

# Seの花崗岩及び凝灰岩に対する収着試験

1994年11月

動力炉・核燃料開発事業団  
東海事業所

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、特に限られた関係者だけに開示するものです。ついては複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう特に注意して下さい。

本資料についての問合せは下記に願います。

〒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

## Seの花崗岩及び凝灰岩に対する収着試験

実施責任者 間野 正, 石川 博久

報告者 西川義朗\*  
吉川英樹  
油井三和

### 要 旨

本試験の目的は、深部地下環境下で陰イオンとして存在すると考えられているSeの収着メカニズムに基づいたモデル化を行うために花崗岩及び凝灰岩への収着係数（吸着率）のpH依存性及びKd値を取得することである。

粉砕した花崗岩及び凝灰岩を使用して、バッチ法によりpHを調整したイオン強度調整液を用いて実験期間2週間での収着実験を行い、サンプル液でのSe濃度より収着係数（吸着率）を取得した。その結果、Seは花崗岩に対してすべてのpH領域で吸着しないことが分かりpH依存性が無いことが確認された。一方、凝灰岩については凝灰岩の零点電荷（ZPC）と考えられるpH8付近までの低pH領域で高い吸着率を示し、pH8を過ぎたあたりから直線的に低下する傾向があることも分かり、pH依存性が有ることが確認された。またpH11、12の高pH近辺でも一部吸着が確認され、このpH領域でプラスの電荷を持っている可能性が考えられた。

また、同一の固相を使用して、バッチ法により凝灰岩平衡液を用いた実験期間2週間でのKd値取得も合わせて行った。その結果、Seの凝灰岩に対するKd値は $0.084\text{m}^3/\text{Kg}$ であることが分かった。

---

無印 ; 環境技術開発部 地層処分開発室

\* ; 検査開発（株）

## 目次

	ページ
1. はじめに.....	1
2. SeのpH依存性を求めるための実験条件及び実験概要.....	2
2. 1 実験条件.....	2
2. 2 実験手順.....	3
2. 3 吸着率の求め方.....	3
3. Seの凝灰岩に対するKd取得実験概要.....	6
3. 1 実験条件.....	6
3. 2 実験手順.....	7
3. 3 Kd値(分配係数)の求め方.....	7
4. 花崗岩、凝灰岩に対するSe吸着試験結果及び考察.....	9
4. 1 花崗岩、凝灰岩に対するpH依存性実験の結果.....	9
4. 2 凝灰岩に対するKd値取得実験の結果.....	9
4. 3 考察.....	9
5. 謝辞.....	18
6. 引用文献.....	18
7. 付録.....	20
付表1 pH依存性試験後花崗岩分析結果一覧表	
付表2 pH依存性試験後凝灰岩分析結果一覧表	
付表3 Kd取得試験後凝灰岩分析結果一覧表	
付表4 全岩化学分析結果一覧表	

## 1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分システムとして、人工バリア及び天然バリアからなる多重バリアシステムの検討を行っていく中で、人工バリア周辺岩盤における核種の吸着挙動を解明していく必要がある。そこで、我が国に比較的多く産出する花崗岩\*、凝灰岩\*を収着媒体として、高レベル放射性廃棄物中に含まれる元素S e（重要元素の1つ）を用いた収着実験を行った。花崗岩、凝灰岩に対するS eのpH依存性の違いについて調べ、また、花崗岩、凝灰岩に対するS eのK d値の取得を行い、花崗岩及び凝灰岩へのS eの収着挙動の違いを調べることにした。本報告書は、構成鉱物の違う花崗岩と凝灰岩について得られたデータを比較検討し、収着メカニズムに基づいたモデル化につなげるためのデータをまとめたものである。

---

\* 第2次取りまとめにむけてデータ取得が必要な岩石を示す。

## 2. SeのpH依存性を求めるための実験条件及び実験概要

## 2. 1 実験条件

SeのpH依存性を求めるための実験条件を表2. 1. 1に示す。花崗岩、凝灰岩を粉碎した試料を固相として用い、イオン強度を調整した脱気水を液相とした。低酸素濃度環境下で脱気水にSeO<sub>2</sub> (試薬) を溶かして0.1mol/l-SeO<sub>2</sub> 溶液を作製して、これをストック溶液とした。低酸素濃度環境下でバッチ法にて実験を行った。

