉄イオン濃度は前項と同様に(5.7)式で記述される。

$$\frac{\partial [\text{DO}]}{\partial t} = D_{\text{O}_2} \frac{\partial^2 [\text{DO}]}{\partial x^2} - \frac{3}{4} k' [\text{Fe}^{2+}] [\text{OH}^-]^2 [\text{DO}] \quad (5.9)$$

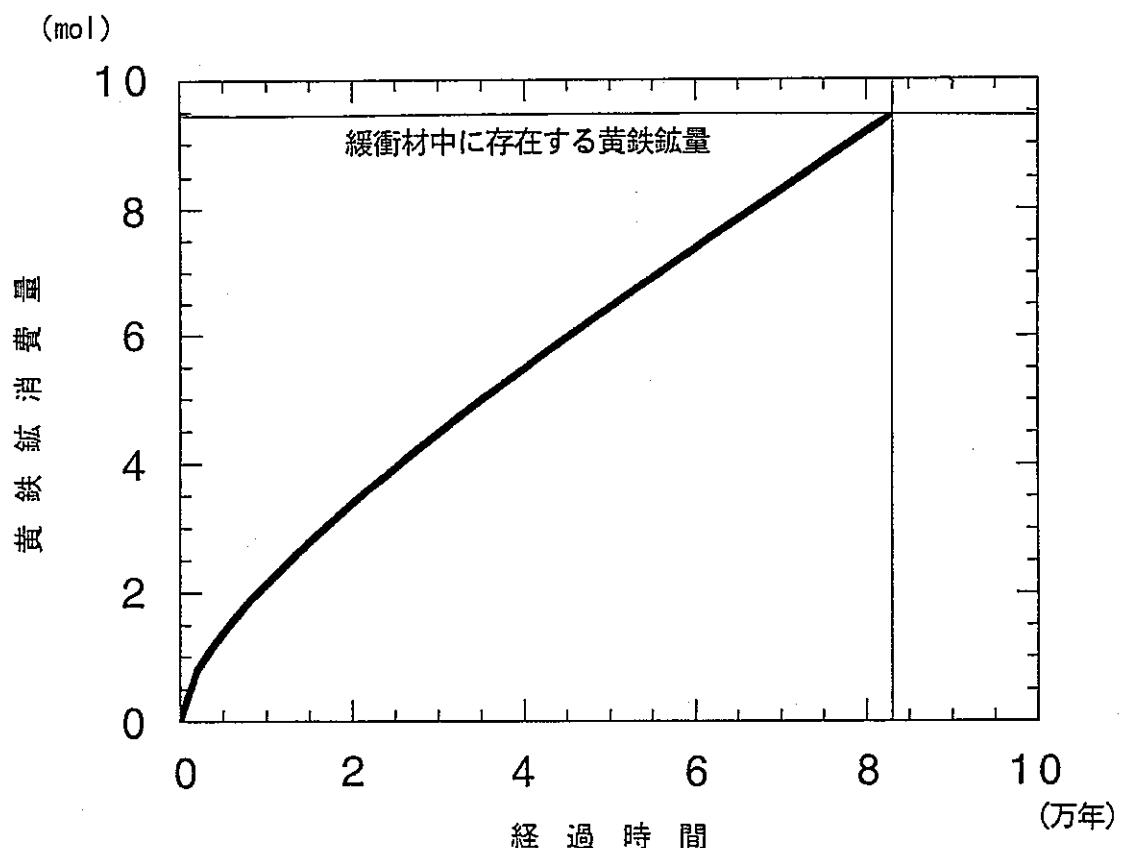


図5.7 緩衝材中の黄鉄鉱消費量の経時変化
(高さ 1 cmあたり)

ここで,	D_{O_2}	: 溶存酸素の実効拡散係数	[cm ² /min]
	k'	: 反応速度定数	[l/mol ² atm min]
	[DO]	: 溶存酸素濃度	[mol/l]
	[Fe ²⁺]	: Fe ²⁺ イオン濃度	[mol/l]
	[OH ⁻]	: OH ⁻ イオン濃度	[mol/l]

解析に用いた入力パラメータ、初期条件および境界条件は二価鉄濃度を除き、前項(表5.2)と同じである。本解析では緩衝材中の二価鉄鉱物の存在は考慮しないこととし、緩衝材中の二価鉄イオンの初期濃度を0 [mol/l]とした。また、外側境界条件は0 [mol/l]、内側境界条件は平衡固相としてFe(OH)₂を仮定し、Fe(OH)₂の溶解度積 ($K_{sp}=[Fe][OH]^2=1.5\times10^{-16}$)を用いて、設定したpHに対してそれぞれ与えることとした。空隙水のpHは、4.2項に示した降水系および海水系での気体の吸収を考慮した緩衝材空隙水 (B_0) の値より8.6および9.7と設定した。解析に用いた計算プログラムは前項とはほぼ同様であり、その違いを付録B-2中に示す。

オーバーパックの腐食生成物による二価鉄と、浸入してくる地下水中の溶存酸素を考慮した緩衝材中の酸化還元状態の定常状態に関する解析には、中山ら(1992)の報告があるが、本解析においては、緩衝材中の二価鉄イオン、溶存酸素濃度の経時変化および緩衝材中で消費される二価鉄イオンの量についても併せて計算を行うこととした。

図5.8にpH 8.6での解析結果を示す。約300年で定常状態となるが、還元状態が維持されるのはオーバーパックの近傍に限られ、緩衝材中には溶存酸素が存在し酸化性の状態となる。この結果はpH 9.7においても同様であった。

緩衝材内側（オーバーパックとの境界）における二価鉄イオン濃度はpHに大きく依存し、pHが低いと濃度は高くなる。そこで、pHの影響を調べるために、空隙水のpHを低く設定した場合についての解析を追加的に行った。一例として図5.9にpH 7.5での解析結果を示す。pH 8.6とくらべ、緩衝材内側での二価鉄濃度は3桁程度高い。平衡到達時間は約300年であるが、緩衝材のほぼ全領域にわたって二価鉄イオンが存在し、還元環境に維持されることがわかる。

単位高さの緩衝材領域内で消費される二価鉄イオン量は定常状態において、pH 9.7, 8.6, 7.5のそれぞれに対し、 2.82×10^{-3} mol/100年, 4.21×10^{-3} mol/100年, 1.57×10^{-2} mol/100年であり、単位高さ(1 cm)に存在する厚さ30cmのオーバーパックの全鉄が消費されるのに要する時間はそれぞれ約1千万年、約700万年、約200万年と計算される。

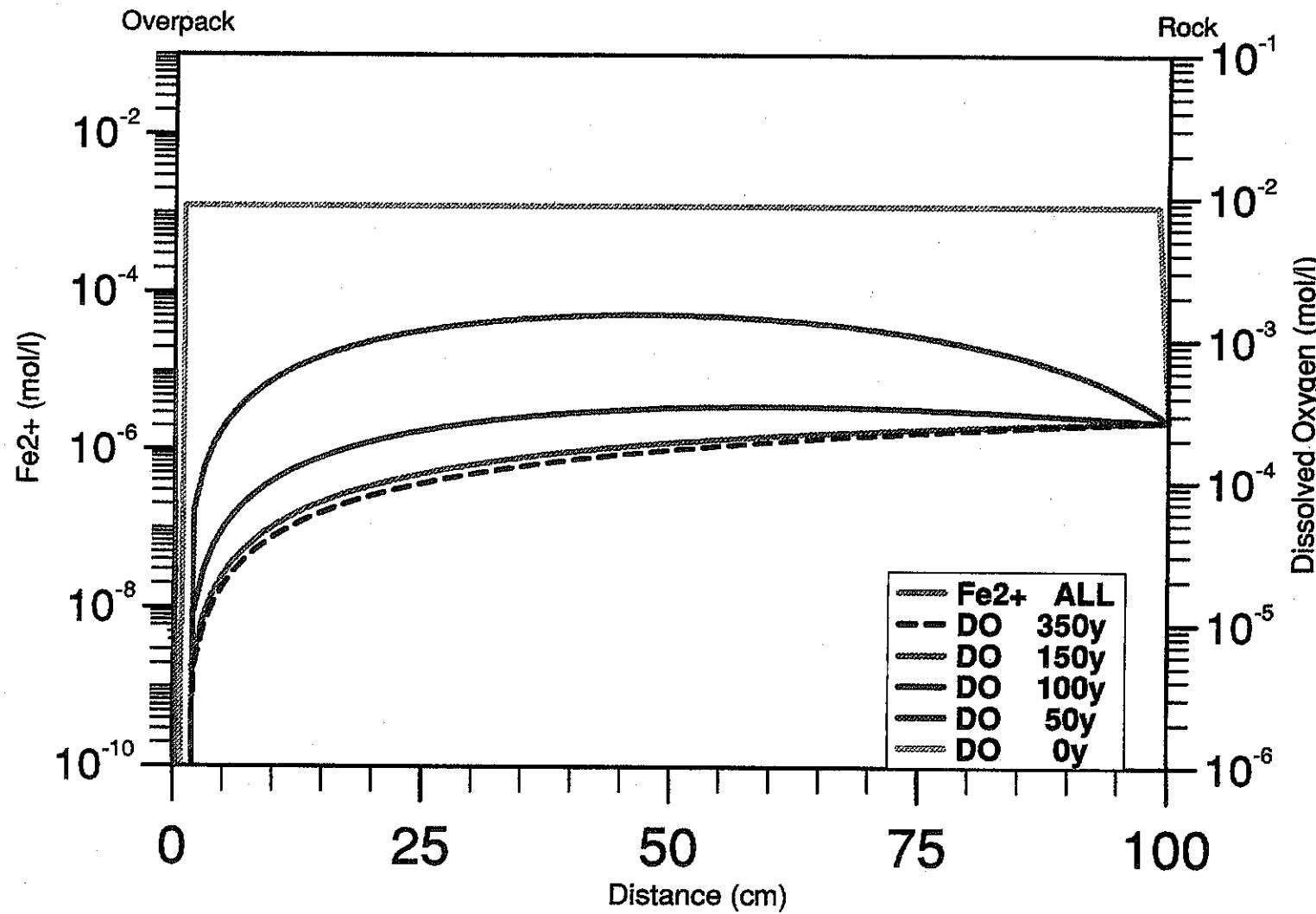


図5.8 緩衝材中の溶存酸素濃度および二価鉄イオン濃度プロファイル (pH 8.6)

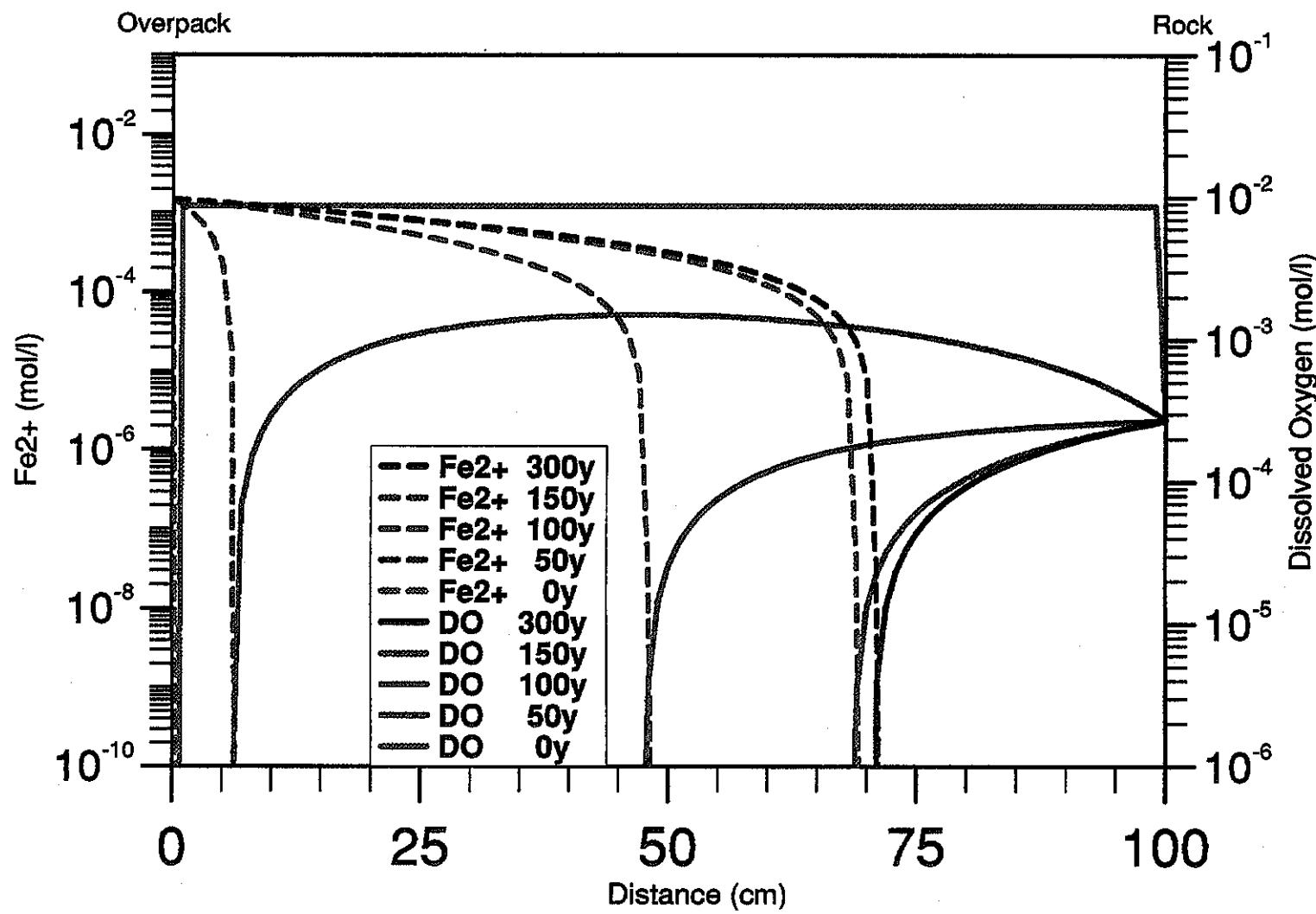


図 5.9 緩衝材中の溶存酸素濃度および二価鉄イオン濃度プロファイル (pH 7.5)

6. まとめ

処分環境下におけるガラス固化体からの核種の溶出や溶解度等の核種移行挙動を評価する上で重要となる、ニアフィールドにおける地下水の化学的特性の変化を把握するため、地下水と人工バリア材料との化学的相互作用に関するモデル化を行った。

まず、モデル化のための考え方を整理し、ベントナイト-地下水反応に関するモデルについては、ベントナイト-水反応実験の結果とモデル計算の対比を行い、ベントナイトの構成鉱物であるモンモリロナイトのイオン交換および随伴鉱物の溶解平衡に基づくモデルを用いることで、ベントナイトによる化学的緩衝性が概ね説明できることを示した。次に、このモデルを用いて、処分環境下における地下水-ベントナイト-オーバーパックの相互作用について解析を行い、ニアフィールドにおける地下水の化学的特性の変化を明らかにした。さらにベントナイトおよびオーバーパックによるpH, Ehの化学的緩衝性維持時間について概略的な検討を行った。

解析の結果、地下水は、ニアフィールドにおいて、降水系地下水においては、pHは値の幅が狭くなり上方へシフトすること、Eh(pe)は値の幅が狭くなり下方へシフトすること、液中炭酸濃度、ナトリウム濃度等が増加することが、海水系地下水においては緩衝性の幅の変化はあまり顕著ではないことが定量的に明らかにされた。

化学的緩衝性維持時間に関しては、pH緩衝性について、ベントナイト中方解石が消費される時間を地下水交換モデルで計算を行った結果、その時間は地下水組成、方解石含有量および周辺岩盤の水理条件に依存し、設定された4種類の地下水のうち3種類の地下水について、約500年～40万年と計算された。また、Eh緩衝性については、溶存酸素と二価鉄イオンの酸化還元反応とベントナイト中の拡散による移行を考慮した予察的解析を行った結果、初期に存在する溶存酸素は黄鉄鉱により消費された。また、仮想的に酸化性地下水が浸入し続けた場合には、pHに依存して緩衝材中の酸化還元状態は変化するものの、オーバーパックの存在により、オーバーパックより内側においては数百万年以上の長期にわたり還元性が維持されるという結果となった。

7. 今後の課題

ベントナイトの主成分であるモンモリロナイトは、アルミニケイ酸塩鉱物であり、固溶体である。Wannerモデルによるイオン交換平衡ではモンモリロナイトの骨格部分を仮想サイトで置き換えているが、厳密にはスメクタイトの端成分を加味した溶解・沈澱反応による解釈が求められている (Arthurほか, 1991)。ただし、現時点においては吸着イオンの交換とスメクタイト骨格の変化を区別した取扱いが困難であること、スメクタイト各端成分の熱力学データが不備であることなど、問題点も多く残されている。また、より詳細に現象を理解し、そのモデル化を行うために、スメクタイトや随伴鉱物の溶解速度データの整備やより処分環境に近い長期の条件でのモデル確証データの取得に努めることが重要である。

また、ベントナイトには有機物を含んでおり (Ishikawaほか1990)、地下水と有機物との相互作用についても把握する必要がある。さらに、現在の一連の評価は25°Cの温度条件下で行っているが、処分環境は、ガラス固化体の発熱や地温の影響により高温であることが予想されるため、処分環境の温度変化に対応させたベントナイト空隙水組成の評価を行う必要があり、ベントナイト構成成分の温度依存性に関する熱力学データの取得、蓄積を図ることも重要であろう。

pHおよびEhの緩衝性維持時間に関する評価については、pH及びEhを支配する化学種の拡散、並びに炭素鋼、黄鉄鉱等の溶解速度を考慮した連成解析を行うため、評価に必要となる反応速度定数等の基本的なデータの蓄積・整備を行うとともに、解析モデルの確認試験を実施していくことが課題である。また、このような評価を行う上では、ニアフィールド岩体での地下水流速、周辺岩体の持つ酸化還元性維持機能、酸化性地下水の浸入可能性等に関する適切な情報が与えられることも必要である。

なお、オーバーパックの腐食により発生する水素によるベントナイト空隙水の化学的性質への影響についても今後オーバーパックの腐食反応との関連を含めてその物理的・化学的挙動について理解・予測する事が必要である。

8. 謝 辞

本報告書の作成にあたっては、現日揮株式会社高瀬博康氏には解析に関して貴重な御助言・御協力を頂いた。本社環境技術開発推進本部処分研究グループ主幹の佐々木憲明氏には本報告書の作成全般にわたり御助言を頂いた。東海事業所環境技術開発部地層処分開発室の川崎学、寺門一馬、高橋知子の各氏には実験によるデータの取得において御協力を頂いた。同、岩田浩氏には計算に関して御協力並びに貴重な御助言を頂いた。また、本社環境技術開発推進本部処分研究グループの内藤守正氏には編集に関して御協力を頂いた。ここに、各位に感謝の意を表します。

尚、本報告のうち、ベントナイトの緩衝性の維持時間の計算の一部は、動力炉・核燃料開発事業団の委託研究として、日揮株式会社により実施されたものである。

9. 参考文献

- Arthur, R. C. and Apted, M. J. (1991)
Analysis of Buffering in Bentonite-Groundwater Systems, Proceedings of the
Second Annual International Conference, Las Vegas, Nevada, pp.1390-1395
- 安俊弘, 池田孝夫, 大江俊昭, 菅野毅, 千葉保, 塚本政樹, 中山真一, 長崎晋也, 牧野祐子
(1991)
高レベル放射性廃棄物の地層処分における人工バリアの性能評価モデル(2),
第7回放射性廃棄物セミナー資料集, 日本原子力学会 pp. 129-172
- Brown, P. L., Haworth, A., Sharland, S. M. and Tweed, C. J. (1990)
HARPHRQ:A Geochemical Speciation Program based on PHREEQE, UK Nirex Ltd Report
NSS/R188
- Chambré, P. L., Pigford, T. H., Sato, Y., Fujita, A., Lung, D., Zavoshy, S.
and Kobayashi, R. (1982a)
Analytical Performance Models, LBL-14842. University of California, Lawrence
Berkeley Laboratory, Berkeley
- Chambré, P. L., Pigford, T. H. and Zavoshy, S. (1982b)
Solubility-Limited Fractional Dissolution Rate of Vitrified Waste in
Groundwater, Transactions of the American Nuclear Society, 43, 111.
- Grambow, B. (1987)
Nuclear Waste Glass Dissolution : Mechanism, Model and Application, Report to
JSS Project Phase IV, JSS-TR-87-02
- 畠中耕一郎, 仲島邦彦, 内藤守正, 高瀬博康, 梅木博之, 石黒勝彦 (1992)
天然バリアの核種遅延効果に関する感度解析
動燃事業団技術資料(PNC TN1410 92-086)
- Ishikawa, H., Amemiya, K., Yusa, Y. and Sasaki, N. (1990)
Comparison of Fundamental Properties of Japanese Bentonites as Buffer
Material for Waste Disposal, Sciences Géologiques, Proceedings of the 9th
International Clay
Conference, Strasbourg, 1989, Vol. III, pp. 107-115
- 中山真一, 安俊弘, 池田孝夫, 大江俊昭, 河西基, 塚本政樹, 木村英雄, 宗像雅弘 (1992)
高レベル放射性廃棄物の地層処分における人工バリアの性能評価モデル
日本原子力学会誌 Vol. 34, pp. 342-364
- 大江俊昭, 塚本政樹(1990)
高レベルガラス固化体の地層処分時の長期挙動予測, 電力中央研究所報告 T89022

- Parkhurst, D. L., Thorstenson, D. C. and Plummer, L. N. (1980)
PHREEQE-A Computer Program for Geological Calculation., U. S. GEOLOGICAL SURVEY,
Water-Resources Investigation, 80-96
- Plummer, L. N., Parkhurst, D. L. and Wigley, T. M. L. (1979)
Critical Review of the Kinetics of Calcite Dissolution and Precipitation
In Jenne, E. A. (ed.), Chemical Modelling in Aqueous Systems. ACS Symposium Series 93, pp.537-573
- Plummer, L. N., Parkhurst, D. L. and Wigley, T. M. L. (1978)
The Kinetics of Calcite Dissolution in CO₂-Water Systems at 5° to 60° and
0.0 to 1.0 atm CO₂. Amer. J. Sci. 278, pp.179-216
- 佐藤治夫, 芦田敬, 小原幸利, 油井三和, 梅木博之, 石黒勝彦(1992)
ベントナイト及び岩石中での核種の実効拡散係数
動燃事業団技術資料 (PNC TN8410 92-164)
- 五月女 敦, 藤田 朝雄, 原 啓二, 納多 勝(1992a)
地層処分場の空洞安定性の検討
動燃事業団技術資料 (PNC TN1410 92-055)
- 五月女 敦, 藤田 朝雄, 原 啓二, 納多 勝(1992b)
地層処分場の熱的安定性の検討
動燃事業団技術資料 (PNC TN1410 92-054)
- 鈴木英明, 柴田雅博, 山形順二(1992)
緩衝材の特性試験 (I)
動燃事業団技術資料 (PNC TN8410 92-057)
- Stumm, W. and Morgan, J. J. (1981)
Aquatic Chemistry, 2nd Ed., John Wiley & Sons, Inc.
- Snellman, M., Uotila, H. and Rantanen, J. (1987)
Laboratory and Modelling Studies of Sodium Bentonite Groundwater Interaction,
Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol. 84, pp.781-790
- Wanner, H. (1986)
Modelling Interaction of Deep Groundwater with Bentonite and Radionuclide
Speciation, EIR-Bericht Nr. 589
- 油井三和, 武田精悦, 小室光世, 牧野仁史, 濵谷朝紀, 梅木博之, 石黒勝彦 (1992)
高レベル廃棄物地層処分システムの性能評価における地下水の地球化学的特性に関するモデル化
動燃事業団技術資料 (PNC TN8410 92-166)

付録A-1 ベントナイト中の層間イオン量およびWannerモデルで用いた平衡定数の導出

本報告書におけるモンモリロナイトのイオン交換平衡定数は(log K) は、 Wanner(1986)の方法に従い、以下の手順に基づいて決定された。なお、平衡定数の導出にはベントナイトの層間イオン量の値等の実験データが必要であるため、利用したデータに関する実験手法等についても併せて記載した。

1. 平衡浸漬液組成および層間陽イオンに関する試験

1.1 試験試料について

報告書での評価の対象とするベントナイトはクニゲルV 1（山形県月布産、クニミネ工業社製）であるが、クニゲルV 1に対する試験では、共存不純物の影響により、層間陽イオンの測定が困難であるため、ここでのデータ取得には、精製ベントナイトであるクニピアF（山形県月布産、クニミネ工業社製）を利用している。本製品はクニゲルV 1と同一の鉱床より産出するもので、水ひ工程により不純物の除去を行ったものである。したがって、両製品のイオン交換特性等は同一であると考えられる。クニピアFの鉱物分析の値を付表A 1-1に示す。

クニゲルV 1 浸漬試験結果をモデルによる計算と対比する際には、クニピアFのデータを、クニゲルV 1 のモンモリロナイト含有量（表3.3）から換算し、クニゲルV 1 のデータとしている。

1.2 平衡浸漬液組成

実験方法および結果は次の通りである。

実験方法

ベントナイトを一定期間蒸留水に浸漬し、分離後、試験液をpH測定および元素分析に供する。溶液の平衡判定はpHの値が一定となったことをもって平衡とした。

実験条件

試料：クニピアF、 試験液：蒸留水、 浸漬期間：171日（静置） 温度：室温

水/ベントナイト比（液固比）：50 ml/g、 霧囲気：大気条件

浸漬後固液分離方法：遠心分離後、限外ろ過（分画分子量 10,000）

元素分析方法：原子吸光法(Na, K, Cs, Sr), 誘導プラズマ発光分光法(Ca, Mg, Fe, Al, Si, B)

イオンクロマトグラフィー(F⁻, Cl⁻, SO₄²⁻)

実験結果

各元素の分析結果を付表A 1-2 に示す。

1.3 層間陽イオン量測定

測定方法および結果は次の通りである。

測定方法

ベントナイトを 80 %エタノールで洗浄し、乾燥粉碎する。ベントナイトと石英砂を混合し、カラムに詰め、酢酸アンモニウム溶液により、交換性陽イオンを溶脱する。カラム透過液は定容にした後、元素分析に供する。

測定条件

試料：クニピアF 約0.5 g（洗浄乾燥後精粹），石英砂（酸洗浄渣）約5 g

溶離液: 1M 酢酸アンモニウム溶液, 流量: 100ml程度, 流速: 12~14ml/h

元素分析方法：1, 2 項に同じ

測定繰り返し数：5

測定結果

試験結果とその平均値を付表A-1-3に示す。

2. 平衡定数の導出

2.1 平衡時の層間陽イオン組成の導出

1. 2項で示した平衡液中の陽イオンのうち、Na, K, Mg イオンについては、すべてモンモリロナイト層間からイオン交換により溶出したと考える。この際、これらのイオンと交換する液中陽イオンとして、随伴鉱物である方解石の溶解により溶出した Ca^{2+} イオンを考える。

上述の平衡浸漬液作成試験では液固比条件が 50ml/g であることにより、1 l の液中に存在するベントナイトは 20g である。

これらのことより、1 l の液中に存在する各層間陽イオン量は、初期状態と平衡状態において、付表A 1 - 4 に示す通り変化することとなる。

2.2 平衡定数の導出方法

ベントナイトのイオン交換平衡反応としては以下の4つの反応を仮定した。



$K(i)$: イオン交換平衡定数

Z^- : ベントナイト表面のマイナスの電荷を帯びたイオン交換サイト
(仮想的溶液化学種)

また、ベントナイトのイオン交換サイトには必ず陽イオンが吸着されているものと仮定した。つまり、陽イオンが吸着されていない交換サイトは事実上存在しないものとして ($\{Z^-\} \approx 0$; $\{i\}$ は化学種 i の活動度), (1)式の $K(1)$ の値を以下のように定めた。

$$\log K(1) = \log \{ZNa\} - \log \{Z^-\} - \log \{Na^+\} = \underline{20.0} \quad (5)$$

(2)~(4)式を(5)式のように変形すると以下のようになる。

$$\log K(2) = \log \{ZK\} - \log \{Z^-\} - \log \{K^+\} \quad (6)$$

$$\log K(3) = \log \{Z_2Mg\} - 2 \log \{Z^-\} - \log \{Mg^{2+}\} \quad (7)$$

$$\log K(4) = \log \{Z_2Ca\} - 2 \log \{Z^-\} - \log \{Ca^{2+}\} \quad (8)$$

各化学種の濃度と活量との関係は下式の通りである。

$$\log \{i\} = \log [i] + \log f(i) \quad (9)$$

$[i]$: 濃度

$f(i)$: 活量係数

(9)式を(5)~(8)式に代入し、整理する。

$$\log K(1) = 20.0 \quad (10)$$

$$\begin{aligned} \log K(2) &= \log K(1) + \log [Na^+] - \log [ZNa] - \log [K^+] + \log [ZK] \\ &\quad + \log f(Na^+) - \log f(ZNa) - \log f(K^+) + \log f(ZK) \end{aligned} \quad (11)$$

$$\begin{aligned} \log K(3) &= 2\log K(1) + 2\log [Na^+] - 2\log [ZNa] - \log [Mg^{2+}] + \log [Z_2Mg] \\ &\quad + 2\log f(Na^+) - 2\log f(ZNa) - \log f(Mg^{2+}) + \log f(Z_2Mg) \end{aligned} \quad (12)$$

$$\begin{aligned} \log K(4) &= 2\log K(1) + 2\log [Na^+] - 2\log [ZNa] - \log [Ca^{2+}] + \log [Z_2Ca] \\ &\quad + 2\log f(Na^+) - 2\log f(ZNa) - \log f(Ca^{2+}) + \log f(Z_2Ca) \end{aligned} \quad (13)$$

$[Na^+]$, $[K^+]$, $[Mg^{2+}]$, $[Ca^{2+}]$ の値は付表A 1 - 2 から得られる。

また、付表A 1 - 2 から、イオン強度 $I = 3.5 \times 10^{-3}$ (mol/l) となる。

活量係数の計算についてはDaviesの式による(Wanner 1986)。

$$\log f(i) = z(i)^2 \cdot \gamma(T, I)$$

$$\gamma(T, I) = -1.82 \cdot 10^6 \cdot (\varepsilon \cdot T)^{-3/2} \left\{ \frac{\sqrt{I}}{1 + \sqrt{I}} - 0.2 \cdot I \right\}$$

$z(i)$: 化学種 i の価数

ε : 純水の誘電率 ($= 169.1 - 0.301 \cdot T$)

T : 絶対温度 (K)

I : 溶液のイオン強度 (mol/l)

結果として $\gamma(T, I) = -0.028$ が得られ、各化学種の活量係数は以下のようになる。

$$\log f(ZNa) = \log f(ZK) = \log f(Z_2Mg) = \log f(Z_2Ca) = 0$$

$$\log f(Na^+) = \log f(K^+) = -0.028$$

$$\log f(Ca^{2+}) = \log f(Mg^{2+}) = -0.110$$

これらの結果を(11)～(13)式に代入し整理する。

$$\log K(2) = 20.0 + \log [Na^+] - \log [ZNa] - \log [K^+] + \log [ZK] \dots \quad (14)$$

$$\log K(3) = 40.0 + 2\log [Na^+] - 2\log [ZNa] - \log [Mg^{2+}] + \log [Z_2Mg] + 0.056 \dots \quad (15)$$

$$\log K(4) = 40.0 + 2\log [Na^+] - 2\log [ZNa] - \log [Ca^{2+}] + \log [Z_2Ca] + 0.056 \dots \quad (16)$$

付表A 1 - 4 より、 $[ZNa]$, $[ZK]$, $[Z_2Mg]$, $[Z_2Ca]$ を求め、(14)～(16)式にそれらの値を代入し、 $\log K(2) \sim \log K(4)$ を求める。

2.3 計算結果

以上のようにして得られた $\log K$ の値を付表A 1 - 5 に示す。

参考文献

- 1) Wanner, H. (1986)
Modelling Interaction of Deep Groundwaters with Bentonite and Radionuclide
Speciation. EIR-Bericht Nr. 589
- 2) クニミネ工業株式会社 私信

付表A 1 - 1 クニピアFの鉱物組成²⁾

鉱 物	含 有 量 (%)
モンモリロナイト	9.9 %
石 英	0.5 %
カルサイト	0.5 %

X線回折および化学分析値からの総合評価による。

付表A 1 - 2 ベントナイト平衡液試験結果(限外濾過後)

分析元素	濃度(ppm)
Na	100
K	0.6
Ca	0.2
Mg	0.3
Fe	0.3
Cs	< 0.02
Sr	< 0.005
Al	1.9
Si	18.0
B	< 0.2
F ⁻	0.5
Cl ⁻	5.0
SO ₄ ²⁻	60.0
pH	9.7

付表A 1 - 3 層間陽イオン分析結果

層 間 陽イオン種	Na	K	Mg	Ca	合計 (meq/100g)
測	107.2	1.3	4.2	19.5	132.2
定	108.3	1.2	4.0	19.5	133.0
値	108.7	1.2	2.1	17.5	129.4
	106.5	1.1	2.7	17.4	127.7
	108.7	1.2	2.5	17.5	129.9
平 均	107.9	1.2	3.1	18.3	130.5
	82.7%	0.9%	2.4%	14.0%	100%

付表A 1 - 4 平衡時の層間陽イオンの計算

層間陽イオン種	Na	K	Mg	Ca	合計
初期層間陽イオン量 (meq/l)	21.58	0.24	0.62	3.66	26.10
液中への浸出量 (meq/l)	4.35	1.53E-2	2.46E-2	—	—
平衡時層間陽イオン量 (meq/l)	17.23	0.22	0.60	*	26.10

*平衡時に層間に存在するCaイオン量は初期の総イオン量からNa, K, Mg イオンの量を減じ、 8.05 meq/l と求められる。

付表A 1 - 5 W a n n e r モデルによる平衡定数の計算結果

	平 衡 定 数
log K(1)	2 0. 0
log K(2)	2 0. 6
log K(3)	4 0. 2
log K(4)	4 1. 8

付録A-2 ベントナイト-水反応実験

本報告書においてWannerモデルによる計算値と比較を行った大気中でのクニゲルV 1-蒸留水反応実験は以下の方法により行った。

2.1 実験概要

粉末状のベントナイトを蒸留水とボリ瓶内で混合する。一定時間振とうした後に固液の分離を行い、元素濃度・pHの測定に供した。実験条件を以下に示す。また、実験の手順の流れ図を付図A 2-1に示す。

2.2 実験条件

試料：クニゲルV 1, 試験液：蒸留水, 浸漬期間：14日（振とう）, 温度：25°C

水/ベントナイト比（液固比）：0.3 ~ 500 ml/g, 霧囲気：大気条件

浸漬後固液分離方法：遠心分離後、限外ろ過（分画分子量 10,000）

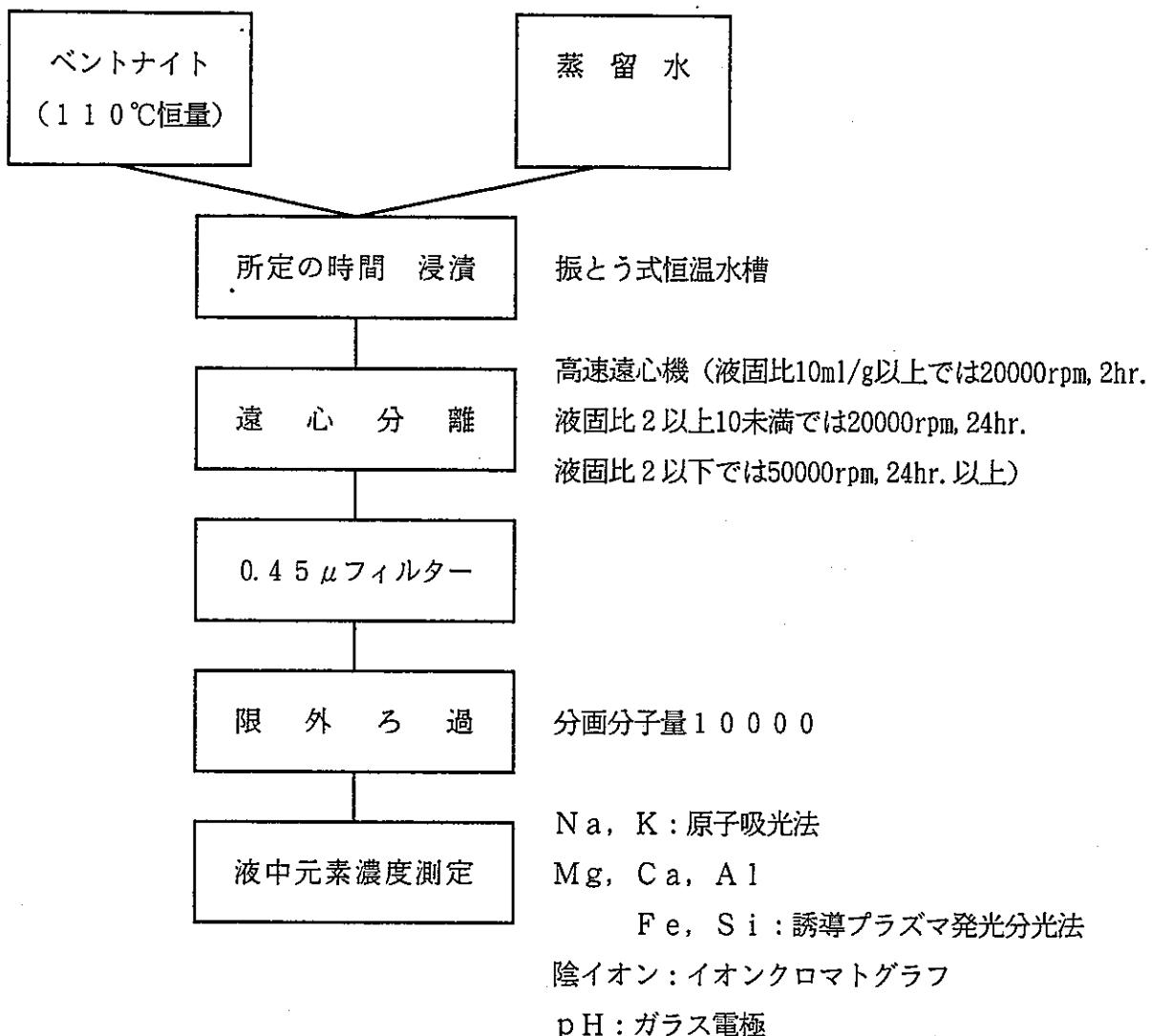
元素分析方法：原子吸光法(Na, K), 誘導プラズマ発光分光法(Ca, Mg, Fe, Al, Si)

イオンクロマトグラフィー(Cl⁻, SO₄²⁻, HCO₃⁻+CO₃²⁻)

ガラス電極法 (H⁺)

2.3 実験結果

得られた実験結果を本報告書の図3.1に示す。なお、Al及びFeの濃度はいずれも検出限界(Alで0.2ppm, Feで0.3ppm)以下であった。



付図A 2-1 試験流れ図

付録A-3 ベントナイト-水反応モデルにおける随伴鉱物影響度評価

1. 目的

本報告書では、ベントナイト-水反応モデルにおいては、クニゲルV 1の構成鉱物である石英、方解石、黄鉄鉱の溶解を考慮している。ここでは、クニゲルV 1の他の構成鉱物である苦灰石、沸石の溶解がどの程度結果に影響を及ぼすかを把握することを目的とする。

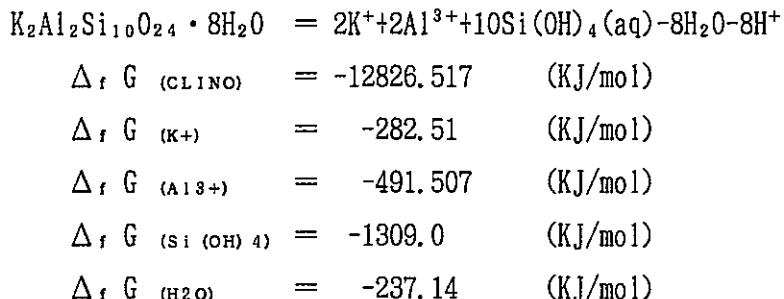
2. 内容

本報告書の図3.1に示す実験結果に対して以下の検討を行った。下記以外の計算条件については表3.5と同じである。

① 従来のWannerモデルに沸石の溶解を考慮した場合の検討

本検討は沸石固溶体の端成分である斜チロル沸石 ($K_2Al_2Si_{10}O_{24} \cdot 8H_2O$) を仮定し、この熱力学データはPHREEQE オリジナルのデータとして選択されていないため、斜チロル沸石の平衡定数については以下の様に設定した。

溶解反応式を以下の様に与え、それぞれの化学種の生成自由エネルギーをPhillipsら(1988)より引用した。



以上の数値に基づき斜チロル沸石の平衡定数を求めた結果 $\log K$ は-15.01となった。

② 従来のWannerモデルで考慮した方解石の代わりに苦灰石を考慮した場合

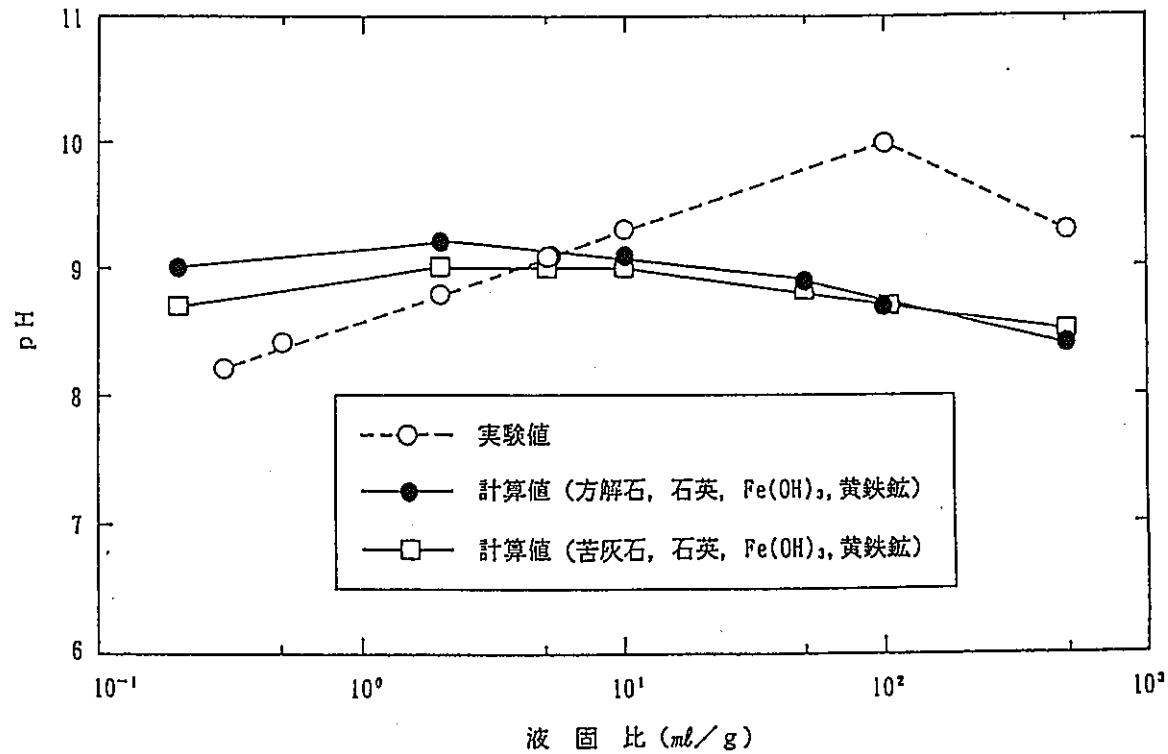
3. 結果

- ① 沸石を考慮した場合の結果は本報告書3.2.2項に記載した結果と比較したところ、pH、イオン濃度共に同一の値であった。ここで、斜チロル沸石の溶解量は方解石のそれに比べて約8~3桁低いことから結果に影響を及ぼさないことが判った。以上のことから本報告書では沸石(斜チロル沸石)を考慮していない。
- ② 方解石の代わりに苦灰石の溶解を考慮した場合のpH、イオン濃度の結果を付図A3-1および~A3-2に示す。苦灰石の溶解を考慮した場合も実験値とほぼ一致するため、現段階で苦灰石を完全に否定することはできないが、以下の理由で本報告書では方解石を採用した。

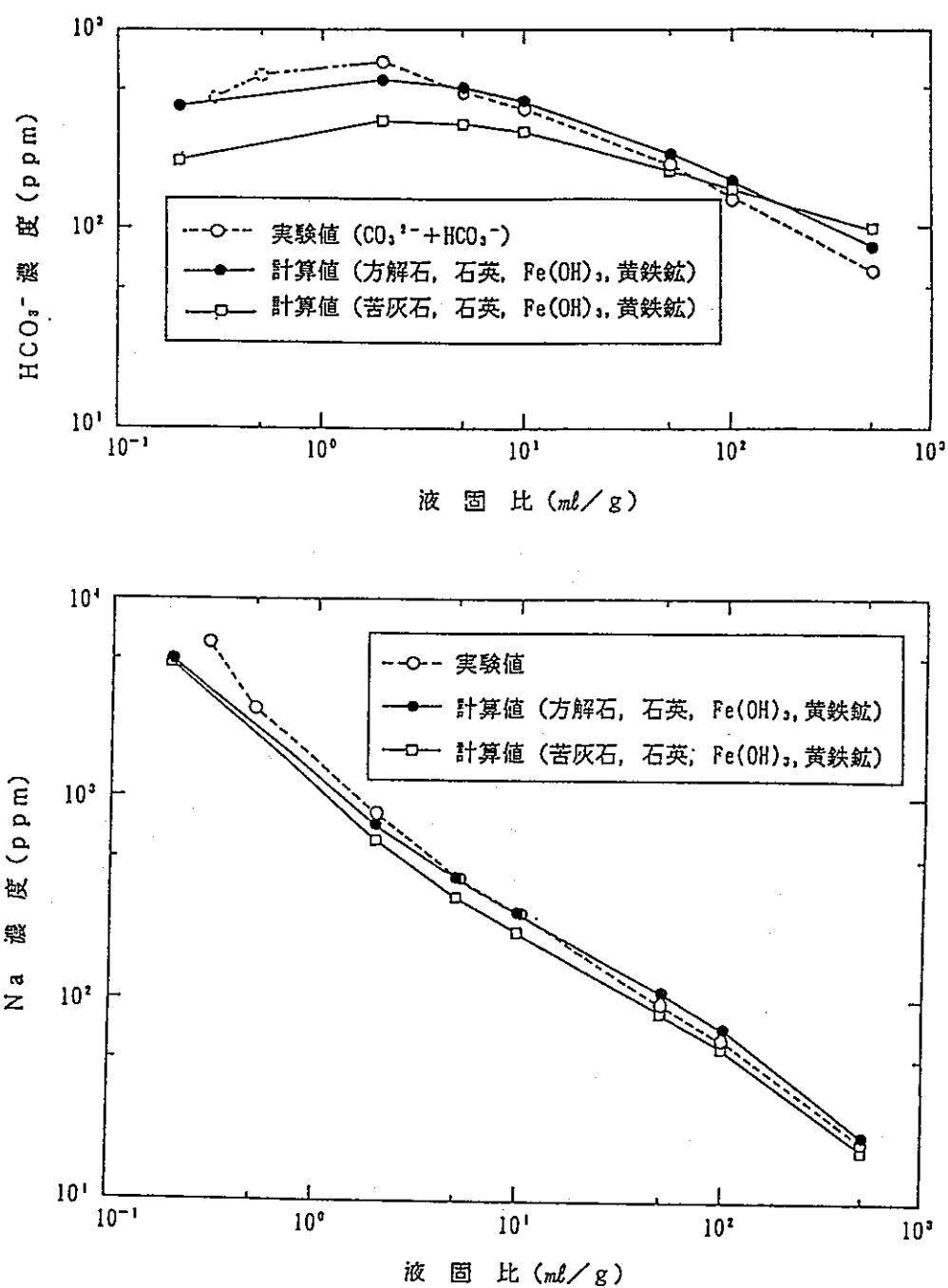
- 1) 短時間の試験においては苦灰石より方解石の方が実験値と一致している。
- 2) 苦灰石を考慮した場合に、 Mg^{2+} 濃度に関し実験と逆の傾向を示す。
- 3) 一般的に苦灰石の溶解速度は極めて遅いと言われており、地下水が交換されるまでに平衡に達しない可能性がある。

参考文献

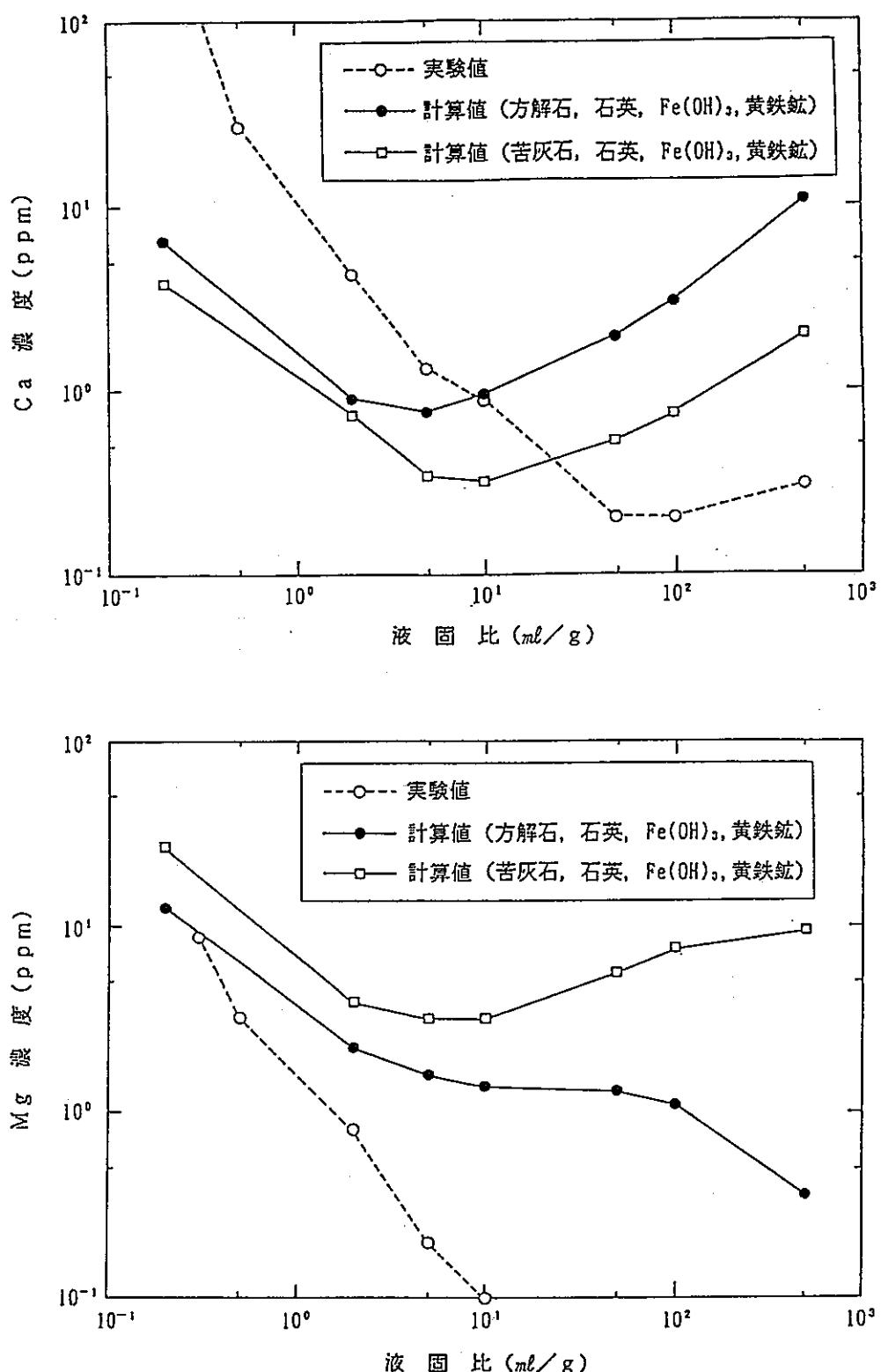
Phillips S.L., Hale F.V., Silvester L.F. and Siegel M.D., (1988)
Thermodynamic Tables for Nuclear Waste Isolation, an Aqueous Solution Database,
Retrieval Using an On Line Servies, Berkeley, CA: Lawrence Berkeley Laboratory.