表2. 1. 1 SeのpH依存性を求めるための実験条件

固相	花崗岩 (群馬県 沢入産)	凝灰岩 (動燃中部東濃鉱山産)
粒径	355 μm以下	75 μm~355 μm <sup>(1)</sup> <sup>(2)</sup>
液相	脱気水 (イオン強度調整)	脱気水 (イオン強度調整)
イオン強度	NaCl 溶液を用い0.1に調整	NaCl 溶液を用い0.1に調整
液量	25 ml	25 ml
液固比	25 ml/g	2.5 ml/g
pH	pH5~pH10 (6段階)	pH4~pH10 (7段階) pH9~pH12 (4段階) * <sup>1)</sup>
試験数	2 + 1(固相なしブランク)	2 + 2(固相なしブランク, Seなしブランク)
金属酸化物	SeO <sub>2</sub> (和光純薬工業(株)・特級試薬) 二酸化セレン含量 97%	SeO <sub>2</sub> (和光純薬工業(株)・特級試薬) 二酸化セレン含量 97%
雰囲気	低酸素濃度環境下 (酸素濃度1ppm以下)	低酸素濃度環境下 (酸素濃度1ppm以下)
試験方法	バッチ法	バッチ法
試験期間	2週間 * <sup>2)</sup>	2週間 * <sup>2)</sup>
試験器具	50 ml ガラス容器	50 ml ガラス容器

\*<sup>1)</sup> 追実験により求めたデータを示す。

\*<sup>2)</sup> 試験期間は、Hayes(1988)ら<sup>(8)</sup>によるとSeとゲーサイトが7日で平衡になっているが、Ticknor(1988)ら<sup>(9)</sup>は岩石とSeの収着期間を14日とした報告があるので、本試験では14日と設定した。

## 2. 2 実験手順

実験フローを図2. 2. 1、図2. 2. 2にそれぞれ示す。実験はすべて酸素濃度1ppm以下の雰囲気制御グローブボックス中で行った。実験に用いた脱気水は窒素でバブリングを行い、溶存酸素を除去した。粉碎された試料と脱気した脱イオン水を所定量混合しpH調整を行った。pHが安定した後、Seを添加して2週間浸漬させ反応させた。浸漬期間中は振とうを常に行った。浸漬後、固相と液相を分画分子量10000の限外ろ過フィルターにより分離し、ろ過液についてはICP（発光分光分析）により溶液中のSe濃度を分析した。Seの容器への吸着量を見積もるためにブランク試験も同時に行った。

## 2. 3 吸着率の求め方

Seの花崗岩、凝灰岩への吸着率は2. 3. 1式により求めた。

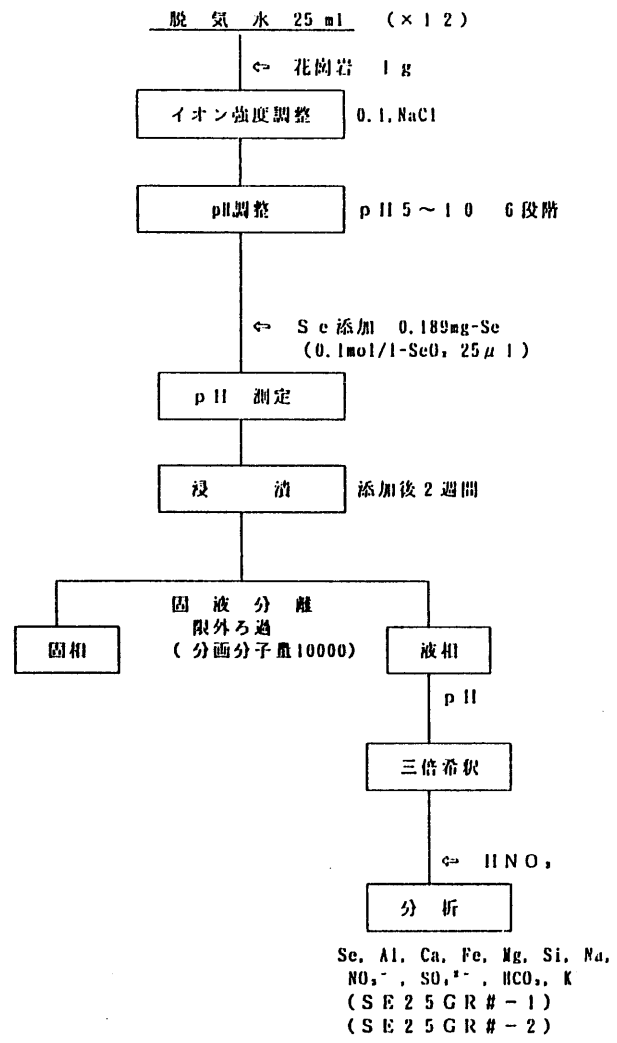
$$R_s = \frac{C_b - C_t}{C_b} \times 100 \quad (2. 3. 1)$$