付図A 3-1 クニゲルV1 - 蒸留水反応におけるpHの隨伴鉱物による影響度



付図A 3 - 2(1) クニゲルV 1 - 蒸留水反応における元素濃度の随伴鉱物による影響度



付図A 3-2(2) クニゲルV 1-蒸留水反応における元素濃度の随伴鉱物による影響度

付録A-4 ベントナイト-水反応実験結果とGrambow モデルの比較

Grambow モデル(Grambow 1987)は、Wannerモデルで考えた以下のイオン交換反応



に



という水素イオン交換反応を追加したものであり、(5)の反応がWannerモデルでの方解石の溶解に変わりpHを支配するものと仮定している。ここで考える随伴鉱物は石英のみである。

(5)の反応を含むGrambow モデルの考え方は、随伴鉱物の溶解の影響が少ない初期の段階では妥当であるが、長期的には反応の遅い鉱物の溶解の影響が(5)の反応よりもpHの支配に寄与していくと考えられる。この考えに基づき、Grambow モデルのイオン交換反応(1)～(5)の平衡定数の導出に用いた浸漬液データは、動燃事業団での大気雰囲気、クニピアF、液固比10ml/g、浸漬期間3日間の短期間のデータから求めた。実験条件と結果をそれぞれ付表A 4-1、A 4-2に示す。実験手順は付録A-2中の付図A 2-1に示す。また、付表A 4-3に求めた平衡定数を示す。

付表A 4-1 試験条件

ベントナイト	クニピアF
初 期 溶 液	蒸留水
液 固 比	10m l / g
温 度	25 °C
浸 渍 期 間	3 日
試 験 雰 囲 気	大 気

付表A 4 - 2 実験結果

分析元素	濃度 (p p m)
N a ⁺	4 5 0
K ⁺	3. 4
C a ²⁺	1. 2
M g ²⁺	0. 6
F e ³⁺	< 0. 3
A l ³⁺	0. 3
S i	2 4
C l ⁻	5 7
S O ₄ ²⁻	5 2 0
N O ₃ ⁻	6. 5
H C O ₃ ⁻	3 5 0
p H	1 0. 1 6

付表A 4 - 3 Grambow モデルの各イオン交換反応の平衡定数

反 応	平衡定数
Z ⁻ + Na ⁺ = ZNa	4. 7
Z ⁻ + K ⁺ = ZK	5. 1
2Z ⁻ + Mg ²⁺ = Z ₂ Mg	10. 0
2Z ⁻ + Ca ²⁺ = Z ₂ Ca	10. 7
Z ⁻ + H ⁺ = ZH	12. 6

付図A 4-1に、ベントナイト-水反応実験結果とWannerモデルの計算値の比較に、Grambowモデルでの計算値を加えて図示したものを示す。

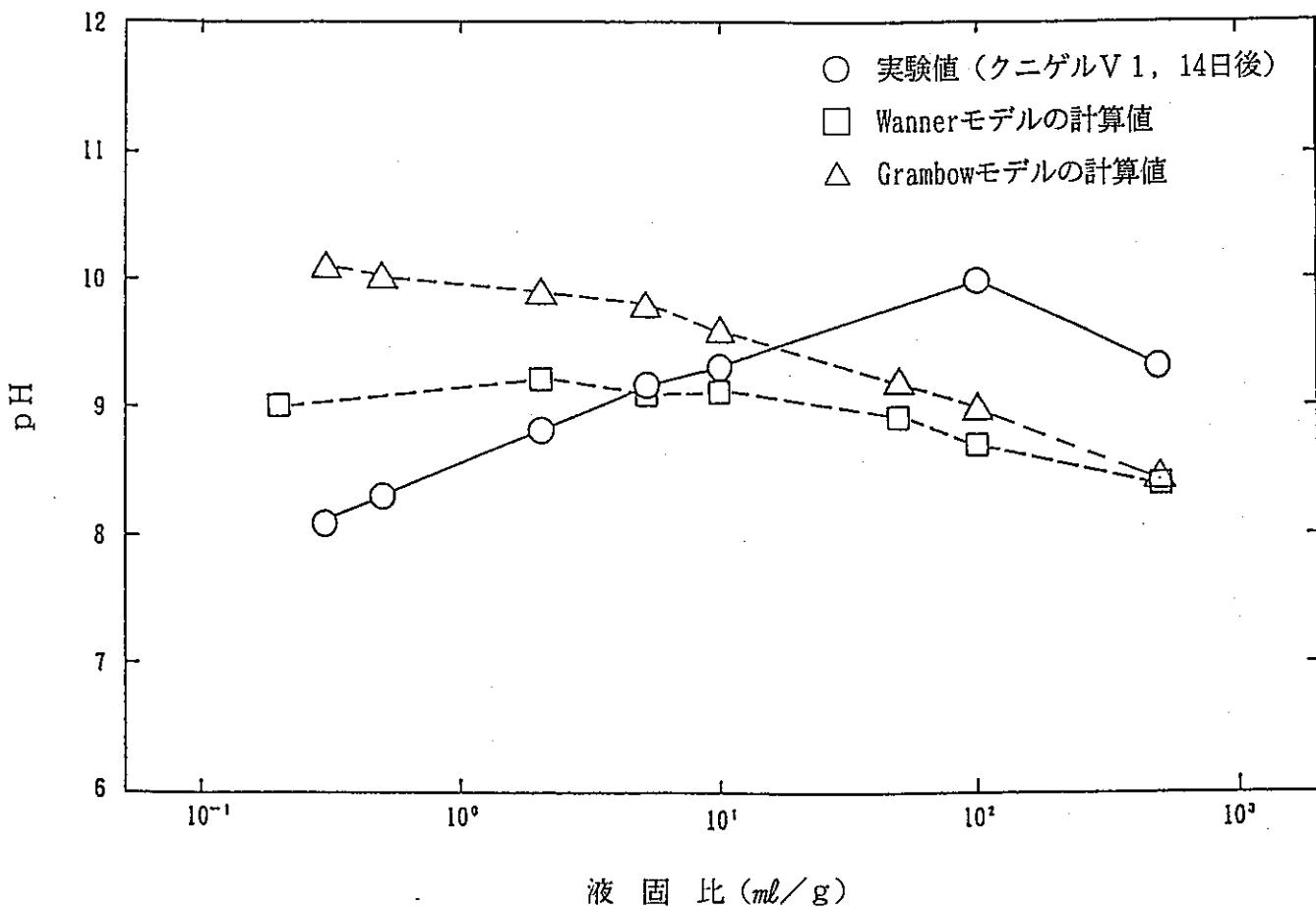
これより、Grambow モデルでの計算値は、液固比10ml/gより低い範囲では、実験結果、Wannerモデルでの計算値より高いpHを予測し、液固比10ml/gより高い範囲ではWannerモデルと同様に実験値よりも低い値を予測することが判った。性能評価では対象となる液固比が低い範囲である事、長期にわたるベントナイトと水の反応では水素イオンのイオン交換よりも鉱物の溶解がpHを支配すると考えられる事、及び14日の試験結果との比較でもWannerモデルの方が実験結果を良く説明できる事から現状ではベントナイト-水反応のモデルとしてはWannerモデルの方が適切であると考える。

今後、層間陽イオン量や浸漬液組成の化学分析の信頼性向上、イオン交換反応の平衡定数導出法のより詳細な検討、pHに関しての水素イオンのイオン交換支配から鉱物の溶解支配への変化を含む反応の速度論的検討、雰囲気制御系での長期的なベントナイト-水反応試験の実施等の課題を解決していくことにより、引き続き処分環境への応用に適したモデルの検討を行ってゆく必要がある。

参考文献

Grambow, B. (1987)

Nuclear Waste Glass Dissolution : Mechanism, Model and Application, Report to
JSS Project Phase IV, JSS-TR-87-02



付図A 4-1 ベントナイト-水反応実験値とGrambow, Wanner両モデル計算値との比較

付録A－5 FeOOH をオーバーパックの安定な腐食生成物と考えた場合の検討

図4.2および図4.3より、オーバーパック腐食生成物として還元環境下ではFe-O系で Fe_2O_3 、 Fe_3O_4 が、Fe-O-H系ではFeOOHが考えられる。本レポートでは、熱力学的安定性から長期間の後には Fe_3O_4 が安定な腐食生成物になると仮定し解析を行った。しかし、腐食生成物の水酸化物から酸化物への変質について、変質速度等ははっきりしておらず今後検討していく必要がある。ここでは、補足解析としてFeOOHをオーバーパックの安定な腐食生成物とした場合の地下水組成および核種の溶解度を求め Fe_3O_4 の場合と比較した。

付表A 5-1に、降水系-高pH型、海水系-高pH型地下水のオーバーパック腐食生成物との反応による空隙水組成について、FeOOHを考えた場合と Fe_3O_4 を考えた場合の比較を示す。付表A 5-2は、降水系-高pH型地下水のオーバーパック腐食生成物との反応による空隙水中での酸化物系の溶解度についての比較を示す。

安定な腐食生成物としてFeOOHを考えた場合の影響は、空隙水組成では、pH、pe、炭酸濃度、硫酸濃度はほとんど変化せず、Fe濃度が少し変化するだけであり、それに伴い溶解度もFe濃度の影響を受けるSe（溶解度制限固相 FeSe_2 ）が数%増加する程度であった。これより、安定な腐食生成物としては Fe_3O_4 、FeOOHのどちらを考えてもその効果は同じであることがわかり、どちらを考えるべきかの判断のために水酸化物から酸化物への変質速度を調べる必要性が示唆された。

付表A 5 - 1 オーバーパック腐食生成物との反応による空隙水の比較

	降水系-高pH型 (C ₂)		海水系-高pH型 (C ₂)	
	Fe ₃ O ₄	FeOOH	Fe ₃ O ₄	FeOOH
pH	10.3	10.3	8.1	8.1
pe	- 7.3	- 7.3	-5.3	-5.3
Ca	≈ 0	≈ 0	2.7E-4	2.8E-4
Mg	3.0E-5	3.0E-5	1.8E-3	1.7E-3
Na	4.4E-2	4.4E-2	6.0E-1	6.0E-1
K	1.1E-4	1.1E-4	1.7E-3	1.7E-3
Fe total	4.2E-12	5.1E-12	5.2E-3	5.7E-3
Fe (II)	4.1E-12	5.0E-12	5.2E-3	5.7E-3
	FeOH ⁺	FeOH ⁺	Fe(HS) ₃ ⁻	Fe(HS) ₃ ⁻
Fe (III)	9.5E-14	1.1E-13	9.9E-16	1.5E-15
	Fe(OH) ₄ ⁻	Fe(OH) ₄ ⁻	Fe(OH) ₄ ⁻	Fe(OH) ₄ ⁻
			Fe(OH) ₄ ⁺	Fe(OH) ₄ ⁺
			Fe(OH) ₃	Fe(OH) ₃
C total	2.5E-2	2.5E-2	4.1E-2	4.1E-2
CO ₃ ²⁻	1.3E-2	1.3E-2	1.6E-4	1.6E-4
HCO ₃ ⁻	7.3E-3	7.3E-3	1.1E-2	1.0E-2
H ₂ CO ₃	6.1E-7	6.1E-7	1.3E-4	1.2E-4
S total	1.2E-3	1.2E-4	3.0E-2	3.0E-2
S (- II)	4.1E-7	6.4E-6	3.0E-2	3.0E-2
	HS ⁻	HS ⁻	HS ⁻	HS ⁻
S (III)	1.2E-3	1.2E-4	Fe(HS) ₂	Fe(HS) ₃ ⁻
	SO ₄ ²⁻	SO ₄ ²⁻	Fe(HS) ₃ ⁻	Fe(HS) ₂
			2.2E-5	2.0E-5
			SO ₄ ²⁻	SO ₄ ²⁻
			NaSO ₄ ⁻	NaSO ₄ ⁻
S _i O ₂	7.8E-4	7.8E-4	1.4E-4	1.4E-4

付表A 5 - 2 腐食生成物の違いによる核種の溶解度の比較
(単位mol/l)

溶 解 度 制限固相	腐 食 生 成 物	
	Fe ₃ O ₄	FeOOH
TcO ₂	7.7E-24	7.7E-24
SnO ₂	2.3E-8	2.3E-8
RaSO ₄	1.8E-6	1.8E-6
ThO ₂	2.4E-10	2.4E-10
PaO ₅	3.0E-7	3.0E-7
UO ₂	3.7E-10	3.7E-10
NpO ₂	1.8E-12	1.8E-12
PuO ₂	2.5E-11	2.5E-11
PdO	1.3E-9	1.3E-9
FeSe ₂	8.0E-7	8.0E-7

付録B-1 ベントナイト-水反応の評価に使用した熱力学データ

1. 热力学データベースの見方

PHREEQE用データベースは、(1)ELEMENTS、(2)SPECIES、(3)MINERALS、の3つの部分から成っている。以下、各々の部分について簡単に説明する。説明にあたっては、まずそのデータの概略と実例（括弧内は変数名）、そのあと各変数の意味、フォーマットを示す。

(1) ELEMENTS

ここでは、熱力学データベースに含まれる化学種・鉱物の構成要素となる元素を定義する。

Ca	4	40.	Ca+2
(TNAME)	(NELT)	(TGFW)	(MNAME)

FORMAT(A8, 2X, I2, 3X, F10. 0)

TNAME : 元素名。

NELT : 各元素のインデックスナンバー。

TGFW : 親化学種の質量数。分析値を計算で使用する重量モル濃度に変換するため使用する。

MNAME : 親化学種名。各化学種・鉱物の生成反応を統一的に記述するために便宜上定義する（コメント文）。

(2) SPECIES

ここでは、各化学種の生成反応の化学量論係数、平衡定数等を定義する。

70	FROM ORIGINAL						
(I)	(REFERENCE)						
HSO4-	210	-1.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.000
(SNAME)	(NSP, KFLAG,	(ZSP)	(THSP)	(DHA)	(ADHSP(1))	(ADHSP(2))	(ALKSP)
GFLAG)							

2.000	4.91	-5.3505	0.0183412	557.2461
-------	------	---------	-----------	----------

(LKTOSP) (DHSP) (ASP(I), I=1, 5)

16	1.000	1	1.000
----	-------	---	-------

(LSP(I), CSP(I), I=1, NSP)

FORMAT(I3／

A8, 2X, I3, 2I1, 6F10.3／

2F10.3, 5E12.5／

6(I3, F7.3))

SNAME : 化学種名。

NSP : 化学種の生成反応に含まれる親化学種の数。

KFLAG : =0; Van't Hoff の式を使って平衡定数の温度依存を計算。

=1; 分析的な式 (ASP(I)) を使って平衡定数の温度依存を計算。

GFLAG : 活量係数計算式の選定。

ZSP : 化学種の電荷。

THSP : 酸化還元に寄与する親化学種を含んでいる場合、そのOPV(実効原子価) の総和。(例 ; HSO_4^- では、H(0), S(+6), O(0) よりOPV=6)。

DHA, ADHSP(1), ADHSP(2) : Debye-Hückel 式で活量係数を計算するときの係数の値。

ALKSP : 化学種に割り当てるアルカリ度。

LKTOSP : 生成反応の平衡定数 (25°C)。

DHSP : 生成反応の標準エンタルピー (25°C)。

ASP(I) : 平衡定数の温度依存を分析的な式を使って計算する場合の係数。
(I=1, 5)

LSP(I) : 化学種を形成する親化学種のインデックスナンバー。

CSP(I) : 化学種を形成する親化学種の化学量論係数。

(この例では、 $\text{SO}_4^{2-} + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{HSO}_4^-$)

(3) MINERALS

ここでは、各鉱物の解離反応の化学量論係数、平衡定数等を定義する。

RaCO ₃	2	4.0	-7.00	0.000	0	0.00	! HARWELL !
-------------------	---	-----	-------	-------	---	------	-------------

(MNAME) (NMINO) (THMIN) (LKTOM) (DHMIN) (MFLAG) (SIMIN) (REFERENCE)

37	1.000	15	1.000
----	-------	----	-------

(LSP(I), CSP(I), I=1, NSP)

FORMAT(A8, 2X, I2, 3X, 3F10.2, 5X, I1, 9X, F10.3 /
5(14, F11.3))

MNAME : 鉱物名。

NMINO : 鉱物の解離反応に含まれる親化学種の数。

THMIN : 鉱物の解離反応での化学種のOPVの総和。

LKTOM : 解離反応の平衡定数 (25°C)。

DHMIN : 解離反応の標準エンタルピー (25°C)。

MFLAG : =0; Van't Hoff の式を使って平衡定数の温度依存を計算。

=1; 分析的な式 (ASP(I)) を使って平衡定数の温度依存を計算。

SIMIN : 最終の溶液で望まれる飽和指数(log (活量積/Ksp))。

LSP(I) : 鉱物を形成する親化学種、水溶性化学種のインデックスナンバー。

CSP(I) : 鉱物を形成する親化学種、水溶性化学種の化学量論係数。

(この例では, RaCO₃ ⇌ Ra²⁺+CO₃²⁻)

2. 热力学データベースの作成経緯

本データベースは、PHREEQE オリジナル(Parkhurst et al., 1980) をベースに、1990年時点でOECD/NEAで選定されたデータベース（例えば, Muller, 1985; Grenthe et al., 1990）を TDBインターフェースプログラムにより追加し、更に、アクチニド元素に関しては、Harwell R 12324 データベース(Cross et al., 1987), BPNLのデータ(Rai et al., 1983; Felmy et al., 1990), EQ3/6の DATA0 3245R54及びPhillips (1988) のデータベースからデータを抽出し、エディタ入力により追加・編集した。

その後、一部信頼性に疑問のある化学種（アクチニド元素の高次加水分解種等）は削除している（油井ほか, 1992）。なお、 $\text{CO}_2(\text{aq})$ については $\text{H}_2\text{CO}_3(\text{aq})$ と等価であるため削除すべきであるが、地下水や人工バリア空隙水のpH範囲から影響がないと判断し、本計算では削除していない。

参考文献

- 油井 三和, 牧野 仁史, 芦田 敬, 梅木 博之, 石黒 勝彦, 根山 敏史(1992)
ガラス固化体からの元素の溶出挙動と人工バリア空隙水中の溶解度評価
動燃事業団技術資料 (P N C T N8410 92-161)

DATA: CARD IMAGES FROM DISK

ELEMENTS

CA	4	40.	CA+2
MG	5	24.	MG+2
NA	6	23.	NA+
K	7	39.	K+
FE	8	56.	FE+2
MN	9	55.	MN+2
AL	10	.27.	AL+3
BA	11	137.	BA+2
SR	12	88.	SR+2
SI	13	96.	H4SiO4(AQ)
CL	14	35.	CL-
C	15	60.	CO3-2
S	16	96.	SO4-2
N	17	62.	NO3-
B	18	62.	B(OH)3(AQ)
P	19	95.	PO4-3
F	20	19.	F-
LI	21	7.	LI+
BR	22	80.	BR-
I	23	127.	I-
TC	24	115.	TCO+2
U	25	238.	U+4
CO	27	59.	CO+2
AM	28	243.	AM+3
PU	29	239.	PU+4
CS	30	133.	CS+
NI	31	59.	NI+2
SE	32	143.	SEO4-2
ZR	33	91.	ZR+4
SN	34	119.	SN+2
SM	35	150.	SM+3 NO SPECIES
PB	36	207.	PB+2
RA	37	226.	RA+2
TH	38	232.	TH+4
PA	39	231.	PA+4
NP	40	237.	NP+4
NB	41	141.	NBO3-
PD	42	106.	PD+2
AG	43		NO SPECIES
ND	44	144.	ND+3
Z	45	1080.	Z-
SB	46	154.	SB02-
BI	47	209.	BI+3
PO	48	209.	PO+4
AC	49	227.	AC+3
CM	50	247.	CM+3

SPECIES

1							
H+		100	1.000	0.000	9.000	0.000	0.000
0.0		0.0					0.
1	1.0						
2							
E-		100	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000
0.0		0.0					0.
2	1.0						
3							
H2O(L)		100	0.000	0.000	0.000	0.000	0.

0.0	0.0							
3	1.0							
4								
CA+2	101	2.000	0.000	6.000	5.000	0.165	0.	
0.0	0.0							
4	1.0							
5								
MG+2	101	2.000	0.000	8.000	5.500	0.200	0.	
0.0	0.0							
5	1.0							
6								
NA+	101	1.000	0.000	4.000	4.000	0.075	0.	
0.0	0.0							
6	1.0							
7								
K+	101	1.000	0.000	3.000	3.500	0.015	0.	
0.0	0.0							
7	1.0							
8								
FE+2	100	2.000	2.000	6.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
8	1.0							
9								
MN+2	100	2.000	2.000	6.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
9	1.0							
10								
AL+3	100	3.000	0.000	9.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
10	1.0							
11								
BA+2	100	2.000	0.000	5.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
11	1.0							
12								
SR+2	101	2.000	0.000	5.000	5.260	0.121	0.	
0.0	0.0							
12	1.0							
13								
H4SiO4(A	100	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
13	1.0							
14								
CL-	101	-1.000	0.000	3.000	3.500	0.015	0.	
0.0	0.0							
14	1.0							
15								
CO3-2	101	-2.000	4.000	4.500	5.400	0.000	2.	
0.0	0.0							
15	1.0							
16								
SO4-2	101	-2.000	6.000	4.000	5.000	-0.040	0.	
0.0	0.0							
16	1.0							
17								
NO3-	100	-1.000	5.000	3.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
17	1.0							
18								
B(OH)3(A	100	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							

18	1.0							
19								
P04-3	100	-3.000	0.000	4.000	0.000	0.000	2.	
0.0	0.0							
19	1.0							
20								
F-	100	-1.000	0.000	3.500	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
20	1.0							
21								
L1+	100	1.000	0.000	6.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
21	1.0							
22								
BR-	100	-1.000	0.000	3.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
22	1.0							
23								
I-	100	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
23	1.0							
24	FOR TCO+2 FROM NEA							
TCO+2	100	2.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
24	1.0							
25	FOR U+4 FROM NEA							
U+4	100	4.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
25	1.0							
27								
C0+2	100	2.000	2.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
27	1.0							
28	FOR AM+3 FROM BATTELLE-PNL							
AM+3	100	3.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
28	1.0							
29	FOR PU+4 FROM HARWELL R12324							
PU+4	100	4.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
29	1.0							
30	FOR CS+ FROM HARWELL R12324							
CS+	100	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.0	0.0							
30	1.0							
31								
NI+2	100	2.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
0.0	0.0							
31	1.000							
32	FOR SE04-2 FROM HARWELL R12324							
SE04-2	100	-2.000	6.0	0.0	0.0	0.0	0.	
0.0	0.0							
32	1.000							
33	FOR ZR+4 FROM HARWELL R12324							
ZR+4	100	4.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
0.0	0.0							
33	1.000							
34	FOR SN+2 FROM EQ3/6							
SN+2	100	2.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.	
0.0	1.0							
34	1.000							

35								
SM+3	100	3.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	0.0	0.0						
35	1.000							
36								
PB+2	100	2.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	0.0	0.0						
36	1.000							
37	FOR RA+2	FROM HARWELL R12324						
RA+2	100	2.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	0.0	0.0						
37	1.000							
38	FOR TH+4	FROM HARWELL R12324						
TH+4	100	4.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	0.0	0.0						
38	1.000							
39	FOR PA+4	FROM HARWELL R12324						
PA+4	100	4.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	0.0	0.0						
39	1.000							
40	FOR NP+4	FROM HARWELL R12324						
NP+4	100	4.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	0.0	0.0						
40	1.000							
41								
NB03-	100	-1.000	5.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	0.0	0.0						
41	1.000							
42	FOR PD+2	FROM PHILLIPS 1988						
PD+2	100	2.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	0.0	0.0						
42	1.000							
44								
ND+3	100	3.000	3.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	0.0	0.0						
44	1.000							
45	FOR Z FROM PNC							
Z-	100	-1.0	0.0	0.0			0.0	
0.0	0.0							
45	1.0							
46								
SB02-	100	-1.0	3.0	0.0			0.0	
0.0	0.0							
46	1.0							
47								
BI+3	100	3.0	0.0	0.0			0.0	
0.0	0.0							
47	1.0							
48								
P0+4	100	4.0	4.0	0.0			0.0	
0.0	0.0							
48	1.0							
49	FOR AC+3	FROM HARWELL R12324						
AC+3	100	3.0	0.0	0.0			0.0	
0.0	0.0							
49	1.0							
50								
CM+3	100	3.0	3.0	0.0			0.0	
0.0	0.0							
50	1.0							
61	FROM ORIGINAL							

OH-	200	-1.000	0.000	3.500	0.000	0.000	1.
-14.000	13.345						
3 1.0	1 -1.0						
62	FROM ORIGINAL						
02 AQ	300	0.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.
-86.08	134.79						
3 2.0	1 -4.0	2 -4.0					
63	FROM ORIGINAL						
H2 AQ	200	0.000	-2.000	0.000	0.000	0.000	0.
-3.15	-1.759						
1 2.0	2 2.0						
64	FROM ORIGINAL						
HCO3-	211	-1.000	4.000	4.500	5.400	0.000	1.
10.330	-3.561	107.8871	0.03252849	-5151.79	-38.92561	563713.9	
15 1.0	1 1.0						
65	FROM ORIGINAL						
H2C03	210	0.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.
16.681	-5.738	464.1965	0.09344813	-26986.16	-165.75951	2248628.9	
15 1.0	1 2.0						
66	FROM ORIGINAL						
CH4 AQ	400	0.000	-4.000	0.000	0.000	0.000	0.
41.071	-61.039						
15 1.0	1 10.0	2 8.0	3 -3.0				
70	FROM ORIGINAL						
HS04-	210	-1.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.
2.000	4.91	-5.3505	0.0183412	557.2461			
16 1.0	1 1.0						
71	FROM ORIGINAL						
S-2	400	-2.000	-2.000	5.000	0.000	0.000	2.
20.735	-28.04						
16 1.0	1 8.0	2 8.0	3 -4.0				
72	FROM ORIGINAL						
HS-	400	-1.000	-2.000	3.500	0.000	0.000	1.
33.652	-40.14						
16 1.0	1 9.0	2 8.0	3 -4.0				
78	FROM ORIGINAL						
NO2-	400	-1.000	3.000	3.000	0.000	0.000	0.
28.57	-43.76						
17 1.0	1 2.0	2 2.0	3 -1.0				
79	FROM ORIGINAL						
N2 AQ	400	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
207.08	-312.13						
17 2.0	1 12.0	2 10.0	3 -6.0				
80	FROM ORIGINAL						
NH3(AQ)	400	0.000	-3.000	0.000	0.000	0.000	1.
109.83	-174.58						
17 1.0	1 9.0	2 8.0	3 -3.0				
81	FROM ORIGINAL						
NH4+	400	1.000	-3.000	2.500	0.000	0.000	0.
119.070	-187.055						
17 1.0	1 10.0	2 8.0	3 -3.0				
82	FROM ORIGINAL						
NH4S04-	500	-1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
120.19	-187.055						
17 1.0	1 10.0	2 8.0	16 1.0	3 -3.0			
87	FROM ORIGINAL						
H2B03-	200	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.
-9.240	3.224						
18 1.0	1 -1.0						
88	FROM ORIGINAL						
BFOH3-	200	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.

-0.40	1.85							
18 1.0	20 1.0							
89	FROM ORIGINAL							
BF20H2-	400	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
7.628	1.635							
18 1.0	20 2.0	1 1.0	3 -1.0					
90	FROM ORIGINAL							
BF30H-	400	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
13.666	-1.58							
18 1.0	1 2.0	20 3.0	3 -2.0					
91	FROM ORIGINAL							
BF4-	400	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
20.274	-1.795							
18 1.0	1 3.0	20 4.0	3 -3.0					
95	FROM ORIGINAL							
HP04-2	200	-2.000	0.000	4.000	0.000	0.000	1.	
12.350	-3.53							
19 1.0	1 1.0							
96	FROM ORIGINAL							
H2P04-	200	-1.000	0.000	4.500	0.000	0.000	0.	
19.550	-4.52							
19 1.0	1 2.0							
99	FROM ORIGINAL							
HF AQ	200	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
3.170	3.46							
1 1.0	20 1.0							
100	FROM ORIGINAL							
HF2-	200	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
3.749	4.55							
1 1.0	20 2.0							
105	FROM ORIGINAL							
CAOH+	300	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.	
-12.598	14.535							
4 1.0	3 1.0	1 -1.0						
106	FROM ORIGINAL							
CACO3	210	0.000	4.000	0.000	0.000	0.000	2.	
3.225	3.547	-1228.732	-0.299440	35512.75	485.818			
4 1.0	15 1.0							
107	FROM ORIGINAL							
CAHC03+	311	1.000	4.000	0.000	5.400	0.000	1.	
11.435	-0.869	1317.0071	0.34546894	-39916.84	-517.70761	563713.9		
4 1.0	15 1.0	1 1.0						
108	FROM ORIGINAL							
CASO4	200	0.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.	
2.309	1.470							
4 1.0	16 1.0							
109	FROM ORIGINAL							
CAP04-	200	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	2.	
6.459	3.100							
4 1.0	19 1.0							
110	FROM ORIGINAL							
CAHPO4	300	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.	
15.085	-0.230							
4 1.0	1 1.0	19 1.0						
111	FROM ORIGINAL							
CAH2PO4+	300	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
20.961	-1.120							
4 1.0	1 2.0	19 1.0						
112	FROM ORIGINAL							
CAF+	200	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.940	3.798							

· 4 1.0	20 1.0						
115 FROM ORIGINAL							
MGDH+	300	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.
-11.794	15.419						
5 1.0	3 1.0	1 -1.0					
116 FROM ORIGINAL							
MGC03	210	0.000	4.000	0.000	0.000	0.000	2.
2.981	2.535	-32.172	0.0	1093.486	12.72433		
5 1.0	15 1.0						
117 FROM ORIGINAL							
MGHCO3+	310	1.000	4.000	0.000	0.000	0.000	1.
11.397	-2.775	48.6721	0.03252849	-2614.335	-18.00263	563713.9	
5 1.0	1 1.0	15 1.0					
118 FROM ORIGINAL							
MGS04	200	0.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.
2.250	1.4						
5 1.0	16 1.0						
119 FROM ORIGINAL							
MGP04-	200	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	2.
6.589	3.100						
5 1.0	19 1.0						
120 FROM ORIGINAL							
MGHP04	300	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.
15.216	-0.230						
5 1.0	1 1.0	19 1.0					
121 FROM ORIGINAL							
MGH2P04+	300	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
21.066	-1.120						
5 1.0	1 2.0	19 1.0					
122 FROM ORIGINAL							
MGF+	200	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
1.820	4.674						
5 1.0	20 1.0						
125 FROM ORIGINAL							
NAC03-	200	-1.000	4.000	0.000	0.000	0.000	2.
1.268	8.911						
6 1.0	15 1.0						
126 FROM ORIGINAL							
NAHC03	300	0.000	4.000	0.000	0.000	0.000	1.
10.080	-3.604						
6 1.0	1 1.0	15 1.0					
127 FROM ORIGINAL							
NAS04-	200	-1.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.
0.700	1.120						
6 1.0	16 1.0						
128 FROM ORIGINAL							
NAHP04-	300	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.
12.636	-3.530						
6 1.0	1 1.0	19 1.0					
130 FROM ORIGINAL							
KS04-	200	-1.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.
0.85	2.25						
7 1.0	16 1.0						
131 FROM ORIGINAL							
KHP04-	300	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.
12.636	-3.530						
7 1.0	1 1.0	19 1.0					
135 FROM ORIGINAL							
FEOH+	300	1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	1.
-9.500	13.2						
8 1.0	3 1.0	1 -1.0					

136	FROM ORIGINAL							
FE0H2	300	0.000	2.000	0.000	0.000	0.000	0.000	2.
-20.570	28.565							
8 1.0	3 2.0	1 -2.0						
137	FROM ORIGINAL							
FE0H3-	300	-1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	0.000	3.
-31.000	30.300							
8 1.0	3 3.0	1 -3.0						
138	FROM ORIGINAL							
FES04	200	0.000	8.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
2.25	3.23							
8 1.0	16 1.0							
139	FROM ORIGINAL							
FE(HS)2	500	0.000	-2.000	0.000	0.000	0.000	0.000	2.
76.250	-120.280							
8 1.0	16 2.0	1 18.0	2 16.0	3 -8.0				
140	FROM ORIGINAL							
FE(HS)3-	500	-1.000	-4.000	0.000	0.000	0.000	0.000	3.
111.937	-180.420							
8 1.0	16 3.0	1 27.0	2 24.0	3 -12.0				
141	FROM ORIGINAL							
FEHP04	300	0.000	2.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.
15.946	-3.530							
8 1.0	1 1.0	19 1.0						
142	FROM ORIGINAL							
FEH2P04+	300	1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
22.253	-4.520							
8 1.0	1 2.0	19 1.0						
145	FROM ORIGINAL							
FE+3	200	3.000	3.000	9.000	0.000	0.000	0.000	0.
-13.032	10.0							
8 1.0	2 -1.0							
146	FROM ORIGINAL							
FE0H+2	400	2.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
-15.22	20.4							
8 1.0	3 1.0	2 -1.0	1 -1.0					
147	FROM ORIGINAL							
FE0H2+	400	1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
-18.70	10.0							
8 1.0	3 2.0	1 -2.0	2 -1.0					
148	FROM ORIGINAL							
FE0H3	400	0.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.
-26.63	10.0							
8 1.0	3 3.0	1 -3.0	2 -1.0					
149	FROM ORIGINAL							
FE0H4-	400	-1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.000	2.
-34.63	10.0							
8 1.0	3 4.0	1 -4.0	2 -1.0					
150	FROM ORIGINAL							
FE2OH2+4	400	4.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
-29.01	33.5							
8 2.0	3 2.0	1 -2.0	2 -2.0					
151	FROM ORIGINAL							
FE3OH4+5	400	5.000	9.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
-45.4	44.3							
8 3.0	3 4.0	1 -4.0	2 -3.0					
152	FROM ORIGINAL							
FECL+2	300	2.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
-11.55	15.6							
8 1.0	14 1.0	2 -1.0						
153	FROM ORIGINAL							

FECL2+	300	1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-10.90	10.0							
8 1.0	14 2.0	2 -1.0						
154	FROM ORIGINAL							
FECL3	300	0.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-11.90	10.0							
8 1.0	14 3.0	2 -1.0						
155	FROM ORIGINAL							
FES04+	300	1.000	9.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-9.11	13.91							
8 1.0	16 1.0	2 -1.0						
156	FROM ORIGINAL							
FES042-	300	-1.000	15.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-7.61	14.60							
8 1.0	16 2.0	2 -1.0						
157	FROM ORIGINAL							
FEHPO4+	400	1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	1.	
4.74	12.23							
8 1.0	1 1.0	19 1.0	2 -1.0					
158	FROM ORIGINAL							
FEH2P+2	400	2.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.	
11.95	5.48							
8 1.0	1 2.0	19 1.0	2 -1.0					
159	FROM ORIGINAL							
FEF+2	300	2.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-6.8	12.7							
8 1.0	20 1.0	2 -1.0						
160	FROM ORIGINAL							
FEF2+	300	1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-2.2	14.7							
8 1.0	20 2.0	2 -1.0						
161	FROM ORIGINAL							
FEF3	300	0.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.97	15.4							
8 1.0	20 3.0	2 -1.0						
165	FROM ORIGINAL							
MNOH+	300	1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	1.	
-10.59	14.40							
9 1.0	3 1.0	1 -1.0						
166	FROM ORIGINAL							
MNOH3-	300	-1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	3.	
-34.80	0.0							
9 1.0	3 3.0	1 -3.0						
167	FROM ORIGINAL							
MNCL+	200	1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.607	0.0							
9 1.0	14 1.0							
168	FROM ORIGINAL							
MNCL2	200	0.000	2.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.041	0.0							
9 1.0	14 2.0							
169	FROM ORIGINAL							
MNCL3-	200	-1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-0.305	0.0							
9 1.0	14 3.0							
170	FROM ORIGINAL							
MNHCO3+	300	1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	1.	
11.60	-3.604							
9 1.0	15 1.0	1 1.0						
171	FROM ORIGINAL							
MNSO4	200	0.000	8.000	0.000	0.000	0.000	0.	

2.26	2.17							
9 1.0	16 1.0							
172	FROM ORIGINAL							
MN(N03)2	200	0.000	12.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.6	-0.396							
9 1.0	17 2.0							
173	FROM ORIGINAL							
MNF+	200	1.000	2.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.85	0.0							
9 1.0	20 1.0							
174	FROM ORIGINAL							
MN+3	200	3.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-25.507	25.76							
9 1.0	2 -1.0							
175	FROM ORIGINAL							
MN04-2	400	-2.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-118.440	150.02							
9 1.0	3 4.0	1 -8.0	2 -4.0					
176	FROM ORIGINAL							
MN04-	400	-1.000	7.000	3.500	0.000	0.000	0.	
-127.824	176.62							
9 1.0	3 4.0	1 -8.0	2 -5.0					
180	FROM ORIGINAL							
ALOH+2	300	2.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-4.99	11.9							
10 1.0	3 1.0	1 -1.0						
181	FROM ORIGINAL							
ALOH2+	300	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-10.1	0.0							
10 1.0	3 2.0	1 -2.0						
182	FROM ORIGINAL							
ALOH3	300	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.	
-16.0	0.0							
10 1.0	3 3.0	1 -3.0						
183	FROM ORIGINAL							
ALOH4-	300	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	2.	
-23.000	44.06							
10 1.0	3 4.0	1 -4.0						
184	FROM ORIGINAL							
ALSO4+	200	1.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.	
3.02	2.15							
10 1.0	16 1.0							
185	FROM ORIGINAL							
ALSO42-	200	-1.000	12.000	0.000	0.000	0.000	0.	
4.92	2.84							
10 1.0	16 2.0							
186	FROM ORIGINAL							
ALF+2	200	2.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
7.01	0.0							
10 1.0	20 1.0							
187	FROM ORIGINAL							
ALF2+	200	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
12.75	20.0							
10 1.0	20 2.0							
188	FROM ORIGINAL							
ALF3	200	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
17.02	2.50							
10 1.0	20 3.0							
189	FROM ORIGINAL							
ALF4-	200	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
19.72	0.0							

10	1.0	20	4.0					
193	FROM ORIGINAL							
BAOH+	300	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.	
-13.358	15.095							
11	1.0	3	1.0	1	-1.0			
195	FROM ORIGINAL							
SROH+	300	1.000	0.000	5.000	0.000	0.000	1.	
-13.178	14.495							
12	1.0	3	1.0	1	-1.0			
196	FROM ORIGINAL							
SRHC03+	310	1.000	4.000	5.400	0.000	0.000	1.	
11.513	2.486	104.6389	0.04739549	-5151.79	-38.92561	563713.9		
12	1.0	15	1.0	1	1.0			
197	FROM ORIGINAL							
SRC03	210	0.000	4.000	0.000	0.000	0.000	2.	
2.805	5.217	-1.019	0.012826					
12	1.0	15	1.0					
198	FROM ORIGINAL							
SRS04	200	0.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.	
2.55	1.6							
12	1.0	16	1.0					
202	FROM ORIGINAL							
SIF6-2	400	-2.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
30.18	-16.26							
13	1.0	1	4.0	20	6.0	3	-4.0	
211	FROM ORIGINAL							
LIS04-	200	-1.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.	
0.640	0.0							
21	1.0	16	1.0					
215	FROM HARWELL R12324							
I03-	400	-1.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-111.000	0.0							
23	1.000	1	-6.000	2	-6.000	3	3.000	
217	FOR SI202(OH)5-	FROM NEA						
SI202(OH)	300	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-8.100	0.000	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.0	
13	2.000	3	-1.000	1	-1.000			
218	FOR SI203(OH)4-2	FROM NEA						
SI203(OH)	300	-2.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-19.001	0.000	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.0	
13	2.000	3	-1.000	1	-2.000			
219	FOR SI305(OH)5-3	FROM NEA						
SI305(OH)	300	-3.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-27.501	0.000	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.0	
13	3.000	3	-2.000	1	-3.000			
220	FOR SI306(OH)3-3	FROM NEA						
SI306(OH)	300	-3.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-28.601	0.000	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.0	
13	3.000	3	-3.000	1	-3.000			
222	FOR SI407(OH)5-3	FROM NEA						
SI407(OH)	300	-3.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-25.501	0.000	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.0	
13	4.000	3	-4.000	1	-3.000			
223	FOR S10(OH)3-	FROM NEA						
S10(OH)3	200	-1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.	
-9.810	0.000	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.0	
13	1.000	1	-1.000					

224 FOR S102(OH)2-2 FROM NEA
 S102(OH) 200 -2.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -23.141 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 13 1.000 1 -2.000
 225 FOR (U02)3(CO3)6-6 FROM NEA
 (U02)3(C 500 -6.000 42.000 0.000 0.000 0.000 0.
 26.922 86.774 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 15 6.000 25 3.000 3 6.000 1-12.000 2 -6.000
 226 FOR (U02)3(OH)5CO2+ FROM NEA
 (U02)3(O 500 1.000 22.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -26.328 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 15 1.000 25 3.000 3 10.000 1-15.000 2 -6.000
 227 FOR CO2(AQ)
 CO2(AQ) 300 0.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.
 16.681 -5.705 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 15 1.000 3 -1.000 1 2.000
 230 FOR U(CO3)4-4 FROM NEA
 U(CO3)4- 200 -4.000 20.000 0.000 0.000 0.000 0.
 32.881 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 15 4.000 25 1.000
 231 FOR U(CO3)5-6 FROM NEA
 U(CO3)5- 200 -6.000 24.000 0.000 0.000 0.000 0.
 34.001 -4.782 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 15 5.000 25 1.000
 232 FOR U02(CO3)2-2 FROM NEA
 U02(CO3) 500 -2.000 14.000 0.000 0.000 0.000 0.
 8.007 37.891 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 15 2.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000
 233 FOR U02(CO3)3-4 FROM NEA
 U02(CO3) 500 -4.000 18.000 0.000 0.000 0.000 0.
 12.637 25.241 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 15 3.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000
 234 FOR U02(CO3)3-5 FROM NEA
 U02(CO3) 500 -5.000 17.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -0.073 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 15 3.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -1.000
 235 FOR U02CO3(AQ) FROM NEA
 U02CO3(A 500 0.000 10.000 0.000 0.000 0.000 0.
 0.707 35.595 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 15 1.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000
 236 FOR H2S(AQ) FROM NEA
 H2S(AQ) 400 0.000 -2.000 0.000 0.000 0.000 0.
 40.681 -65.179 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 16 1.000 3 -4.000 1 10.000 2 8.000
 237 FOR H2SO3(AQ) FROM NEA
 H2SO3(AQ) 400 0.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.
 5.663 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 16 1.000 3 -1.000 1 4.000 2 2.000
 239 FOR HS203- FROM NEA
 HS203- 400 -1.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.
 39.605 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 16 2.000 3 -5.000 1 11.000 2 8.000
 240 FOR HS03- FROM NEA
 HS03- 400 -1.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.
 3.823 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 16 1.000 3 -1.000 1 3.000 2 2.000
 243 FOR S203-2 FROM NEA
 S203-2 400 -2.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.
 38.015 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 16 2.000 3 -5.000 1 10.000 2 8.000
 244 FOR SO3-2 FROM NEA

S03-2 400 -2.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -3.397 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 16 1.000 3 -1.000 1 2.000 2 2.000
 246 FOR U(S04)2(AQ) FROM NEA
 U(S04)2(200 0.000 16.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 10.420 7.819 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 16 2.000 25 1.000
 247 FOR U02(S03)2-2 FROM NEA
 U02(S03) 300 -2.000 14.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -8.187 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 16 2.000 25 1.000 2 2.000
 248 FOR U02(S04)2-2 FROM NEA
 U02(S04) 500 -2.000 18.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -4.843 42.793 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 16 2.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000
 249 FOR U02S203(AQ) FROM NEA
 U02S203(500 0.000 10.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 31.822 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 16 2.000 25 1.000 3 -3.000 1 6.000 2 6.000
 250 FOR U02S03(AQ) FROM NEA
 U02S03(A 400 0.000 10.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -5.650 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 16 -1.000 25 1.000 3 1.000 1 -2.000
 251 FOR U02S04(AQ) FROM NEA
 U02S04(A 500 0.000 12.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -5.843 39.063 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 16 1.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000
 252 FOR US04+2 FROM NEA
 US04+2 200 2.000 10.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 6.480 1.913 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 16 1.000 25 1.000
 253 FOR CL0- FROM NEA
 CL0- 400 -1.000 2.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -57.935 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 14 1.000 3 1.000 1 -2.000 2 -2.000
 254 FOR CL02- FROM NEA
 CL02- 400 -1.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -107.877 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 14 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -4.000
 255 FOR CL03- FROM NEA
 CL03- 400 -1.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -146.242 220.127 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 14 1.000 3 3.000 1 -6.000 2 -6.000
 256 FOR CL04- FROM NEA
 CL04- 400 -1.000 8.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -187.791 282.712 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 14 1.000 3 4.000 1 -8.000 2 -8.000
 257 FOR HCL0(AQ) FROM NEA
 HCL0(AQ) 400 0.000 2.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -50.515 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 14 1.000 3 1.000 1 -1.000 2 -2.000
 258 FOR HCL02(AQ) FROM NEA
 HCL02(AQ) 400 0.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -105.916 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 14 1.000 3 2.000 1 -3.000 2 -4.000
 259 FOR UCL+3 FROM NEA
 UCL+3 200 3.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 1.720 -4.543 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 14 1.000 25 1.000
 260 FOR U02CL+ FROM NEA
 U02CL+ 500 1.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.