$R_s$  : 吸着率 (%)

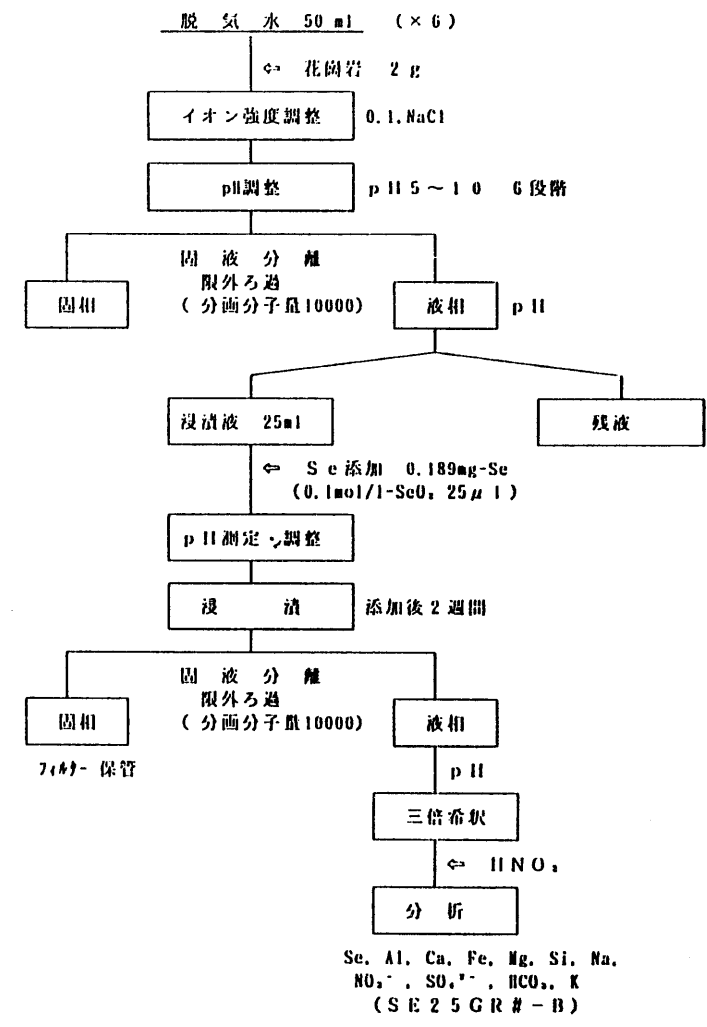
$C_t$  : 試験液中のSe濃度 (ppm)

$C_b$  : ブランク中のSe濃度 (ppm)