-8.833 36.313 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 14 1.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000
 261 FOR U02CL2(AQ) FROM NEA
 U02CL2(A) 500 0.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -10.093 37.987 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 14 2.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000
 262 FOR U02CL03+ FROM NEA
 U02CL03+ 500 1.000 12.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -154.736 253.594 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 14 1.000 25 1.000 3 5.000 1-10.000 2 -8.000
 268 FOR PU+3 FROM HARWELL R12324
 PU+3 200 3.000 3.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 16.9 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 29 1.000 2 1.000
 269 FOR PU02+ FROM HARWELL R12324
 PU02+ 400 1.000 5.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -18.600 46.230 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 29 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -1.000
 270 FOR PU02+2 FROM HARWELL R12324
 PU02+2 400 2.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -34.900 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 29 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000
 272 FOR (U02)2(OH)2+2 FROM NEA
 (U02)2(O) 400 2.000 12.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -23.617 77.803 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 25 2.000 3 6.000 1-10.000 2 -4.000
 273 FOR (U02)2OH+3 FROM NEA
 (U02)2OH 400 3.000 12.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -20.787 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 25 2.000 3 5.000 1 -9.000 2 -4.000
 275 FOR (U02)3(OH)4+2 FROM NEA
 (U02)3(O) 400 2.000 18.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -38.880 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 25 3.000 3 10.000 1-16.000 2 -6.000
 276 FOR (U02)3(OH)5+ FROM NEA
 (U02)3(O) 400 1.000 18.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -42.540 126.423 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 25 3.000 3 11.000 1-17.000 2 -6.000
 278 FOR (U02)3(OH)7- FROM NEA
 (U02)3(O) 400 -1.000 18.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -57.981 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 25 3.000 3 13.000 1-19.000 2 -6.000
 279 FOR (U02)4(OH)7+ FROM NEA
 (U02)4(O) 400 1.000 24.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -57.874 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 25 4.000 3 15.000 1-23.000 2 -8.000
 282 FOR U(OH)4(AQ) FROM NEA
 U(OH)4(A) 300 0.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -4.479 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 25 1.000 3 4.000 1 -4.000
 285 FOR U+3 FROM NEA
 U+3 200 3.000 3.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -8.615 24.414 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 25 1.000 2 1.000
 291 FOR U02(OH)2(AQ) FROM NEA
 U02(OH)2 400 0.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -20.994 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0

25 1.000 3 4.000 1 -6.000 2 -2.000
 292 FOR U02(OH)3- FROM NEA
 U02(OH)3 400 -1.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -28.994 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 25 1.000 3 5.000 1 -7.000 2 -2.000
 293 FOR U02(OH)4-2 FROM NEA
 U02(OH)4 400 -2.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -41.994 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 25 1.000 3 6.000 1 -8.000 2 -2.000
 296 FOR U02+ FROM NEA
 U02+ 400 1.000 5.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -7.507 32.932 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -1.000
 297 FOR U02+2 FROM NEA
 U02+2 400 2.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -8.993 34.400 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000
 302 FOR U02OH+ FROM NEA
 U02OH+ 400 1.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -14.193 44.723 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 25 1.000 3 3.000 1 -5.000 2 -2.000
 306 FOR U0H+3 FROM NEA
 U0H+3 300 3.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -0.540 11.217 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 25 1.000 3 1.000 1 -1.000
 309 FOR (TCO(OH)2)2(AQ) FROM NEA
 (TCO(OH)2)2(AQ) 300 0.000 8.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -0.133 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 24 2.000 1 -4.000 3 4.000
 310 FOR H2TCO4(AQ) FROM NEA
 H2TCO4(AQ) 400 0.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -34.310 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 24 1.000 1 -4.000 3 3.000 2 -2.000
 311 FOR HTC04- FROM NEA
 HTC04- 400 -1.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -34.608 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 24 1.000 1 -5.000 3 3.000 2 -2.000
 312 FOR TC+3 FROM NEA
 TC+3 400 3.000 3.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 5.391 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 24 1.000 1 2.000 3 -1.000 2 1.000
 313 FOR TCO(OH)2(AQ) FROM NEA
 TCO(OH)2 300 0.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -3.325 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 24 1.000 1 -2.000 3 2.000
 315 FOR TC04- FROM NEA
 TC04- 400 -1.000 7.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -32.993 102.109 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 24 1.000 1 -6.000 3 3.000 2 -3.000
 316 FOR TC04-2 FROM NEA
 TC04-2 400 -2.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -43.315 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 24 1.000 1 -6.000 3 3.000 2 -2.000
 317 FOR TC04-3 FROM NEA
 TC04-3 400 -3.000 5.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -53.287 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 24 1.000 1 -6.000 3 3.000 2 -1.000
 318 FOR TCOOH+ FROM NEA
 TCOOH+ 300 1.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
 -1.137 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
 24 1.000 3 1.000 1 -1.000

320 FOR UF+3 FROM NEA
UF+3 200 3.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
9.280 0.191 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
20 1.000 25 1.000

321 FOR UF2+2 FROM NEA
UF2+2 200 2.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
16.110 -4.853 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
20 2.000 25 1.000

322 FOR UF3+ FROM NEA
UF3+ 200 1.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
21.181 -6.297 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
20 3.000 25 1.000

323 FOR UF4(AQ) FROM NEA
UF4(AQ) 200 0.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
25.451 -8.504 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
20 4.000 25 1.000

324 FOR UF5- FROM NEA
UF5- 200 -1.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
27.031 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
20 5.000 25 1.000

325 FOR UF6-2 FROM NEA
UF6-2 200 -2.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
29.101 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
20 6.000 25 1.000

326 FOR U02F(AQ) FROM NEA
U02F(AQ) 500 0.000 5.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
-5.607 0.000 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
20 1.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -1.000

327 FOR U02F+ FROM NEA
U02F+ 500 1.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
-3.903 34.806 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
20 1.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000

328 FOR U02F2(AQ) FROM NEA
U02F2(AQ) 500 0.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
-0.373 34.495 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
20 2.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000

329 FOR U02F3- FROM NEA
U02F3- 500 -1.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
1.907 34.460 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
20 3.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000

330 FOR U02F4-2 FROM NEA
U02F4-2 500 -2.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
2.707 33.907 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.00000E+00 0.0
20 4.000 25 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -2.000

331 FOR PU020H+ FROM HARWELL R12324
PU020H+ 400 1.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
-40.5 0.0
29 1.000 1 -5.000 2 -2.000 3 3.000

332 FOR PU020H2 FROM HARWELL R12324
PU020H2 400 0.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
-45.3 0.0
29 1.000 1 -6.000 2 -2.000 3 4.000

333 FOR PU020H3- FROM HARWELL R12324
PU020H3- 400 -1.000 6.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
-54.9 0.0
29 1.000 1 -7.000 2 -2.000 3 5.000

334 FOR PU0H+3 FROM HARWELL R12324
PU0H+3 300 3.000 4.000 0.000 0.000 0.000 0.000 0.
-1.19 0.0
29 1.000 1 -1.000 3 1.000

335 FOR PU0H2+2 FROM HARWELL R12324

PUOH2+2	300	2.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.
	-1.79	0.0					
29	1.000	1 -2.000	3 2.000				
336	FOR PUOH3+	FROM HARWELL R12324					
PUOH3+	300	1.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.
	-4.75	0.0					
29	1.000	1 -3.000	3 3.000				
337	FOR PU(OH)4	FROM HARWELL R12324					
PU(OH)4	300	0.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.
	-10.54	0.0					
29	1.000	3 4.000	1 -4.000				
338	FOR PU(OH)5-	FROM HARWELL R12324					
PU(OH)5-	300	-1.000	4.000	0.000	0.000	0.000	0.
	-99.0	0.0					
29	1.000	3 5.000	1 -5.000				
339	FOR PUOH+2	FROM HARWELL R12324					
PUOH+2	400	2.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
	9.9	0.0					
29	1.000	1 -1.000	2 1.000	3 1.000			
340	FOR PUOH2+	FROM HARWELL R12324					
PUOH2+	400	1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
	-0.1	0.0					
29	1.000	1 -2.000	2 1.000	3 2.000			
341	FOR PU(OH)3	FROM HARWELL R12324					
PU(OH)3	400	0.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
	-9.6	0.0					
29	1.000	1 -3.000	2 1.000	3 3.000			
342	FOR PUOH4-	FROM HARWELL R12324					
PUOH4-	400	-1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
	-20.1	0.0					
29	1.000	1 -4.000	2 1.000	3 4.000			
343	FOR AMOH+2	FROM BATTELLE-PNL					
AMOH+2	300	2.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
	-8.2	0.0					
28	1.000	3 1.000	1 -1.000				
344	FOR AM(OH)2+	FROM BATTELLE-PNL					
AM(OH)2+	300	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
	-17.1	0.0					
28	1.000	3 2.000	1 -2.000				
345	FOR AM(OH)3	FROM BATTELLE-PNL					
AM(OH)3	300	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.
	-28.5	0.0					
28	1.000	3 3.000	1 -3.000				
346							
NDOH+2	300	2.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
	-8.0	0.0					
44	1.000	3 1.000	1 -1.000				
347							
ND(OH)2+	300	1.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
	-16.9	0.0					
44	1.000	3 2.000	1 -2.000				
348							
ND(OH)3	300	0.000	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
	-26.5	0.0					
44	1.000	3 3.000	1 -3.000				
349							
ND(OH)4-	300	-1.00	3.000	0.000	0.000	0.000	0.
	-37.1	0.0					
44	1.000	3 4.000	1 -4.000				
350							
ND2(OH)2	300	4.000	6.000	0.000	0.000	0.000	0.

-13.9	0.0							
44	2.000	3	2.000	1	-2.000			
353	FOR NI(OH)2	FROM HARWELL	R12324					
NI(OH)2	300	0.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	2.
-19.0	0.0							
31	1.000	3	2.000	1	-2.000			
354	FOR NI(OH)3-	FROM HARWELL	R12324					
NI(OH)3-	300	-1.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	3.
-30.0	0.0							
31	1.000	3	3.000	1	-3.000			
355	FOR NIOH+	FROM HARWELL	R12324					
NIOH+	300	1.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.
-9.9	0.0							
31	1.000	3	1.000	1	-1.000			
356	FOR NI2(OH)+3	FROM HARWELL	R12324					
NI2(OH)+	300	3.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.
-10.7	0.0							
31	2.000	3	1.000	1	-1.000			
357	FOR NI4(OH)4+4	FROM HARWELL	R12324					
NI4(OH)+	300	4.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	4.
-27.7	0.0							
31	4.000	3	4.000	1	-4.000			
358	FOR NISO4	FROM HARWELL	R12324					
NISO4	200	0.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	2.
-2.3	0.0							
31	1.000	16.	1.000					
359	FOR SE-2	FROM HARWELL	R12324					
SE-2	400	-2.000	-2.0	0.0	0.0	0.0	0.0	2.
66.3	0.0							
32	1.000	1	8.000	2	8.000	3	-4.000	
360	FOR HSE-	FROM HARWELL	R12324					
HSE-	400	-1.000	-2.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.
81.2	0.0							
32	1.000	1	9.000	2	8.000	3	-4.000	
361	FOR SE03-2	FROM HARWELL	R12324					
SE03-2	400	-2.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	2.
29.0	0.0							
32	1.000	1	2.000	2	2.000	3	-1.000	
362	FOR HSE03-	FROM HARWELL	R12324					
HSE03-	400	-1.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.
36.3	0.0							
32	1.000	1	3.000	2	2.000	3	-1.000	
363	FOR HSE04-	FROM HARWELL	R12324					
HSE04-	200	-1.000	6.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.
1.9	0.0							
32	1.000	1	1.000					
364	FOR H2SE03	FROM HARWELL	R12324					
H2SE03	400	0.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
38.9	0.0							
32	1.000	1	4.000	2	2.000	3	-1.000	
365	FOR H2SE	FROM HARWELL	R12324					
H2SE	400	0.000	-2.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
85.1	0.0							
32	1.000	1	10.000	2	8.000	3	-4.000	
366	FOR SR(OH)2	FROM HARWELL	R12324					
SR(OH)2	300	0.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
-28.5	0.0							
12	1.000	3	2.000	1	-2.000			
367	FOR SRCL+1	FROM HARWELL	R12324					
SRCL+1	200	1.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
-0.2	0.0							

12	1.000	14	1.000				
368	FOR SRCL2	FROM HARWELL	R12324				
SRCL2	200	0.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
0.0	0.0						
12	1.000	14	2.000				
369	FOR SRN03+	FROM HARWELL	R12324				
SRN03+	200	1.000	5.0	0.0	0.0	0.0	0.
0.8	0.0						
12	1.000	17	1.000				
370	FOR SRP04-	FROM HARWELL	R12324				
SRP04-	200	-1.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
4.2	0.0						
12	1.000	19	1.000				
371	FOR ZROH+3	FROM HARWELL	R12324				
ZROH+3	300	3.000	0.0	0.0	0.0	0.0	1.
0.3	0.0						
33	1.000	3	1.000	1 -1.000			
372	FOR ZR(OH)4	FROM HARWELL	R12324				
ZR(OH)4	300	0.000	0.0	0.0	0.0	0.0	4.
-9.7	0.0						
33	1.000	3	4.000	1 -4.000			
373	FOR ZR(OH)5-	FROM HARWELL	R12324				
ZR(OH)5-	300	-1.000	0.0	0.0	0.0	0.0	5.
-16.0	0.0						
33	1.000	3	5.000	1 -5.000			
374	FOR ZR3(OH)4+8	FROM HARWELL	R12324				
ZR3(OH)4	300	8.000	0.0	0.0	0.0	0.0	4.
-0.6	0.0						
33	3.000	3	4.000	1 -4.000			
375	FOR ZR4(OH)8+8	FROM HARWELL	R12324				
ZR4(OH)8	300	8.000	0.0	0.0	0.0	0.0	8.
6.0	0.0						
33	4.000	3	8.000	1 -8.000			
376	FOR ZRS04+2	FROM HARWELL	R12324				
ZRS04+2	200	2.000	6.0	0.0	0.0	0.0	1.
2.5	0.0						
33	1.000	16	1.000				
377	FOR ZRCL+3	FROM HARWELL	R12324				
ZRCL+3	200	3.000	6.0	0.0	0.0	0.0	0.
0.3	0.0						
33	1.000	14	1.000				
378	FOR SN+4	FROM EQ3/6 DATA0.3245R54					
SN+4	200	4.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
-5.38	0.0						
34	1.000	2	-2.000				
379	FOR SNOH+	FROM EQ3/6 DATA0.3245R54					
SNOH+	300	1.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.
-3.89	0.0						
34	1.000	3	1.000	1 -1.000			
380	FOR SN(OH)2	FROM EQ3/6 DATA0.3245R54					
SN(OH)2	300	0.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.
-7.90	0.0						
34	1.000	3	2.000	1 -2.000			
381	FOR SN(OH)3-	FROM EQ3/6 DATA0.3245R54					
SN(OH)3-	300	-1.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.
-17.39	0.0						
34	1.000	3	3.000	1 -3.000			
382	FOR SN(OH)2+2	FROM EQ3/6 DATA0.3245R54					
SN(OH)22	400	2.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
-5.56	0.0						
34	1.000	3	2.000	1 -2.000	2 -2.000		

383 FOR SN(OH)3+ FROM EQ3/6 DATA0.3245R54
 SN(OH)3+ 400 1.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -4.85 0.0
 34 1.000 3 3.000 1 -3.000 2 -2.000
 384 FOR SNCL+ FROM EQ3/6 DATA0.3245R54
 SNCL+ 200 1.000 2.0 0.0 0.0 0.0 0.
 1.05 0.0
 34 1.000 14 1.000
 385 FOR SNCL2 FROM EQ3/6 DATA0.3245R54
 SNCL2 200 0.000 2.0 0.0 0.0 0.0 0.
 1.71 0.0
 34 1.000 14 2.000
 386 FOR SNCL3- FROM EQ3/6 DATA0.3245R54
 SNCL3- 200 -1.000 2.0 0.0 0.0 0.0 0.
 1.69 0.0
 34 1.000 14 3.000
 387 FOR I3- FROM HARWELL R12324
 I3- 200 -1.000 -3.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -18.3 28.5
 23 3.000 2 -2.000
 388 FOR HI FROM HARWELL R12324
 HI 200 0.000 -1.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -0.051 0.41
 23 1.000 1 1.000
 389 FOR IO- FROM HARWELL R12324
 IO- 400 -1.000 1.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -44.0 56.2
 23 1.000 3 1.000 1 -2.000 2 -2.000
 390 FOR I04- FROM HARWELL R12324
 I04- 400 -1.000 7.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -165.0 251.0
 23 1.000 3 4.000 1 -8.000 2 -8.000
 391 FOR I20-2 FROM HARWELL R12324
 I20-2 400 -2.000 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -45.30 0.0
 23 2.000 3 1.000 1 -2.000 2 -2.000
 392 FOR H10 FROM HARWELL R12324
 H10 400 0.000 1.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -33.3 48.9
 23 1.000 3 1.000 1 -1.000 2 -2.000
 393 FOR H20I- FROM HARWELL R12324
 H20I- 200 -1.000 -1.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -32.10 0.0
 23 1.000 3 1.000
 394 FOR I20H- FROM HARWELL R12324
 I20H- 400 -1.000 0.0 0.0 0.0 0.0 1.
 -19.4 0.0
 23 2.000 3 1.000 1 -1.000 2 -2.000
 395 FOR H103 FROM HARWELL R12324
 H103 400 0.000 5.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -111.0 168.0
 23 1.000 3 3.000 1 -5.000 2 -6.000
 396 FOR I2CL- FROM HARWELL R12324
 I2CL- 300 -1.000 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -20.8 34.2
 23 2.000 14 1.000 2 -2.000
 397 FOR ICL- FROM HARWELL R12324
 ICL- 300 -1.000 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -29.0 0.0
 23 1.000 14 1.000 2 -1.000
 398 FOR ICL2- FROM HARWELL R12324

ICL2-	300	-1.000	1.0	0.0	0.0	0.0	0.
	-26.9	0.0					
23	1.000	14	2.000	2	-2.000		
399	FOR I2	FROM HARWELL	R12324				
I2	200	0.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
	-18.18	27.2					
23	2.000	2	-2.000				
400	FOR PBOH+	FROM HARWELL	R12324				
PBOH+	300	1.000	2.0	0.0	0.0	0.0	1.
	-7.7	0.0					
36	1.000	3	1.000	1	-1.000		
401	FOR PB(OH)2	FROM HARWELL	R12324				
PB(OH)2	300	0.000	2.0	0.0	0.0	0.0	2.
	-17.1	0.0					
36	1.000	3	2.000	1	-2.000		
402	FOR PB(OH)3-	FROM HARWELL	R12324				
PB(OH)3-	300	-1.000	2.0	0.0	0.0	0.0	3.
	-27.3	0.0					
36	1.000	3	3.000	1	-3.000		
403	FOR PB2(OH)+3	FROM HARWELL	R12324				
PB2(OH)	300	3.000	4.0	0.0	0.0	0.0	1.
	-6.4	0.0					
36	2.000	3	1.000	1	-1.000		
404	FOR PB3(OH)4+2	FROM HARWELL	R12324				
PB3(OH)4	300	2.000	6.0	0.0	0.0	0.0	4.
	-23.9	0.0					
36	3.000	3	4.000	1	-4.000		
405	FOR PB6(OH)8+4	FROM HARWELL	R12324				
PB6(OH)8	300	4.000	12.0	0.0	0.0	0.0	8.
	-43.6	0.0					
36	6.000	3	8.000	1	-8.000		
406	FOR PBCO3	FROM HARWELL	R12324				
PBCO3	200	0.000	6.0	0.0	0.0	0.0	2.
	7.3	0.0					
36	1.000	15	1.000				
407	FOR PB(CO3)2-2	FROM HARWELL	R12324				
PB(CO3)2	200	-2.000	10.0	0.0	0.0	0.0	4.
	10.78	0.0					
36	1.000	15	2.000				
408	FOR PBSO4	FROM HARWELL	R12324				
PBSO4	200	0.000	8.0	0.0	0.0	0.0	0.
	2.59	0.0					
36	1.000	16	1.000				
409	FOR PB(SO4)2-2	FROM HARWELL	R12324				
PB(SO4)2	200	-2.000	14.0	0.0	0.0	0.0	0.
	3.5	0.0					
36	1.000	16	2.000				
410	FOR PBCL+	FROM HARWELL	R12324				
PBCL+	200	1.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.
	1.61	0.0					
36	1.000	14	1.000				
411	FOR PBCL2	FROM HARWELL	R12324				
PBCL2	200	0.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.
	2.44	0.0					
36	1.000	14	2.000				
412	FOR PBCL3-	FROM HARWELL	R12324				
PBCL3-	200	-1.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.
	2.01	0.0					
36	1.000	14	3.000				
413	FOR PB4(OH)4+4	FROM HARWELL	R12324				
PB4(OH)+	300	4.000	8.0	0.0	0.0	0.0	4.

-20.88	0.0						
36	4.000	3	4.000	1	-4.000		
424	FOR RAOH+	FROM HARWELL	R12324				
RAOH+	300	1.000	0.0	0.0	0.0	0.0	1.
-13.6	0.0						
37	1.000	3	1.000	1	-1.000		
425	FOR RAS04	FROM HARWELL	R12324				
RAS04	200	0.000	6.0	0.0	0.0	0.0	0.
0.022	0.0						
37	1.000	16	1.000				
426	FOR THOH+3	FROM HARWELL	R12324				
THOH+3	300	3.000	0.0	0.0	0.0	0.0	1.
-3.20	0.0						
38	1.000	3	1.000	1	-1.000		
427	FOR TH(OH)2+2	FROM HARWELL	R12324				
TH(OH)2+	300	2.000	0.0	0.0	0.0	0.0	2.
-6.9	0.0						
38	1.000	3	2.000	1	-2.000		
428	FOR TH(OH)3+	FROM HARWELL	R12324				
TH(OH)3+	300	1.000	0.0	0.0	0.0	0.0	3.
-11.70	0.0						
38	1.000	3	3.000	1	-3.000		
429	FOR TH(OH)4	FROM HARWELL	R12324				
TH(OH)4	300	0.000	0.0	0.0	0.0	0.0	4.
-15.87	18.66						
38	1.000	3	4.000	1	-4.000		
430	FOR TH4(OH)8+8	FROM HARWELL	R12324				
TH4(OH)8	300	8.000	0.0	0.0	0.0	0.0	8.
-21.10	0.0						
38	4.000	3	8.000	1	-8.000		
431	FOR TH2(OH)2+6	FROM HARWELL	R12324				
TH2(OH)2	300	6.000	0.0	0.0	0.0	0.0	2.
-6.14	0.0						
38	2.000	3	2.000	1	-2.000		
432	FOR THCO3+2	FROM HARWELL	R12324				
THCO3+2	200	2.000	0.0	0.0	0.0	0.0	2.
11.03	0.0						
38	1.000	15	1.000				
433	FOR THHP04+2	FROM HARWELL	R12324				
THHP04+2	300	2.000	0.0	0.0	0.0	0.0	2.
23.16	0.0						
38	1.000	19	1.000	1	1.000		
434	FOR TH(HP04)2	FROM HARWELL	R12324				
TH(HP04)	300	0.000	0.0	0.0	0.0	0.0	4.
47.49	0.0						
38	1.000	19	2.000	1	2.000		
435	FOR TH(HP04)3-2	FROM HARWELL	R12324				
THHP043-	300	-2.000	0.0	0.0	0.0	0.0	6.
68.30	0.0						
38	1.000	19	3.000	1	3.000		
436	FOR THH2P04+3	FROM HARWELL	R12324				
THH2P04+	300	3.000	0.0	0.0	0.0	0.0	1.
24.19	0.0						
38	1.000	19	1.000	1	2.000		
437	FOR THH2P042+2	FROM HARWELL	R12324				
THH2P042	300	2.000	0.0	0.0	0.0	0.0	2.
48.0	0.0						
38	1.000	19	2.000	1	4.000		
438	FOR THH3P04+4	FROM HARWELL	R12324				
THH3P04+	300	4.000	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
23.6	0.0						

38	1.000	19	1.000	1	3.000			
439	FOR THS04+2	FROM HARWELL	R12324					
THS04+2	200		2.000	6.0		0.0	0.0	0.0
	5.441		0.0					2.
38	1.000	16	1.000					
440	FOR TH(S04)2	FROM HARWELL	R12324					
TH(S04)2	200		0.000	12.0		0.0	0.0	0.0
	9.75		0.0					4.
38	1.000	16	2.000					
441	FOR TH(S04)3-2	FROM HARWELL	R12324					
TH(S04)3-	200		-2.000	18.0		0.0	0.0	0.0
	10.46		0.0					6.
38	1.000	16	3.000					
442	FOR TH(S04)4-4	FROM HARWELL	R12324					
TH(S04)4	200		-4.000	24.0		0.0	0.0	0.0
	8.44		0.0					8.
38	1.000	16	4.000					
443	FOR THCL4	FROM HARWELL	R12324					
THCL4	200		0.000	0.0		0.0	0.0	0.0
	1.24		0.0					0.
38	1.000	14	4.000					
444	FOR THCL3+	FROM HARWELL	R12324					
THCL3+	200		1.000	0.0		0.0	0.0	0.0
	1.67		0.0					0.
38	1.000	14	3.000					
445	FOR THCL2+2	FROM HARWELL	R12324					
THCL2+2	200		2.000	0.0		0.0	0.0	0.0
	0.76		0.0					0.
38	1.000	14	2.000					
446	FOR THCL+3	FROM HARWELL	R12324					
THCL+3	200		3.000	0.0		0.0	0.0	0.0
	1.38		0.0					0.
38	1.000	14	1.000					
447	FOR THF4	FROM HARWELL	R12324					
THF4	200		0.000	0.0		0.0	0.0	0.0
	23.2		0.0					0.
38	1.000	20	4.000					
448	FOR TH(N03)+3	FROM HARWELL	R12324					
TH(N03)+	200		3.000	5.0		0.0	0.0	0.0
	1.6		0.0					0.
38	1.000	17	1.000					
449	FOR TH(N03)2+2	FROM HARWELL	R12324					
TH(N03)2	200		2.000	10.0		0.0	0.0	0.0
	2.84		0.0					0.
38	1.000	17	2.000					
450	FOR TH4(N03)3+	FROM HARWELL	R12324					
TH4(N03)	200		1.000	15.0		0.0	0.0	0.0
	2.00		0.0					0.
38	1.000	17	3.000					
451	FOR TH(N03)4	FROM HARWELL	R12324					
TH(N03)4	200		0.000	20.0		0.0	0.0	0.0
	1.0		0.0					0.
38	1.000	17	4.000					
452	FOR PA+3	FROM HARWELL	R12324					
PA+3	200		3.000	3.0		0.0	0.0	0.0
	2.03		0.0					0.
39	1.000	2	1.000					
453	FOR PA02+	FROM HARWELL	R12324					
PA02+	400		1.000	5.0		0.0	0.0	0.0
	7.79		0.0					0.
39	1.000	3	2.000	1	-4.000	2	-1.000	

454 FOR PA(OH)+3 FROM HARWELL R12324
 PA(OH)+3 300 3.000 4.0 0.0 0.0 0.0 1.
 0.84 0.0
 39 1.000 3 1.000 1 -1.000
 455 FOR PA(OH)2+2 FROM HARWELL R12324
 PA(OH)2+ 300 2.000 4.0 0.0 0.0 0.0 2.
 -0.02 0.0
 39 1.000 3 2.000 1 -2.000
 456 FOR PA(OH)3+ FROM HARWELL R12324
 PA(OH)3+ 300 1.000 4.0 0.0 0.0 0.0 3.
 -1.5 0.0
 39 1.000 3 3.000 1 -3.000
 457 FOR PAO(OH)+2 FROM HARWELL R12324
 PAO(OH)+ 400 2.000 5.0 0.0 0.0 0.0 1.
 7.29 0.0
 39 1.000 3 2.000 2 -1.000 1 -3.000
 458 FOR PAO2(OH) FROM HARWELL R12324
 PAO2(OH) 400 0.000 5.0 0.0 0.0 0.0 1.
 3.29 0.0
 39 1.000 3 3.000 2 -1.000 1 -5.000
 484 FOR NP02+ FROM HARWELL R12324
 NP02+ 400 1.000 5.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -11.37 35.73
 40 1.000 3 2.000 1 -4.000 2 -1.000
 485 FOR NP02+2 FROM HARWELL R12324
 NP02+2 400 2.000 6.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -32.29 0.0
 40 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000
 486 FOR NP+3 FROM HARWELL R12324
 NP+3 200 3.000 3.0 0.0 0.0 0.0 0.
 3.03 0.0
 40 1.000 2 1.000
 487 FOR NPOH+2 FROM HARWELL R12324
 NPOH+2 400 2.000 3.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -4.37 0.0
 40 1.000 3 1.000 1 -1.000 2 1.000
 488 FOR NP(OH)2+ FROM HARWELL R12324
 NP(OH)2+ 400 1.000 3.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -13.97 0.0
 40 1.000 1 -2.000 2 1.000 3 2.000
 489 FOR NP(OH)3 FROM HARWELL R12324
 NP(OH)3 400 0.000 3.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -23.97 0.0
 40 1.000 1 -3.000 2 1.000 3 3.000
 490 FOR NP(OH)4- FROM HARWELL R12324
 NP(OH)4- 400 -1.000 3.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -34.97 0.0
 40 1.000 1 -4.000 2 1.000 3 4.000
 491 FOR NP2(OH)2+4 FROM HARWELL R12324
 NP2(OH)2 400 4.000 6.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -7.43 0.0
 40 2.000 1 -2.000 2 2.000 3 2.000
 492 FOR NPC03+ FROM HARWELL R12324
 NPC03+ 300 1.000 7.0 0.0 0.0 0.0 0.
 9.53 0.0
 40 1.000 2 1.000 15 1.000
 493 FOR NP(CO3)2- FROM HARWELL R12324
 NP(CO3)2 300 -1.000 11.0 0.0 0.0 0.0 0.
 14.03 0.0
 40 1.000 2 1.000 15 2.000
 494 FOR NP(CO3)3-3 FROM HARWELL R12324

NP(CO3)3	300	-3.000	15.0	0.0	0.0	0.0	0.
	17.53	0.0					
40	1.000	2	1.000 15	3.000			
495	FOR NPCL+2	FROM HARWELL	R12324				
NPCL+2	300	2.000	3.0	0.0	0.0	0.0	0.
	0.63	0.0					
40	1.000	2	1.000 14	1.000			
496	FOR NPCL2+	FROM HARWELL	R12324				
NPCL2+	300	1.000	3.0	0.0	0.0	0.0	0.
	-2.35	0.0					
40	1.000	2	1.000 14	2.000			
497	FOR NPOH+3	FROM HARWELL	R12324				
NPOH+3	300	3.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
	-1.5	0.0					
40	1.000	1	-1.000 3	1.000			
498	FOR NP(OH)2+2	FROM HARWELL	R12324				
NPOH2+2	300	2.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
	-3.0	0.0					
40	1.000	1	-2.000 3	2.000			
499	FOR NP(OH)3+	FROM HARWELL	R12324				
NP(OH)3+	300	1.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
	-6.0	0.0					
40	1.000	1	-3.000 3	3.000			
500	FOR NP(OH)4	FROM HARWELL	R12324				
NP(OH)4	300	0.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
	-9.0	0.0					
40	1.000	1	-4.000 3	4.000			
502	FOR NP2(OH)2+6	FROM HARWELL	R12324				
NP2OH2+6	300	6.000	8.0	0.0	0.0	0.0	0.
	-2.0	0.0					
40	2.000	1	-2.000 3	2.000			
503	FOR NP(OH)3CO3-	FROM HARWELL	R12324				
NPOH3CO3	400	-1.000	8.0	0.0	0.0	0.0	0.
	-1.0	0.0					
40	1.000	1	-3.000 3	3.000 15	1.000		
504	FOR NPSO4+2	FROM HARWELL	R12324				
NPSO4+2	200	2.000	10.0	0.0	0.0	0.0	0.
	3.41	0.0					
40	1.000	16	1.000				
505	FOR NP(SO4)2	FROM HARWELL	R12324				
NP(SO4)2	200	0.000	16.0	0.0	0.0	0.0	0.
	5.42	0.0					
40	1.000	16	2.000				
506	FOR NPCL+3	FROM HARWELL	R12324				
NPCL+3	200	3.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
	-0.04	0.0					
40	1.000	14	1.000				
507	FOR NPCL2+2	FROM HARWELL	R12324				
NPCL2+2	200	2.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
	-0.24	0.0					
40	1.000	14	2.000				
508	FOR NPCL3+	FROM HARWELL	R12324				
NPCL3+	200	1.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
	-0.5	0.0					
40	1.000	14	3.000				
509	FOR NP020H	FROM HARWELL	R12324				
NP020H	400	0.000	5.0	0.0	0.0	0.0	1.

-24.50 0.0
 40 1.000 1 -5.000 2 -1.000 3 3.000
 510 FOR NP02(OH)2- FROM HARWELL R12324
 NP02OH2- 400 -1.000 5.0 0.0 0.0 0.0 0.0 2.
 -36.15 0.0
 40 1.000 1 -6.000 2 -1.000 3 4.000
 511 FOR NP02CL FROM HARWELL R12324
 NP02CL 500 0.000 5.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -11.67 0.0
 40 1.000 1 -4.000 2 -1.000 3 2.000 14 1.000
 512 FOR NP02HC03- FROM HARWELL R12324
 NP02HC03 500 0.000 9.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 2.05 0.0
 40 1.000 1 -3.000 2 -1.000 3 2.000 15 1.000
 513 FOR NP02C03- FROM HARWELL R12324
 NP02C03- 500 -1.000 9.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -6.48 0.0
 40 1.000 1 -4.000 2 -1.000 3 2.000 15 1.000
 514 FOR NP02(C03)2-3 FROM HARWELL R12324
 NP02C032 500 -3.000 13.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -4.26 0.0
 40 1.000 1 -4.000 2 -1.000 3 2.000 15 2.000
 515 FOR NP02(C03)3-5 FROM HARWELL R12324
 NP02C033 500 -5.000 17.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -4.03 0.0
 40 1.000 1 -4.000 2 -1.000 3 2.000 15 3.000
 516 FOR NP02OH+ FROM HARWELL R12324
 NP02OH 400 1.000 6.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -37.39 0.0
 40 1.000 1 -5.000 2 -2.000 3 3.000
 517 FOR NP02(OH)2 FROM HARWELL R12324
 NP02OH2 400 0.000 6.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -43.81 0.0
 40 1.000 1 -6.000 2 -2.000 3 4.000
 518 FOR NP02(OH)3- FROM HARWELL R12324
 NP02OH3- 400 -1.000 6.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -53.99 0.0
 40 1.000 1 -7.000 2 -2.000 3 5.000
 519 FOR NP02(OH)2+2 FROM HARWELL R12324
 NP02OH2+ 400 2.000 12.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -70.98 0.0
 40 2.000 1 -10.000 2 -4.000 3 6.000
 520 FOR (NP02)3(OH)5+ FROM HARWELL R12324
 NP023OH5 400 1.000 18.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -114.37 0.0
 40 3.000 1 -17.000 2 -6.000 3 11.000
 521 FOR (NP02)2OH+3 FROM HARWELL R12324
 NP022OH+ 400 3.000 12.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -68.58 0.0
 40 2.000 1 -9.000 2 -4.000 3 5.000
 522 FOR NP02C03 FROM HARWELL R12324
 NP02C03 500 0.000 10.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -22.29 0.0
 40 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 15 1.000
 523 FOR NP02(C03)2-2 FROM HARWELL R12324
 NP02C032 500 -2.000 14.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -15.29 0.0
 40 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 15 2.000
 524 FOR NP02(C03)3-4 FROM HARWELL R12324
 NP02C033 500 -4.000 18.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -11.29 0.0

40	1.000	1	-4.000	2	-2.000	3	2.000	15	3.000
525	FOR	NPO2S04	FROM	HARWELL	R12324				
NPO2S04	500	0.000	12.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	-29.02	0.0							
40	1.000	1	-4.000	2	-2.000	3	2.000	16	1.000
526	FOR	NPO2(S04)2-2	FROM	HARWELL	R12324				
NPO2S042	500	-2.000	18.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	-28.19	0.0							
40	1.000	1	-4.000	2	-2.000	3	2.000	16	2.000
527	FOR	NPO2(S04)3-4	FROM	HARWELL	R12324				
NPO2S043	500	-4.000	24.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	-27.29	0.0							
40	1.000	1	-4.000	2	-2.000	3	2.000	16	3.000
528	FOR	NPO2CL+	FROM	HARWELL	R12324				
NPO2CL+	500	1.000	6.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	-32.59	0.0							
40	1.000	1	-4.000	2	-2.000	3	2.000	14	1.000
529	FOR	NPO2CL2	FROM	HARWELL	R12324				
NPO2CL2	500	0.000	6.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	-31.29	0.0							
40	1.000	1	-4.000	2	-2.000	3	2.000	14	2.000
530	FOR	NPO2F	FROM	HARWELL	R12324				
NPO2F	500	0.000	5.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	-10.38	0.0							
40	1.000	3	2.000	1	-4.000	2	-1.000	20	1.000
531	FOR	NPF+3	FROM	HARWELL	R12324				
NPF+3	200	3.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	8.33	0.0							
40	1.000	20	1.000						
532	FOR	NPF2+2	FROM	HARWELL	R12324				
NPF2+2	200	2.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	14.59	0.0							
40	1.000	20	2.000						
533	FOR	NPF3+	FROM	HARWELL	R12324				
NPF3+	200	1.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	20.3	0.0							
40	1.000	20	3.000						
534	FOR	NPF4	FROM	HARWELL	R12324				
NPF4	200	0.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	25.1	0.0							
40	1.000	20	4.000						
535	FOR	(PU02)2(OH)2+2	FROM	HARWELL	R12324				
PU0220H2	400	2.000	12.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	-78.2	0.0							
29	2.000	1-10.000	2	-4.000	3	6.000			
536	FOR	(PU02)3(OH)5+	FROM	HARWELL	R12324				
PU0230H5	400	1.000	18.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	-126.3	0.0							
29	3.000	1-17.000	2	-6.000	3	11.000			
537	FOR	(PU02)3(OH)4+2	FROM	HARWELL	R12324				
PU0230H4	400	2.000	18.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	-109.7	0.0							
29	3.000	1-16.000	2	-6.000	3	10.000			
538	FOR	PU02C03	FROM	HARWELL	R12324				
PU02C03	500	0.000	10.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	-22.9	0.0							
29	1.000	1	-4.000	2	-2.000	3	2.000	15	1.000
539	FOR	PU02(C03)2-2	FROM	HARWELL	R12324				
PU02C032	500	-2.000	14.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.	
	-19.9	0.0							
29	1.000	1	-4.000	2	-2.000	3	2.000	15	2.000

540 FOR PU02(C03)3-4 FROM HARWELL R12324
 PU02C033 500 -4.000 18.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -14.0 0.0
 29 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 15 3.000
 541 FOR PU02(OH)C03- FROM HARWELL R12324
 PU02OHCO 500 -1.000 10.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -25.05 0.0
 29 1.000 1 -5.000 2 -2.000 3 3.000 15 1.000
 542 FOR PU02(OH)2C03-2 FROM HARWELL R12324
 PU02OH2C 500 -2.000 10.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -39.9 0.0
 29 1.000 1 -6.000 2 -2.000 3 4.000 15 1.000
 543 FOR PU02H(C02)- FROM HARWELL R12324
 PU02HC02 500 -1.000 14.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -12.6 0.0
 29 1.000 1 -3.000 2 -2.000 3 2.000 15 2.000
 544 FOR PU02CL+ FROM HARWELL R12324
 PU02CL+ 500 1.000 6.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -35.2 0.0
 29 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 14 1.000
 545 FOR PU02CL2 FROM HARWELL R12324
 PU02CL2 500 0.000 6.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -35.15 0.0
 29 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 14 2.000
 546 FOR PU02S04 FROM HARWELL R12324
 PU02S04 500 0.000 12.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -31.7 0.0
 29 1.000 1 -4.000 2 -2.000 3 2.000 16 1.000
 547 FOR PU02OH FROM HARWELL R12324
 PU02OH 400 0.000 5.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -28.3 0.0
 29 1.000 1 -5.000 2 -1.000 3 3.000
 548 FOR PU02(OH)2- FROM HARWELL R12324
 PU02OH2- 400 -1.000 5.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -37.6 0.0
 29 1.000 1 -6.000 2 -1.000 3 4.000
 549 FOR PU02CL FROM HARWELL R12324
 PU02CL 500 0.000 5.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -18.77 0.0
 29 1.000 1 -4.000 2 -1.000 3 2.000 14 1.000
 550 FOR PU2(OH)2+6 FROM HARWELL R12324
 PU2OH2+6 300 6.000 8.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -1.0 0.0
 29 2.000 1 -2.000 3 2.000
 551 FOR PU2(OH)3+5 FROM HARWELL R12324
 PU2OH3+5 300 5.000 8.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -2.0 0.0
 29 2.000 1 -3.000 3 3.000
 552 FOR PU2(OH)4+4 FROM HARWELL R12324
 PU2OH4+4 300 4.000 8.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -3.0 0.0
 29 2.000 1 -4.000 3 4.000
 553 FOR PU2(OH)5+3 FROM HARWELL R12324
 PU2OH5+3 300 3.000 8.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -7.0 0.0
 29 2.000 1 -5.000 3 5.000
 554 FOR PUS04+2 FROM HARWELL R12324
 PUS04+2 200 2.000 10.0 0.0 0.0 0.0 0.
 5.72 0.0
 29 1.000 16 1.000
 555 FOR PU(SO4)2 FROM HARWELL R12324

PUS042	200	0.000	16.0	0.0	0.0	0.0	0.
10.25	0.0						
29	1.000	16	2.000				
556	FOR PU(SO4)3-2	FROM HARWELL	R12324				
PUS043-2	200	-2.000	22.0	0.0	0.0	0.0	0.
11.5	0.0						
29	1.000	16	3.000				
557	FOR PUCL+3	FROM HARWELL	R12324				
PUCL+3	200	3.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
0.93	0.0						
29	1.000	14	1.000				
558	FOR PUCL2+2	FROM HARWELL	R12324				
PUCL2+2	200	2.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
-0.17	0.0						
29	1.000	14	2.000				
559	FOR PUCL3+ FROM HARWELL	R12324					
PUCL3+	200	1.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.
-1.0	0.0						
29	1.000	14	3.000				
560	FOR PU3(OH)5+4	FROM HARWELL	R12324				
PU3OH5+4	400	4.000	9.0	0.0	0.0	0.0	0.
17.7	0.0						
29	3.000	1	-5.000	2	3.000	3	5.000
561	FOR PU2(OH)2+4	FROM HARWELL	R12324				
PU2OH2+4	400	4.000	6.0	0.0	0.0	0.0	0.
19.8	0.0						
29	2.000	1	-2.000	2	2.000	3	2.000
562	FOR PUCO3+ FROM HARWELL	R12324					
PUCO3+	300	1.000	7.0	0.0	0.0	0.0	0.
23.4	0.0						
29	1.000	2	1.000	15	1.000		
563	FOR PU(CO3)2- FROM HARWELL	R12324					
PUCO32-	300	-1.000	11.0	0.0	0.0	0.0	0.
27.9	0.0						
29	1.000	2	1.000	15	2.000		
564	FOR PU(CO3)3-3	FROM HARWELL	R12324				
PUCO33-3	300	-3.000	15.0	0.0	0.0	0.0	0.
31.4	0.0						
29	1.000	2	1.000	15	3.000		
565	FOR PUSO4+ FROM HARWELL	R12324					
PUSO4+	300	1.000	9.0	0.0	0.0	0.0	0.
20.4	0.0						
29	1.000	2	1.000	16	1.000		
566	FOR PU(HSO4)2+ FROM HARWELL	R12324					
PUHSO42+	400	1.000	15.0	0.0	0.0	0.0	0.
23.8	0.0						
29	1.000	2	1.000	1	2.000	16	2.000
567	FOR PUHSO4+2 FROM HARWELL	R12324					
PUHSO4+2	400	2.000	9.0	0.0	0.0	0.0	0.
17.9	0.0						
29	1.000	2	1.000	1	1.000	16	1.000
568	FOR PU(SO4)2- FROM HARWELL	R12324					
PUSO42-	300	-1.000	15.0	0.0	0.0	0.0	0.
22.1	0.0						
29	1.000	2	1.000	16	2.000		
569	FOR PUCL+2 FROM HARWELL	R12324					
PUCL+2	300	2.000	3.0	0.0	0.0	0.0	0.
16.8	0.0						
29	1.000	2	1.000	14	1.000		
570	FOR PUCL2+ FROM HARWELL	R12324					
PUCL2+	300	1.000	3.0	0.0	0.0	0.0	0.

11.9	0.0							
29	1.000	2	1.000	14	2.000			
571	FOR PU02H2P04+	FROM HARWELL	R12324					
PU02H2P0	500	1.000	6.0	0.0	0.0	0.0	0.	
-11.46	0.0							
29	1.000	3	2.000	19	1.000	2 -2.000	1 -2.000	
572	FOR PU02HP04-	FROM HARWELL	R12324					
PU02HP04	500	-1.000	5.0	0.0	0.0	0.0	0.	
-3.45	0.0							
29	1.000	3	2.000	19	1.000	2 -1.000	1 -3.000	
573	FOR PUHP04+2	FROM HARWELL	R12324					
PUHP04+2	300	2.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.	
25.28	0.0							
29	1.000	1	1.000	19	1.000			
574	FOR PUH2(P04)2	FROM HARWELL	R12324					
PUH2P042	300	0.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.	
48.44	0.0							
29	1.000	1	2.000	19	2.000			
575	FOR PUH3(P04)3-2	FROM HARWELL	R12324					
PUH3P043	300	-2.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.	
70.42	0.0							
29	1.000	1	3.000	19	3.000			
576	FOR PUH4(P04)4-4	FROM HARWELL	R12324					
PUH4P044	300	-4.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.	
92.53	0.0							
29	1.000	1	4.000	19	4.000			
577	FOR PUH2P04+2	FROM HARWELL	R12324					
PUH2P04+	400	2.000	3.0	0.0	0.0	0.0	0.	
38.93	0.0							
29	1.000	1	2.000	19	1.000	2 1.000		
578	FOR PUC03+2	FROM HARWELL	R12324					
PUC032+2	200	2.000	8.0	0.0	0.0	0.0	0.	
19.1	0.0							
29	1.000	15	1.000					
579	FOR PU(CO3)2	FROM HARWELL	R12324					
PUC032	200	0.000	12.0	0.0	0.0	0.0	0.	
33.10	0.0							
29	1.000	15	2.000					
580	FOR PU(CO3)3-2	FROM HARWELL	R12324					
PUC033-2	200	-2.000	16.0	0.0	0.0	0.0	0.	
42.30	0.0							
29	1.000	15	3.000					
581	FOR PU(CO3)4-4	FROM HARWELL	R12324					
PUC034-4	200	-4.000	20.0	0.0	0.0	0.0	0.	
45.10	0.0							
29	1.000	15	4.000					
582	FOR PU(CO3)5-6	FROM HARWELL	R12324					
PUC035-6	200	-6.000	24.0	0.0	0.0	0.0	0.	
44.50	0.0							
29	1.000	15	5.000					
583	FOR PUN03+3	FROM HARWELL	R12324					
PUN03+3	200	3.000	9.0	0.0	0.0	0.0	0.	
1.80	0.0							
29	1.000	17	1.000					
584	FOR PU(N03)2+2	FROM HARWELL	R12324					
PUN032+2	200	2.000	14.0	0.0	0.0	0.0	0.	
2.40	0.0							
29	1.000	17	2.000					
585	FOR PU(N03)3+	FROM HARWELL	R12324					
PUN033+	200	1.000	19.0	0.0	0.0	0.0	0.	
2.30	0.0							

29	1.000	17	3.000					
586	FOR PU02N03+	FROM HARWELL	R12324					
PU02N03+	500	1.000	11.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
-35.5	0.0							
29	1.000	1	-4.000	2 -2.000	3 2.000	17 1.000		
587	FOR PUF+3	FROM HARWELL	R12324					
PUF+3	200	3.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
8.44	0.0							
29	1.000	20	1.000					
588	FOR PUF2+2	FROM HARWELL	R12324					
PUF2+2	200	2.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
15.08	0.0							
29	1.000	20	2.000					
589	FOR PUF3+	FROM HARWELL	R12324					
PUF3+	200	1.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
19.8	0.0							
29	1.000	20	3.000					
590	FOR PUF4	FROM HARWELL	R12324					
PUF4	200	0.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
23.20	0.0							
29	1.000	20	4.000					
591	FOR PU02F+	FROM HARWELL	R12324					
PU02F+	500	1.000	6.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
-30.69	0.0							
29	1.000	3	2.000	2 -2.000	1 -4.000	20 1.000		
592	FOR AMC03+	FROM BATTELLE-PNL						
AMC03+	200	1.000	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
7.60	0.0							
28	1.000	15	1.000					
593	FOR AM(C03)2-	FROM BATTELLE-PNL						
AMC032-	200	-1.000	8.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
12.30	0.0							
28	1.000	15	2.000					
594	FOR AM(C03)3-3	FROM BATTELLE-PNL						
AMC033-3	200	-3.000	12.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
15.23	0.0							
28	1.000	15	3.000					
602	FOR ZNA	FROM PNC						
ZNA	200	0.000	0.000				0.0	
20.00	0.000							
6	1.000	45	1.000					
603	FOR ZK	FROM PNC						
ZK	200	0.000	0.000					
20.60	0.000							
7	1.000	45	1.000					
604	FOR Z2MG	FROM PNC						
Z2MG	200	0.000	0.000					
40.40	0.000							
5	1.000	45	2.000					
605	FOR Z2CA	FROM PNC						
Z2CA	200	0.000	0.000					
41.20	0.000							
4	1.000	45	2.000					
608	FOR PDOH+	FROM PHILLIPS	1988					
PDOH+	300	1.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
-2.12	0.0							
42	1.000	3	1.000	1 -1.000				
609	FOR PD(OH)2(AQ)	FROM PHILLIPS	1988					
PD(OH)2(AQ)	300	0.000	2.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.
-4.62	0.0							
42	1.000	3	2.000	1 -2.000				

610 FOR SNF+ FROM EQ3/6 DATA0.3245R54
 SNF+ 200 1.000 2.0 0.0 0.0 0.0 0.
 4.08 0.0
 34 1.000 20 1.000
 611 FOR SNF++ FROM EQ3/6 DATA0.3245R54
 SNF++ 300 3.000 2.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -6.57 0.0
 34 1.000 20 1.000 2 -2.000
 612 FOR SNF2 FROM EQ3/6 DATA0.3245R54
 SNF2 200 0.000 2.0 0.0 0.0 0.0 0.
 6.68 0.0
 34 1.000 20 2.000
 613 FOR SNF2++ FROM EQ3/6 DATA0.3245R54
 SNF2++ 300 2.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -4.60 0.0
 34 1.000 20 2.000 2 -2.000
 614 FOR SNF3+ FROM EQ3/6 DATA0.3245R54
 SNF3+ 300 1.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -6.31 0.0
 34 1.000 20 3.000 2 -2.000
 615 FOR SNF3- FROM EQ3/6 DATA0.3245R54
 SNF3- 200 -1.000 2.0 0.0 0.0 0.0 0.
 9.46 0.0
 34 1.000 20 3.000
 616 FOR SNF4 FROM EQ3/6 DATA0.3245R54
 SNF4 300 0.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -4.34 0.0
 34 1.000 20 4.000 2 -2.000
 617 FOR SNOH++ FROM EQ3/6 DATA0.3245R54
 SNOH++ 400 3.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -4.77 0.0
 34 1.000 3 1.000 1 -1.000 2 -2.000
 618 FOR SN(OH)4 FROM EQ3/6 DATA0.3245R54
 SN(OH)4 400 0.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -4.53 0.0
 34 1.000 3 4.000 1 -4.000 2 -2.000
 619 FOR SN(SO4)2 FROM EQ3/6 DATA0.3245R54
 SN(SO4)2 300 0.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -6.14 0.0
 34 1.000 16 2.000 2 -2.000
 620 FOR SN(SO4)++ FROM EQ3/6 DATA0.3245R54
 SN(SO4++) 300 2.000 4.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -19.6 0.0
 34 1.000 16 1.000 2 -2.000
 621 FOR ACOH+2 FROM HARWELL R12324
 ACOH+2 300 2.000 0.0 0.0 0.0 0.0 0.
 -10.4 0.0
 49 1.000 3 1.000 1 -1.000

 LOOK MIN
 U(OH)2SO 4 10.00 -3.17 0.00 0 0.000! NEA !
 1 -2.000 3 2.000 16 1.000 25 1.000
 UO2(AM) 3 4.00 0.10 0.00 0 0.000! NEA !
 1 -4.000 3 2.000 25 1.000
 CALCITE 2 4.00 -8.48 -2.30 1 0.000!ORIGINAL!
 15 1.000 4 1.000
 -0.17191E+03-0.77993E-01 0.28393E+04 0.71595E+02 0.00000E+00
 ARAGONIT 2 4.00 -8.34 -2.59 1 0.000!ORIGINAL!
 15 1.000 4 1.000
 -0.17198E+03-0.77993E-01 0.29033E+04 0.71595E+02 0.00000E+00
 DOLOMITE 3 8.00 -17.09 -9.44 0 0.000!ORIGINAL!