(1) 固相入り試験液



(2) ブランク液試験

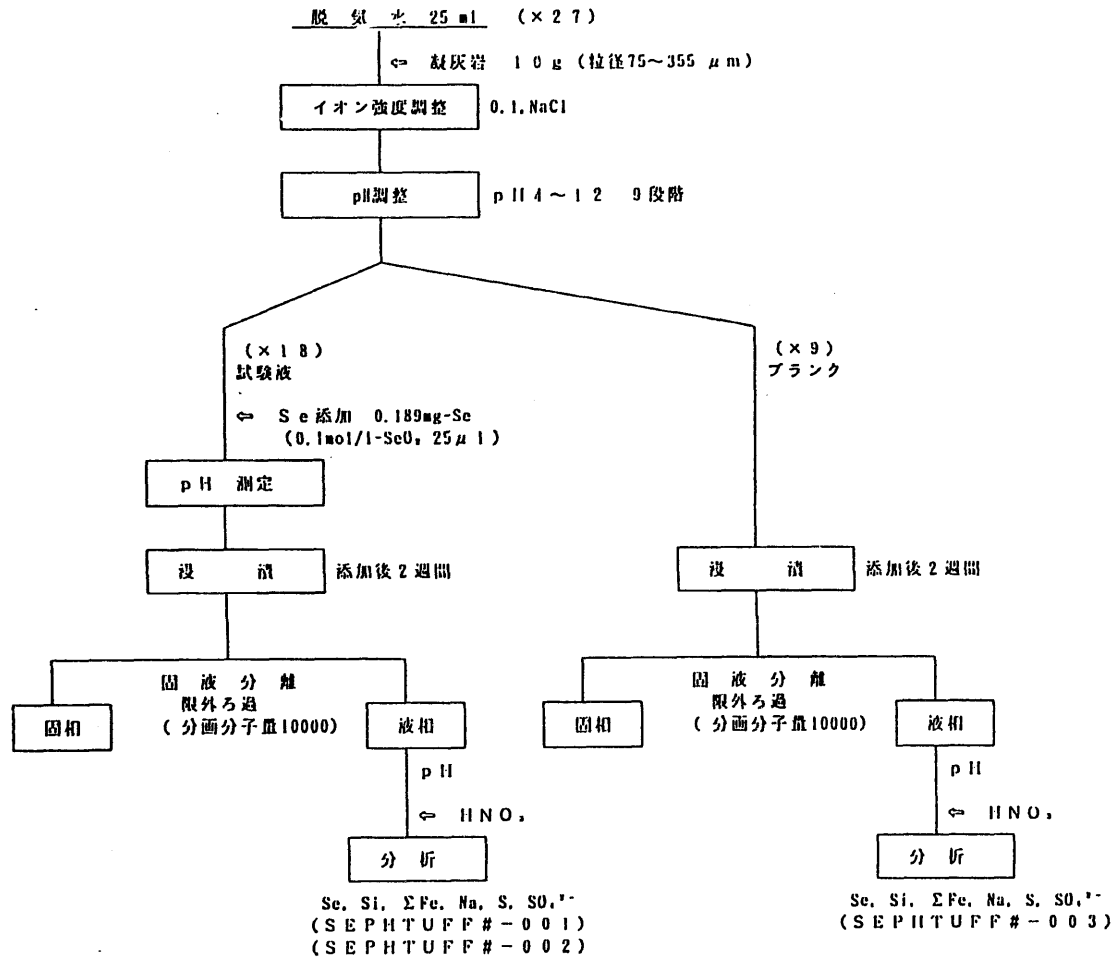


注) SE 25 GR # - 1、SE 25 GR # - 2「固相入り試験液」試験の分析試料名、SE 25 GR # - Bについては、「固相なしブランク試験液」試験の分析試料名を示す。SE 25 GRが花崗岩のSe吸着試験の共通番号、#がpH、次の-1、-2及び-Bが試験液別名称を示す。