4	1.000	5	1.000	15	2.000			
SIDERITE	2		6.00	-10.57	-6.14	0		0.000!ORIGINAL!
8	1.000	15		1.000				
STRONTIT	2		4.00	-9.27	-0.40	1		0.000!ORIGINAL!
12	1.000	15		1.000				
0.15503E+03	0.00000E+00	-0.72396E+04	-0.56586E+02	0.00000E+00				
GYPSUM	3		6.00	-4.60	-0.03	1		0.000!ORIGINAL!
.4	1.000	16	1.000	3	2.000			
0.82090E+02	0.00000E+00	-0.38539E+04	-0.29812E+02	0.00000E+00				
ANHYDRIT	2		6.00	-4.38	-4.30	0		0.000!ORIGINAL!
4	1.000	16	1.000					
CELESTIT	2		6.00	-6.58	0.23	0		0.000!ORIGINAL!
12	1.000	16		1.000				
BARITE	2		6.00	-9.98	6.14	0		0.000!ORIGINAL!
11	1.000	16		1.000				
HYDROXAP	4		0.00	-3.42	-36.15	0		0.000!ORIGINAL!
3	1.000	95	3.000	4	5.000	1	-4.000	
VIVIANIT	3		6.00	-36.00	0.00	0		0.000!ORIGINAL!
8	3.000	19	2.000	3	8.000			
FLUORITE	2		0.00	-10.96	4.71	0		0.000!ORIGINAL!
4	1.000	20		2.000				
FEOH3A	3		3.00	4.89	0.00	0		0.000!ORIGINAL!
145	1.000	3	3.000	1	-3.000			
GIBBSITE	3		0.00	8.77	-22.80	0		0.000!ORIGINAL!
10	1.000	3	3.000	1	-3.000			
KADLINIT	4		0.00	-36.92	49.15	0		0.000!ORIGINAL!
3	-7.000	1	2.000	13	2.000	183	2.000	
FES PPT	3		0.00	-3.91	0.00	0		0.000!ORIGINAL!
8	1.000	72	1.000	1	-1.000			
BIRNESIT	4		4.00	18.09	0.00	0		0.000! NEA !
174	1.000	3	2.000	2	-1.000	1	-4.000	
MANGANIT	3		3.00	-0.24	0.00	0		0.000! NEA !
174	1.000	3	2.000	1	-3.000			
SIL GEL	2		0.00	-2.70	,5.50	0		0.000! NEA !
13	1.000	3		-2.000				
SIL GLAS	2		0.00	-3.02	4.44	0		0.000! NEA !
13	1.000	3		-1.000				
SEP PPT	4		0.00	-37.21	0.00	0		0.000! NEA !
5	2.000	13	3.000	61	4.000	3	-4.500	
MACKINIT	3		0.00	-4.63	0.00	0		0.000! NEA !
8	1.000	72	1.000	1	-1.000			
MUSCOVIT	4		0.00	14.60	-59.38	0		0.000! NEA !
10	3.000	13	3.000	7	1.000	1	-10.000	
CLINOZOI	5		0.00	43.61	0.00	0		0.000! NEA !
10	3.000	13	3.000	4	2.000	3	1.000	1 -13.
EPIDOTE,	7		3.00	45.43	0.00	0		0.000! NEA !
10	2.000	13	3.000	4	2.000	8	1.000	3 1.
1	-13.000	2		-1.000				
TREMOLIT	5		0.00	57.70	0.00	0		0.000! NEA !
5	5.000	13	8.000	4	2.000	3	-8.000	1 -14.
ANDRADIT	5		6.00	55.10	0.00	0		0.000! NEA !
13	3.000	4	3.000	8	2.000	1	-12.000	2 -2.
MONTMOCA	5		0.00	41.88	0.00	0		0.000! NEA !
10	14.000	13	22.000	4	1.000	3	-16.000	1 -44.
ANORTHHE	4		0.00	26.70	0.00	0		0.000! NEA !
10	2.000	13	2.000	4	1.000	1	-8.000	
ANORTHTHR	4		0.00	26.37	0.00	0		0.000! NEA !
10	2.000	13	2.000	4	1.000	1	-8.000	
LIME, QU	3		0.00	32.70	-46.37	0		0.000! NEA !
4	1.000	3	1.000	1	-2.000			
ILLITEK3	6		0.00	67.15	0.00	0		0.000! NEA !

5	1.000	10	9.000	13	14.000	7	3.000	3	-8.
1	-32.000								
PHLOGOPI	5		0.00	36.33	0.00	0			0.000! NEA !
5	3.000	10	1.000	13	3.000	7	1.000	1	-10.
CLINOC26	6		16.00	447.61	0.00	0			0.000! NEA !
5	26.000	10	20.000	13	24.000	8	8.000	3	48.
1	-128.000								
MG2SI206	4		0.00	23.26	0.00	0			0.000! NEA !
5	2.000	13	2.000	3	-2.000	1	-4.000		
TALC	4		0.00	20.60	0.00	0			0.000! NEA !
5	3.000	13	4.000	3	-4.000	1	-6.000		
CLINOC40	5		0.00	546.83	0.00	0			0.000! NEA !
5	40.000	10	16.000	13	24.000	3	48.000	1	-128.
SEPIOLIT	4		0.00	32.83	0.00	0			0.000! NEA !
5	4.000	13	6.000	3	-1.000	1	-8.000		
CLINOCH8	7		53.00	178.37	0.00	0			0.000! NEA !
5	8.000	10	25.000	13	20.000	8	26.000	3	64.
1	-144.000	2	-1.000						
MONTMOMG	5		0.00	57.04	0.00	0			0.000! NEA !
5	1.000	10	14.000	13	22.000	3	-16.000	1	-44.
MAGNESIO	5		6.00	42.82	-87.02	0			0.000! NEA !
5	1.000	8	2.000	3	4.000	1	-8.000	2	-2.
PERICLAS	3		0.00	21.58	-36.16	0			0.000! NEA !
5	1.000	3	1.000	1	-2.000				
MONTMONA	5		0.00	58.54	0.00	0			0.000! NEA !
6	2.000	10	14.000	13	22.000	3	-16.000	1	-44.
NA2U207C	5		12.00	69.41	-110.02	0			0.000! NEA !
6	2.000	25	2.000	3	7.000	1	-14.000	2	-4.
NA2U04(A	5		6.00	56.14	-75.61	0			0.000! NEA !
6	2.000	25	1.000	3	4.000	1	-8.000	2	-2.
PARAGONI	4		0.00	18.87	0.00	0			0.000! NEA !
6	1.000	10	3.000	13	3.000	1	-10.000		
ALBITE	5		0.00	3.54	0.00	0			0.000! NEA !
6	1.000	10	1.000	13	3.000	3	-4.000	1	-4.
NATCO4(C	5		7.00	35.54	0.00	0			0.000! NEA !
6	1.000	24	1.000	3	3.000	1	-6.000	2	-3.
ILLITEK2.	5		0.00	28.54	0.00	0			0.000! NEA !
10	10.000	13	14.000	7	2.000	3	-8.000	1	-32.
MONTMOK	5		0.00	57.51	0.00	0			0.000! NEA !
10	14.000	13	22.000	7	2.000	3	-16.000	1	-44.
ALUNITE	5		12.00	1.61	-55.31	0			0.000! NEA !
10	3.000	16	2.000	7	1.000	3	6.000	1	-6.
MICROCLI	5		0.00	1.78	-12.47	0			0.000! NEA !
10	1.000	13	3.000	7	1.000	3	-4.000	1	-4.
ORTHOCLA	5		0.00	0.86	0.00	0			0.000! NEA !
10	1.000	13	3.000	7	1.000	3	-4.000	1	-4.
ANNITE	5		6.00	22.33	0.00	0			0.000! NEA !
10	1.000	13	3.000	7	1.000	8	3.000	1	-10.
HEMATITE	4		6.00	22.40	-51.77	0			0.000! NEA !
8	2.000	3	3.000	1	-6.000	2	-2.000		
FE2SI206	4		4.00	10.60	0.00	0			0.000! NEA !
13	2.000	8	2.000	3	-2.000	1	-4.000		
ALMANDIN	4		6.00	33.41	0.00	0			0.000! NEA !
10	2.000	13	3.000	8	3.000	1	-12.000		
MAGNETIT	4		8.00	30.65	-72.53	0			0.000! NEA !
8	3.000	3	4.000	1	-8.000	2	-2.000		
PYRRHOTI	5		0.00	-321.28	471.36	0			0.000! NEA !
16	8.000	8	7.000	3	-32.000	1	64.000	2	62.
LAWRENCI	2		2.00	6.82	-19.96	0			0.000! NEA !

14	2.000	8	1.000					
MOLYSITE	3	3.00	24.56	-46.92	0		0.000!	NEA !
14	3.000	8	1.000	2	-1.000			
GOETHITE	4	3.00	11.29	-24.71	0		0.000!	NEA !
8	1.000	3	2.000	1	-3.000	2	-1.000	
PYRRHOTI	5	0.00	-39.78	58.33	0		0.000!	NEA !
16	1.000	8	1.000	3	-4.000	1	8.000	2 8.
PYRITE	5	0.00	-85.95	131.16	0		0.000!	NEA !
16	2.000	8	1.000	3	-8.000	1	16.000	2 14.
RHODOCHR	2	6.00	-10.54	-1.59	0		0.000!	NEA !
15	1.000	9	1.000					
PYROLUSI	4	4.00	41.55	-65.12	0		0.000!	NEA !
9	1.000	3	2.000	1	-4.000	2	-2.000	
ALABANDI	5	0.00	-34.11	54.32	0		0.000!	NEA !
16	1.000	9	1.000	3	-4.000	1	8.000	2 8.
TOPAZ, D	4	0.00	12.81	0.00	0		0.000!	NEA !
10	2.000	13	1.000	3	2.000	1	-6.000	
CHALCEDO	2	0.00	-3.49	4.61	0		0.000!	NEA !
13	1.000	3	-2.000					
QUARTZ	2	0.00	-3.78	6.22	0		0.000!	NEA !
13	1.000	3	-2.000					
SILICA H	4	-1.00	-2.47	0.00	0		0.000!	NEA !
13	1.000	3	-2.000	1	1.000	2	1.000	
USIO4(CAM	3	4.00	-2.73	-141.37	0		0.000!	NEA !
13	1.000	25	1.000	1	-4.000			
COFFINIT	3	4.00	-7.67	0.00	0		0.000!	NEA !
13	1.000	25	1.000	1	-4.000			
(UO2)2CO	5	14.00	-19.82	-43.13	0		0.000!	NEA !
15	1.000	25	2.000	3	4.000	1	-8.000	2 -2.
U(CO3)2C	2	12.00	-13.21	-33.78	0		0.000!	NEA !
15	2.000	25	1.000					
UC2(C)	5	0.00	13.15	-33.78	0		0.000!	NEA !
15	2.000	25	1.000	3	-6.000	1	12.000	2 12.
RUTHERFO	5	10.00	-5.46	0.00	0		0.000!	NEA !
15	1.000	25	1.000	3	2.000	1	-4.000	2 -2.
U(SO3)2C	5	12.00	-28.88	10.71	0		0.000!	NEA !
16	2.000	25	1.000	3	-2.000	1	4.000	2 4.
U(SO4)2C	2	16.00	-11.72	-23.98	0		0.000!	NEA !
16	2.000	25	1.000					
UO2SO3(CC	4	10.00	-2.97	-29.98	0		0.000!	NEA !
16	1.000	25	1.000	3	1.000	1	-2.000	
UO2SO4(CC	5	12.00	10.88	-54.29	0		0.000!	NEA !
16	1.000	25	1.000	3	2.000	1	-4.000	2 -2.
UO2SO4.2	5	11.00	-13.37	-8.69	0		0.000!	NEA !
16	1.000	25	1.000	3	4.000	1	-3.000	2 -1.
UO2SO4.3	5	11.00	-13.37	-6.72	0		0.000!	NEA !
16	1.000	25	1.000	3	5.000	1	-3.000	2 -1.
UO2SO4.3	5	12.00	7.49	-41.70	0		0.000!	NEA !
16	1.000	25	1.000	3	5.000	1	-4.000	2 -2.
(UO2)2CL	5	11.00	29.20	-101.02	0		0.000!	NEA !
14	3.000	25	2.000	3	4.000	1	-8.000	2 -3.
COBALTOU	2	2.00	8.79	-19.34	0		0.000!	NEA !
14	2.000	27	1.000					
U202CL5C	5	9.00	26.68	-93.75	0		0.000!	NEA !
14	5.000	25	2.000	3	2.000	1	-4.000	2 -1.
U5012CLC	5	25.00	18.74	-167.06	0		0.000!	NEA !
14	1.000	25	5.000	3	12.000	1	-24.000	2 -5.
UCL3(C)	3	3.00	21.81	-54.12	0		0.000!	NEA !
14	3.000	25	1.000	2	1.000			
UCL4(C)	2	4.00	21.88	-57.56	0		0.000!	NEA !
14	4.000	25	1.000					

UCL5(C)	3	5.00	41.34	-88.00	0		0.000! NEA !
14	5.000	25	1.000 2	-1.000			
UCL6(C)	3	6.00	62.05	-119.96	0		0.000! NEA !
14	6.000	25	1.000 2	-2.000			
U02CL(C)	5	5.00	7.15	-38.24	0		0.000! NEA !
14	1.000	25	1.000 3	2.000	1	-4.000	2 -1.
U02CL2(C)	5	6.00	21.11	-60.60	0		0.000! NEA !
14	2.000	25	1.000 3	2.000	1	-4.000	2 -2.
U02CL2.3	5	6.00	14.56	-45.36	0		0.000! NEA !
14	2.000	25	1.000 3	5.000	1	-4.000	2 -2.
U02CL2.H	5	6.00	17.25	-53.34	0		0.000! NEA !
14	2.000	25	1.000 3	3.000	1	-4.000	2 -2.
U02CLOH.	5	6.00	17.59	-42.33	0		0.000! NEA !
14	1.000	25	1.000 3	5.000	1	-5.000	2 -2.
UOCL(C)	5	3.00	19.85	-50.50	0		0.000! NEA !
14	1.000	25	1.000 3	1.000	1	-2.000	2 1.
UOCL2(C)	4	4.00	5.80	-34.50	0		0.000! NEA !
14	2.000	25	1.000 3	1.000	1	-2.000	
UOCL3(C)	5	5.00	16.04	-51.48	0		0.000! NEA !
14	3.000	25	1.000 3	1.000	1	-2.000	2 -1.
U307(BET)	4	14.00	1.19	-83.24	0		0.000! NEA !
25	3.000	3	7.000 1	-14.000	2	-2.000	
U308(C)	4	16.00	20.40	-116.08	0		0.000! NEA !
25	3.000	3	8.000 1	-16.000	2	-4.000	
U409(BET)	4	18.00	8.70	-101.40	0		0.000! NEA !
25	4.000	3	9.000 1	-18.000	2	-2.000	
U02(OH)2	4	6.00	13.92	-48.00	0		0.000! NEA !
25	1.000	3	4.000 1	-6.000	2	-2.000	
U02(P03)	3	6.00	-29.20	-44.00	0		0.000! NEA !
19	2.000	25	1.000 2	-2.000			
URANINIT	3	4.00	-4.90	-18.62	0		0.000! NEA !
25	1.000	3	2.000 1	-4.000			
U03(ALPH)	4	6.00	17.63	-55.28	0		0.000! NEA !
25	1.000	3	3.000 1	-6.000	2	-2.000	
U03(BETA)	4	6.00	17.30	-54.61	0		0.000! NEA !
25	1.000	3	3.000 1	-6.000	2	-2.000	
U03(GAMM)	4	6.00	16.69	-53.78	0		0.000! NEA !
25	1.000	3	3.000 1	-6.000	2	-2.000	
U03.0.9H	4	5.00	-23.40	13.78	0		0.000! NEA !
25	1.000	3	3.000 1	-5.000	2	-1.000	
SCHOEPIT	4	6.00	13.81	-46.45	0		0.000! NEA !
25	1.000	3	5.000 1	-6.000	2	-2.000	
COBALTOU	3	2.00	13.44	-24.76	0		0.000! NEA !
27	1.000	3	1.000 1	-2.000			
PERTECHN	4	7.00	38.97	-105.10	0		0.000! NEA !
24	1.000	3	3.000 1	-5.000	2	-3.000	
TC(OH)3(C)	4	3.00	-14.63	0.00	0		0.000! NEA !
24	1.000	3	2.000 1	-1.000	2	1.000	
TC207(C)	3	14.00	13.11	-210.62	0		0.000! NEA !
315	2.000	3	-1.000 1	2.000			
TC304(S)	4	8.00	-56.89	0.00	0		0.000! NEA !
24	3.000	3	1.000 1	-2.000	2	4.000	
TC407(S)	4	14.00	-36.79	0.00	0		0.000! NEA !
24	4.000	3	3.000 1	-6.000	2	2.000	
TC02.2H2	3	4.00	-4.23	0.00	0		0.000! NEA !
24	1.000	3	3.000 1	-2.000			
TC03(C)	4	6.00	19.96	-75.92	0		0.000! NEA !

24	1.000	3	2.000	1	-4.000	2	-2.000	
U2F9(C)	3		9.00	-38.38	-44.20	0		0.000! NEA !
20	9.000	25	2.000	2	-1.000			
U203F6(C)	5		12.00	13.42	-112.77	0		0.000! NEA !
20	6.000	25	2.000	3	3.000	1	-6.000	2 -4.
U305F8(C)	5		18.00	22.73	-164.06	0		0.000! NEA !
20	8.000	25	3.000	3	5.000	1	-10.000	2 -6.
U4F17(C)	3		17.00	-99.98	-49.04	0		0.000! NEA !
20	17.000	25	4.000	2	-1.000			
UCL2F2(C)	3		4.00	-3.66	-31.10	0		0.000! NEA !
20	2.000	14	2.000	25	1.000			
UCL3F(C)	3		4.00	10.20	-44.19	0		0.000! NEA !
20	1.000	14	3.000	25	1.000			
UCLF3(C)	3		4.00	-17.69	-17.77	0		0.000! NEA !
20	3.000	14	1.000	25	1.000			
UF3(C)	3		3.00	-10.35	-22.75	0		0.000! NEA !
20	3.000	25	1.000	2	1.000			
UF4(C)	2		4.00	-29.41	-4.40	0		0.000! NEA !
20	4.000	25	1.000					
UF4.2.5H	5		3.00	-52.21	39.99	0		0.000! NEA !
20	4.000	25	1.000	3	2.000	1	1.000	2 1.
UF5(ALPH)	3		5.00	-5.51	-46.07	0		0.000! NEA !
20	5.000	25	1.000	2	-1.000			
UF5(BETA)	3		5.00	-5.85	-44.18	0		0.000! NEA !
20	5.000	25	1.000	2	-1.000			
UF6(C)	3		6.00	26.32	-97.15	0		0.000! NEA !
20	6.000	25	1.000	2	-2.000			
UO2F2(C)	5		6.00	1.68	-43.06	0		0.000! NEA !
20	2.000	25	1.000	3	2.000	1	-4.000	2 -2.
UO2F2.3H	5		6.00	2.38	-37.46	0		0.000! NEA !
20	2.000	25	1.000	3	5.000	1	-4.000	2 -2.
UO2FOH(C)	5		6.00	7.10	-44.37	0		0.000! NEA !
20	1.000	25	1.000	3	3.000	1	-5.000	2 -2.
UO2FOH.2	5		6.00	6.28	-39.54	0		0.000! NEA !
20	1.000	25	1.000	3	5.000	1	-5.000	2 -2.
UO2FOH.H	5		6.00	6.66	-41.93	0		0.000! NEA !
20	1.000	25	1.000	3	4.000	1	-5.000	2 -2.
UOF2(C)	4		4.00	-18.28	-10.31	0		0.000! NEA !
20	2.000	25	1.000	3	1.000	1	-2.000	
UOF2.H2O	4		4.00	-18.84	-7.55	0		0.000! NEA !
20	2.000	25	1.000	3	2.000	1	-2.000	
UOF4(C)	5		6.00	13.42	-70.26	0		0.000! NEA !
20	4.000	25	1.000	3	1.000	1	-2.000	2 -2.
UOFOH(C)	4		4.00	-14.56	-17.10	0		0.000! NEA !
20	1.000	25	1.000	3	2.000	1	-3.000	
UOFOH.0.	5		3.00	-35.74	18.63	0		0.000! NEA !
20	1.000	25	1.000	3	2.000	1	-2.000	2 1.
PU02	3		4.00	-7.00	-12.48	0		0.000!HARWELL!
29	1.000	3	2.000	1	-4.000			
PU02OH2	3		6.00	3.00	0.00	0		0.000!HARWELL!
270	1.000	3	2.000	1	-2.000			
PU(OH)4	3		4.00	0.40	0.00	0		0.000!HARWELL!
29	1.000	3	4.000	1	-4.000			
PU02OH	3		5.00	5.00	0.00	0		0.000!HARWELL!
269	1.000	1	-1.000	3	1.000			
PU203	3		3.00	48.00	0.00	0		0.000!HARWELL!
268	2.000	1	-6.000	3	3.000			
PU(OH)3	3		3.00	22.00	0.000	0		0.000!HARWELL!
268	1.000	1	-3.000	3	3.000			
AM(OH)3	3		0.00	17.50	0.000	0		0.000!BATTELLE!
28	1.000	3	3.000	1	-3.000			

CO2 GAS	2		4.00	-1.47	-4.78	1		-3.50!ORIGINAL!
65	1.000	3	-1.000					
0.10839E+03	0.19851E-01	-0.69195E+04	-0.40452E+02	0.66937E+06				
O2 GAS	1		4.00	-2.96	-1.84	0		0.000!ORIGINAL!
62	1.000							
H2 GAS	1		-2.00	-3.15	-1.76	0		0.000!ORIGINAL!
63	1.000							
N2 GAS	1		0.00	-3.26	-1.36	0		0.000! NEA !
79	1.000							
H2S GAS	1		-2.00	-1.00	-4.57	0		0.000! NEA !
236	1.000							
CH4 GAS	1		-4.00	-2.86	-3.37	0		0.000! NEA !
66	1.000							
NH3 GAS	1		-3.00	1.77	-8.17	0		0.000! NEA !
80	1.000							
FERROSIL	4		2.00	7.42	0.000	0		0.000
8	1.000	13	1.000	3	-1.000	1	-2.000	
GREENALI	4		6.00	22.59	0.000	0		0.000
8	3.000	13	2.000	3	1.000	1	-6.000	
FAYALITE	3		4.00	19.05	0.000	0		0.000
8	2.000	13	1.000	1	-4.000			
ND(OH)3	3		3.00	18.6	0.000	0		0.000
44	1.000	3	3.000	1	-3.000			
NI(OH)2	3		0.00	10.8	0.000	0		0.000!HARWELL!
31	1.000	3	2.000	1	-2.000			
NIC03	2		4.00	-6.87	0.000	0		0.000!HARWELL!
31	1.000	15	1.000					
SE	4		0.00	-88.92	0.000	0		0.000!HARWELL!
32	1.000	3	-4.000	2	6.000	1	8.000	
SE02	4		4.00	-35.82	0.000	0		0.000!HARWELL!
32	1.000	3	-2.000	2	2.000	1	4.000	
SE03	3		6.00	19.2	0.000	0		0.000!HARWELL!
32	1.000	3	-1.000	1	2.000			
SE205	4		10.00	-19.6	0.000	0		0.000!HARWELL!
32	2.000	3	-3.000	2	2.000	1	6.000	
FESE2	5		0.00	-181.10	0.00	0		0.000!HARWELL!
32	2.000	8	1.000	3	-8.000	1	16.000	2 14.
SR3P042	2		0.00	-27.8	0.000	0		0.000!HARWELL!
12	3.000	19	2.000					
SRHP04	3		0.00	-19.31	0.000	0		0.000!HARWELL!
12	1.000	19	1.000	1	1.000			
SRN032	2		10.00	0.59	0.000	0		0.000!HARWELL!
12	1.000	17	2.000					
SROH2	3		0.00	24.98	0.000	0		0.000!HARWELL!
12	1.000	3	2.000	1	-2.000			
SRS04	2		6.00	-6.42	0.000	0		0.000!HARWELL!
12	1.000	16	1.000					
SRC03	2		4.00	-9.25	0.000	0		0.000!HARWELL!
12	1.000	15	1.000					
ZR(OH)4	3		0.00	-1.90	0.000	0		0.000!HARWELL!
33	1.000	3	4.000	1	-4.000			
SNO	3		2.00	1.41	0.000	0		0.000! EQ3/6 !
34	1.000	3	1.000	1	-2.000			
SN02	4		4.00	-3.06	0.000	0		0.000! EQ3/6 !
34	1.000	3	2.000	2	-2.000	1	-4.000	
SN(OH)2	3		2.00	1.84	0.000	0		0.000! EQ3/6 !
34	1.000	3	2.000	1	-2.000			
I2	2		0.00	18.18	-27.200	0		0.000!HARWELL!
23	2.000	2	-2.000					
CSN03	2		5.00	-0.41	9.760	0		0.000!HARWELL!
30	1.000	17	1.000					

SM(OH)3	3	0.00	16.50	0.000	0	0.000!HARWELL!
35	1.000	3	3.000	1	-3.000	
SM2S043	2	18.00	-8.33	0.000	0	0.000!HARWELL!
35	2.000	16	3.000			
SM2C033	2	12.00	-26.75	0.000	0	0.000!HARWELL!
35	2.000	15	3.000			
PB	2	0.00	4.19	0.220	0	0.000!HARWELL!
36	1.000	2	2.000			
PBO	3	2.00	12.72	0.000	0	0.000!HARWELL!
36	1.000	3	1.000	1	-2.000	
PB(OH)2	3	2.00	11.90	0.000	0	0.000!HARWELL!
36	1.000	3	2.000	1	-2.000	
PB304	4	8.00	73.50	-100.000	0	0.000!HARWELL!
36	3.000	3	4.000	1	-8.000	2
PBS04	2	8.00	-7.80	2.700	0	0.000!HARWELL!
36	1.000	16	1.000			
PBC03	2	6.00	-12.90	5.500	0	0.000!HARWELL!
36	1.000	15	1.000			
PBS	5	0.00	-49.10	80.000	0	0.000!HARWELL!
36	1.000	16	1.000	1	8.000	2
RAS04	2	6.00	-10.40	0.000	0	0.000!HARWELL!
37	1.000	16	1.000			
RAC03	2	4.00	-7.00	0.000	0	0.000!HARWELL!
37	1.000	15	1.000			
TH(OH)4	3	0.00	12.60	0.000	0	0.000!HARWELL!
38	1.000	3	4.000	1	-4.000	
TH02	3	0.00	6.30	0.000	0	0.000!HARWELL!
38	1.000	3	2.000	1	-4.000	
TH(SO4)2	2	12.00	-20.35	0.000	0	0.000!HARWELL!
38	1.000	16	2.000			
THF4	2	0.00	-30.17	0.000	0	0.000!HARWELL!
38	1.000	20	4.000			
THHP042	3	0.00	-51.56	0.000	0	0.000!HARWELL!
38	1.000	19	2.000	1	2.000	
PA02	3	4.00	0.60	0.000	0	0.000!HARWELL!
39	1.000	3	2.000	1	-4.000	
PA205	4	10.00	-19.58	0.000	0	0.000!HARWELL!
39	2.000	3	5.000	2	-2.000	1
PACL4	2	4.00	24.10	-58.530	0	0.000!HARWELL!
39	1.000	14	4.000			
NP(OH)3	3	3.00	21.99	0.000	0	0.000!HARWELL!
486	1.000	3	3.000	1	-3.000	
NP02	3	4.00	-2.68	0.000	0	0.000!HARWELL!
40	1.000	1	-4.000	3	2.000	
NP(OH)4	3	4.00	0.74	0.000	0	0.000!HARWELL!
40	1.000	1	-4.000	3	4.000	
NPO2OH	3	5.00	4.70	0.000	0	0.000!HARWELL!
484	1.000	3	1.000	1	-1.000	
NPO2OH2	3	6.00	5.30	0.000	0	0.000!HARWELL!
485	1.000	3	2.000	1	-2.000	
AMOHCO3	4	4.00	-8.50	0.000	0	0.000!BATTELLE!
28	1.000	3	1.000	1	-1.000	15
PU02C03	2	10.00	-13.80	0.000	0	0.000!HARWELL!
270	1.000	15	1.000			
PUKS043	3	28.00	-18.00	0.000	0	0.000!HARWELL!
29	1.000	7	4.000	16	4.000	
PUCL3	2	3.00	-11.4	0.000	0	0.000!HARWELL!
268	1.000	14	3.000			
PU02HP04	5	6.00	10.07	0.000	0	0.000!HARWELL!
29	1.000	1	-3.000	2	-2.000	3
PUHP042	3	4.00	-52.33	0.000	0	0.000!HARWELL!

29	1.000	1	2.000	19	2.000			
PUF4	2		4.00	-30.17	0.000	0		0.000!HARWELL!
29	1.000	20		4.000				
PUOH2C03	4		8.00	-22.10	0.000	0		0.000!HARWELL!
29	1.000	3	2.000	1	-2.000	15	1.000	
UO2C03	2		10.00	-14.40	0.000	0		0.000!HARWELL!
297	1.000	15		1.000				
UO20H	3		5.00	5.00	0.000	0		0.000!HARWELL!
296	1.000	3	1.000	1	-1.000			
NAU03	4		5.00	9.75	0.000	0		0.000!HARWELL!
296	1.000	3	1.000	1	-2.000	6	1.000	
NA2U04	4		6.00	31.56	0.000	0		0.000!HARWELL!
297	1.000	3	2.000	1	-4.000	6	2.000	
NA3U04	4		5.00	57.90	0.000	0		0.000!HARWELL!
296	1.000	3	2.000	1	-4.000	6	3.000	
NA2U207	4		12.00	24.52	0.000	0		0.000!HARWELL!
297	2.000	3	3.000	1	-6.000	6	2.000	
CAU04	4		6.00	15.00	0.000	0		0.000!HARWELL!
297	1.000	3	2.000	1	-4.000	4	1.000	
MGU04	4		6.00	23.20	0.000	0		0.000!HARWELL!
297	1.000	3	2.000	1	-4.000	5	1.000	
UO23P042	5		6.00	-21.67	0.000	0		0.000!HARWELL!
25	3.000	1	-12.000	2	-6.000	3	6.000	19 2.
H2U02P04	5		6.00	-29.92	0.000	0		0.000!HARWELL!
25	2.000	1	-6.000	2	-4.000	3	4.000	19 2.
UO2HP04	5		6.00	-15.39	0.000	0		0.000!HARWELL!
25	1.000	1	-3.000	2	-2.000	3	2.000	19 1.
UHP042	4		4.00	-51.47	0.000	0		0.000!HARWELL!
25	1.000	3	4.000	1	2.000	19	2.000	
CAUPO4	4		4.00	-54.14	0.000	0		0.000!HARWELL!
25	1.000	4	1.000	3	2.000	19	2.000	
K-FELDSP	5		0.00	0.0832	0.00	0		! EQ3/6 !
13	3.000	3	-4.000	1	-4.000	7	1.000	10 1.0
NBO	4		2.00	13.89	0.00	0		!NBS-82!
41	1.000	3	-2.000	2	3.000	1	4.000	
NB02	4		4.00	-7.97	0.00	0		!NBS-82!
41	1.000	3	-1.000	2	1.000	1	2.000	
NB205	3		10.00	-24.34	0.00	0		!NBS-82!
41	2.000	3	-1.000	1	2.000			
PDO	3		2.00	-4.25	0.00	0		!PHI-88!
42	1.000	3	1.000	1	-2.000			
PDO2	4		4.00	34.65	0.00	0		!PHI-88!
42	1.000	3	2.000	2	-2.000	1	-4.000	
PD(OH)2	3		2.00	-0.81	0.00	0		!PHI-88!
42	1.000	3	2.000	1	-2.000			
SB204	2		8.00	-20.20	0.00	0		!NBS-82!
46	2.000	2	-2.000					
SB205	4		10.00	15.47	0.00	0		!NBS-82!
46	2.000	3	1.000	2	-4.000	1	-2.000	
SB406	3		12.00	-66.85	0.00	0		!NBS-82!
46	4.000	3	-2.000	1	4.000			
SB(OH)3	3		3.00	-18.91	0.00	0		!NBS-82!
46	1.000	3	1.000	1	1.000			
BI203	3		0.00	9.11	0.00	0		!NBS-82!
47	2.000	3	3.000	1	-6.000			
PO(OH)4	3		4.00	19.52	0.00	0		!NBS-82!
48	1.000	3	4.000	1	-4.000			
AC(OH)3	3		0.00	21.10	0.00	0		!HARWELL!
49	1.000	3	3.000	1	-3.000			
CS20	3		0.00	89.89	0.00	0		!PHI-88!
30	2.000	3	1.000	1	-2.000			

CSOH	3	0.00	27.42	0.00	0	!PHI-88!
30	1.000	3	1.000	1	-1.000	
CS2S04	2	6.00	0.87	0.00	0	!PHI-88!
30	2.000	16	1.000			
CS2C03	2	4.00	10.07	0.00	0	!PHI-88!
30	2.000	15	1.000			
CM02	4	4.00	37.83	0.00	0	!PHI-88!
50	1.000	3	2.000	2	-1.000	1 -4.000
CM203	3	6.00	53.98	0.00	0	!PHI-88!
50	2.000	3	3.000	1	-6.000	
CM(OH)3	3	3.00	24.78	0.00	0	!PHI-88!
50	1.000	3	3.000	1	-3.000	
TC(OH)2	3	2.00	-21.63	0.00	0	0.000!PHI-88!
24	1.000	3	1.000	2	2.000	
TCO2(C)	3	4.00	-19.76	0.00	0	0.000!PHI-88!
24	1.000	3	1.000	1	-2.000	
TC(CR)	4	0.00	-23.94	0.00	0	0.000!PHI-88!
24	1.000	3	-1.000	1	2.000	2 4.000
PD(CR)	2	0.00	-30.94	0.00	0	0.000!PHI-88!
42	1.000	2	2.000			
SILI(AM)	2	0.00	-2.71	6.22	0	0.000! EQ3/6 !
13	1.000	3	-2.000			

END

出 典

ORIGINAL

Parkhurst, D.L., Thorstenson, D.C. and Plummer, L.N. (1980): PHREEQE - A Computer Program for Geochemical Calculations, U.S. Geological Survey, Water-Resources Investigations Report, 80-96.

NEA

For Example,

Muller, A.B. (1985): NEA Compilation of Chemical Thermodynamic Data for Minerals Associated with Granite, OECD/NEA.

Grenthe, I., Fuger, J., Lemire, R.J., Muller, A.B., Cregu, C. N-T. and Wanner, H. (1990): NEA-TDB Chemical Thermodynamics of Uranium, Final Draft for Peer Review, OECD/NEA

BATTELLE

Rai, D., Strickert, R.G., Moore, D.A. and Ryan, J.L. (1983): Am(III) Hydrolysis Constants and Solubility of Am(III) Hydroxide, Radiochimica Acta 33, pp. 201-206.

Felmy, A.R., Rai, D. and Fulton, R.W. (1990): The Solubility of $\text{AmOHCO}_3(\text{c})$ and the Aqueous Thermodynamics of the System $\text{Na}^+ - \text{Am}^{3+} - \text{HCO}_3^- - \text{CO}_3^{2-} - \text{OH}^- - \text{H}_2\text{O}$, Radiochimica Acta 50, pp. 193-204.

HARWELL

Cross, J.E., Ewart, F.T. and Tweed, C.J. (1987): Thermochemical Modelling with Application to Nuclear Waste Processing and Disposal, AERE-R 12324.

EQ3/6

EQ3/6 DATA0 3245R54

PHI-88

Phillips, S.L., Hale, F.V., Sylvester, L.F. and Siegel, M.D. (1988): Thermodynamic Tables for Nuclear Waste Isolation Aqueous Solutions Database, NUREG/CR-4864, LBL-22860, SAND87-0323

NBS-82

Wagman, D.D., Evans, W.H., Parker, V.B., Schumm, R.H., Halow, I., Bailey, S.M., Churney, K.L. and Nuttall, R.L. (1982): The NBS Tables of Chemical Thermodynamic Properties Selected Values for Inorganic and C₁ and C₂ Organic Substances in SI Units, Journal of Physical and Chemical Reference Data, Vol. 11, No. 2.

付録B-2 E h緩衝性維持時間計算プログラム

```

#####
c      calculation program of coupled diffusion equation
c      by finite difference method
c
c      input parameter
c
c      implicit real*8 (a-h,o-z)
c      diffusion equation of coupled chemical reaction at radial axis
c      Dc1/Dt=Da*(DDc1/DDr+1/rDc/Dr) -k1*[c1]*[c2]*fac1
c      Dc2/Dt=DB*(DDc2/DDr+1/rDc/Dr) -k2*[c1]*[c2]*fac2
c
#####
c      card 1 maximum dimension card
#####
c      na   : (-) mesh number
c      nt   : (-) time step number
c      idt  : (-) flag of time step 1 :min, 2:hour, 3:day, 4:year
c      itvl : (-) output interval
#####
c      card 2 initial and boundary conditions
#####
c      cat0  :(mol/l) matter a initial concentration
c      cbt0  :(mol/l) matter b initial concentration
c      cal   :(mol/l) boundary condition of matter a at left
c      car   :(mol/l) boundary condition of matter a at right
c      cbl   :(mol/l) boundary condition of matter b at left
c      cbr   :(mol/l) boundary condition of matter b at right
#####
c      card 3 physical quantity
#####
c      da    :(cm2/min) diffusion coefficient of matter a
c      db    :(cm2/min) diffusion coefficient of matter b
c      facta : (l3/min mol3) damping factor of matter a
c      factb : (l3/min mol3) damping factor of matter b
c      para  : (mol2/l2) parameter of (oh)2 of matter a
c      parb  : (mol2/l2) parameter of (oh)2 of matter b
#####
c      card 4 time and coordinate
#####
c      dt    : (min) time step of calculation
c      x0    : (cm) inner radius of borehole
c      dx    : (cm) mesh width of radius
#####
c      output parameter
#####
c      ca    :(mol/l) concentration of matter a
c      cb    :(mol/l) concentration of matter b
#####
c
parameter (mm=200,mtm=2)
common /concen/ ca(mm,mtm),cb(mm,mtm),x(mm)
common /fec/ confe(mm),fec(mm),sumfec(mm),feex(mm),vol(mm)
common /frag/ fgengp(mm)
common /intit/ cat0,cbt0,cal,car,cbl,cbr
common /physic/ da,db,facta,factb,para,parb
common /times/ dt,x0,dx
common /iflag/ na,nt,idt,itvl,itpr,itact,dispt
common /const/ pi,poro,feext
common /fopen/ inp

```

```

inp=30
c
pi=3.141596
poro=0.33
feext=9.43
c
open (inp,form='formatted',status='unknown')
c
call input
c
call calc
c
#####
stop
end
#####
subroutine input
implicit real*8 (a-h,o-z)
c
parameter (mm=200,mtm=2)
common /concen/ ca(mm,mtm),cb(mm,mtm),x(mm)
common /fec/ confe(mm),fec(mm),sumfec(mm),feex(mm),vol(mm)
common /frag/ fgemp(mm)
common /initit/ cat0,cbt0,cal,car,cbl,cbr
common /physic/ da,db,facta,factb,para,parb
common /times/ dt,x0,dx
common /iflag/ na,nt,idt,itvl,itpr,itact,dispt
common /const/ pi,poro,feext
common /flopen/ inp
inp=30
c read title
read(5,1) title
1 format(20a4)
write(inp,2) title
2 format(20a4)
c
c read maximum dimension
read(5,401) na,nt,idt,itvl
write(inp,401) na,nt,idt,itvl
401 format(4i10)
c
c read initial and boundary conditions
read(5,*) cat0,cbt0,cal,car,cbl,cbr
write(inp,402) cat0,cbt0
402 format(2e15.4)
write(inp,403) cal,car,cbl,cbr
403 format(4e15.4)
c
c read physical constants
read(5,*) da,db,facta,factb,para,parb
write(inp,404) da,db
404 format(2e15.4)
write(inp,405) facta,factb,para,parb
405 format(4e15.4)
c
c read time step and width constants
read(5,*) dt,x0,dx
write(inp,406) dt,x0,dx
406 format(3e15.4)
#####

```

```

      return
      end
c#####
      subroutine calc
      implicit real*8 (a-h,o-z)
c
      parameter (mmm=200,mtm=2)
      common /concen/ ca(mmm,mtm),cb(mmm,mtm),x(mmm)
      common /fec/ confe(mmm),fec(mmm),sumfec(mmm),feex(mmm),vol(mmm)
      common /frag/ fgemp(mmm)
      common /intit/ cat0,cbt0,cal,car,cbl,cbr
      common /physic/ da,db,facta,factb,para,parb
      common /times/ dt,x0,dx
      common /iflag/ na,nt,idt,itvl,itpr,itact,dispt
      common /const/ pi,poro,feext
      common /flopen/ inp
      inp=30
c
      dtt=dt
      if(idt.eq.4) dt=60.*24.0*365.0*dt
      if(idt.eq.3) dt=60.*24.0*dt
      if(idt.eq.2) dt=60.*dt
c
      it=0
      itpr=0
      itact=0
      dispt=0.0
      time=0.0
      totfec=0.0
c
      do 102 i=1,na
      confe(i)=0.0
      fec(i)=0.0
      sumfec(i)=0.0
      fgemp(i)=0.0
      x(i)=x0+(i-1)*dx
cc      vol(i)=pi*(2*x(i)+dx)*dx
cc      feex(i)=vol(i)*1.8*0.01/119.99
      102 continue
c
cc      write(inp,500)
cc 500 format(1h0,'***** Fe contents (mol/donut) *****')
cc      write(inp,501) (feex(i),i=1,na-1)
cc 501 format(5e15.4)
c#####
c
      do 300 i=2,na-1
      ca(i,0)=cat0
      cb(i,0)=cbt0
      300 continue
      ca(1,0)=cal
      cb(1,0)=cbl
      ca(na,0)=car
      cb(na,0)=cbr
      go to 110
c
      101 continue
      itact=itact+1
      ca(1,it)=cal
      cb(1,it)=cbl

```

```

      ca(na,it)=car
      cb(na,it)=cbr
c
      decay21=ca(2,it-1)+da*((ca(3,it-1)+ca(1,it-1)-2.*  

>ca(2,it-1))/(dx*dx)+(ca(3,it-1)-ca(1,it-1))/(2*dx)  

>/x(2))*dt
      decay2=para*facta*ca(2,it-1)*cb(2,it-1)*dt
      if(decay21.ge.decay2) then
        ca(2,it)=decay21-decay2
      else
        ca(2,it)=0.0d0
      endif
c
      confe(1)=parb*factb*ca(1,0)*cb(1,0)*dt
c
      decby21=cb(2,it-1)+db*((cb(3,it-1)+cb(1,it-1)-2.*  

>cb(2,it-1))/(dx*dx)+(cb(3,it-1)-cb(1,it-1))/(2*dx)  

>/x(2))*dt
      decby2=parb*factb*ca(2,it-1)*cb(2,it-1)*dt
      confe(2)=decby2
c
      if(decby21.ge.decby2) then
        cb(2,it)=decby21-decby2
      else
        cb(2,it)=0.0d0
      endif
c
      decay22=ca(na-1,it-1)+da*((ca(na,it-1)+ca(na-2,it-1)-2.*  

>ca(na-1,it-1))/(dx*dx)+(ca(na,it-1)-ca(na-2,it-1))/(2*dx)  

>/x(na-1))*dt
      decay23=para*facta*ca(na-1,it-1)*cb(na-1,it-1)*dt
      if(decay22.ge.decay23) then
        ca(na-1,it)=decay22-decay23
      else
        ca(na-1,it)=0.0d0
      endif
c
      decby22=cb(na-1,it-1)+db*((cb(na,it-1)+cb(na-2,it-1)-2.*  

>cb(na-1,it-1))/(dx*dx)+(cb(na,it-1)-cb(na-2,it-1))/(2*dx)  

>/x(na-1))*dt
      decby23=parb*factb*ca(na-1,it-1)*cb(na-1,it-1)*dt
      confe(na-1)=decby23
      if(decby22.ge.decby23) then
        cb(na-1,it)=decby22-decby23
      else
        cb(na-1,it)=0.0d0
      endif
c
      do 301 j=1,3
      if (j.le.2)i=j
      if (j.eq.3)i=na-1
      fec(i)=confe(i)*pi*(2*x(i)+dx)*poro/1000.
      sumfec(i)=sumfec(i)+fec(i)
cc      if (sumfec(i).ge.feex(i)) fgenp(i)=1.
301 continue
      totfec=sumfec(1)+sumfec(2)+sumfec(na-1)
c
      do 200 i=3,na-2
c
      decaya=para*facta*ca(i,it-1)*cb(i,it-1)*dt

```

```

caa=ca(i,it-1)+da*((-ca(i+2,it-1)+16.*ca(i+1,it-1)
>+16.*ca(i-1,it-1)-30.*ca(i,it-1)-ca(i-2,it-1))
>/(12.*dx*dx)
>+(-ca(i+2,it-1)+8.*ca(i+1,it-1)-8.*ca(i-1,it-1)
>+ca(i-2,it-1))/(12.*dx)/x(i))*dt
c
if(caa.ge.decaya) then
ca(i,it)=caa-decaya
else
ca(i,it)=0.0d0
endif
c
decayb=parb*factb*ca(i,it-1)*cb(i,it-1)*dt
confe(i)=decayb
cbb=cb(i,it-1)+db*((-cb(i+2,it-1)+16.*cb(i+1,it-1)
>+16.*cb(i-1,it-1)-30.*cb(i,it-1)-cb(i-2,it-1))
>/(12.*dx*dx)
>+(-cb(i+2,it-1)+8.*cb(i+1,it-1)-8.*cb(i-1,it-1)
>+cb(i-2,it-1))/(12.*dx)/x(i))*dt
c
if(cbb.ge.decayb) then
cb(i,it)=cbb-decayb
else
cb(i,it)=0.0d0
endif
c
fec(i)=confe(i)*pi*(2*x(i)+dx)*poro/1000.
sumfec(i)=sumfec(i)+fec(i)
totfec=totfec+sumfec(i)
cc      if (sumfec(i).ge.feex(i)) fgenp(i)=1.
c
200 continue
c
103 if(itpr.eq.itvl) go to 111
itpr=itpr+1
if(itact.gt.nt) go to 222
go to 121
c
c@eeeeeeee print out eeee to file result eeee
c
110 write(inp,600)
600 format(1h0,'***** RESULT *****')
c
if(idt.eq.1) write(inp,601)
601 format(1h0,'** time unit min. **')
if(idt.eq.2) write(inp,602)
602 format(1h0,'** time unit hour **')
if(idt.eq.3) write(inp,603)
603 format(1h0,'** time unit day **')
if(idt.eq.4) write(inp,604)
604 format(1h0,'** time unit year **')
c
111 if(ca(i,it).le.1.0d-35) ca(i,it)=0.0d0
if(cb(i,it).le.1.0d-35) cb(i,it)=0.0d0
c
write(inp,605)
write(6,605)
605 format(1h0,'** time **')
dispt=itact*dtt
write(inp,606) dispt

```

```

        write(6,606) dispt
606 format(e15.4)
        write(inp,610)
610 format(1h0,'***** concentration of a matter *****')
        write(inp,607) (ca(i,it),i=1,na)
        write(inp,620)
620 format(1h0,'***** concentration of b matter *****')
        write(inp,607) (cb(i,it),i=1,na)
607 format(5e15.4)
c
        itpr=1
c
        if(it.eq.0) then
        it=1
        go to 131
        endif
c
        write(inp,621)
621 format(1h0,'***** Fe consumption (mol/donut) *****')
        write(inp,607) (sumfec(i),i=1,na-1)
        write(inp,622)
622 format(1h0,'***** Total Fe consumption (mol)*****')
        write(inp,623) totfec
623 format(e15.4)
cc      if(totfec.gt.feext) go to 222
c
        121 continue
        do 122 i=1,na
        ca(i,0)=ca(i,1)
c
        if(fgenp(i).eq.1) then
        cb(i,0)=cb(i,1)
        else
        cb(i,0)=cbt0
        endif
c
        122 continue
c
        131 continue
        time=time+dt
        if(itact.gt.nt) go to 222
        go to 101
c
        222 write(inp,630)
630 format(1h0,'***** END *****')
c
#####
        return
        end

```

注. 行頭に c c が記されている行は

5. 2. 1 項黄鉄鉱による溶存酸素の消費計算では有効行として取り扱い,
5. 2. 2 項オーバーパックの鉄による溶存酸素の消費計算においてはコメント行として取り扱うものである。