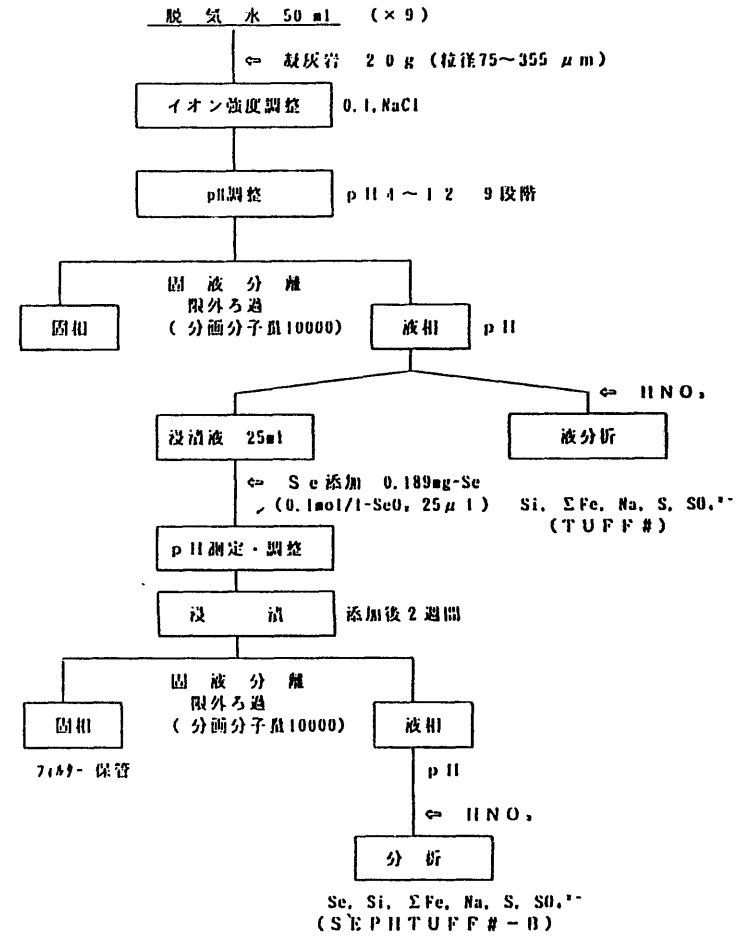
図 2. 2. 1 花崗岩を用いた Se 吸着の pH 依存性実験フロー



(1) 固相入り試験液



(2) フランク液試験



注) SEPHTUFF#-001, SEPHITUFF#-002「固相入り試験液」試験の分析試料名、  
 SEPHITUFF#-Bについては、「固相なしブランク試験液」試験の分析試料名、  
 SEPHITUFF#-003については、「Seなしブランク試験液」試験の分析試料名を示す。  
 SEPHITUFFが凝灰岩を用いたSe吸着のpH依存性試験共通番号、#がpH、次の-001、-002、  
 -003、-Bが試験別試料名を示す。  
 TUFF#については、収着実験開始前の分析用溶液を示す。TUFFが共通番号、#がpHを示す。

図 2. 2. 2 凝灰岩を用いた Se 吸着の pH 依存性実験フロー

## 3. Seの凝灰岩に対するKd取得実験概要

## 3. 1 実験条件

SeのKd値を求めるための実験条件を表3. 1. 1に示す。凝灰岩を粉碎した試料を固相として用い、凝灰岩の浸漬平衡液を液相、低酸素濃度環境下で脱気水にSeO<sub>2</sub>（試薬）を溶かして0.1mol/l-SeO<sub>2</sub>溶液を作製して、これをストック溶液とした。各々15μlを試料に添加し低酸素濃度環境下でバッチ法にて実験を行った。

表3. 1. 1 Seの凝灰岩に対するKd取得実験条件

固相	凝灰岩（動燃中部東濃鉱山産）
粒径	75μm～355μm <sup>(1)(2)</sup>
液相	凝灰岩平衡液（200日間低酸素濃度環境下で浸漬）
液量	15ml
液固比	2.5ml/g
試験数	2+2（固相なしブランク, Seなしブランク）
金属酸化物	SeO <sub>2</sub> （和光純薬工業㈱・特級試薬） 二酸化セレン含量 97%
雰囲気	低酸素濃度環境下（酸素濃度1ppm以下）
試験方法	バッチ法
試験期間	2週間 <sup>*1)</sup>
試験器具	30mlガラス容器

\*1) 表2. 1. 1に準ずる。

### 3. 2 実験手順

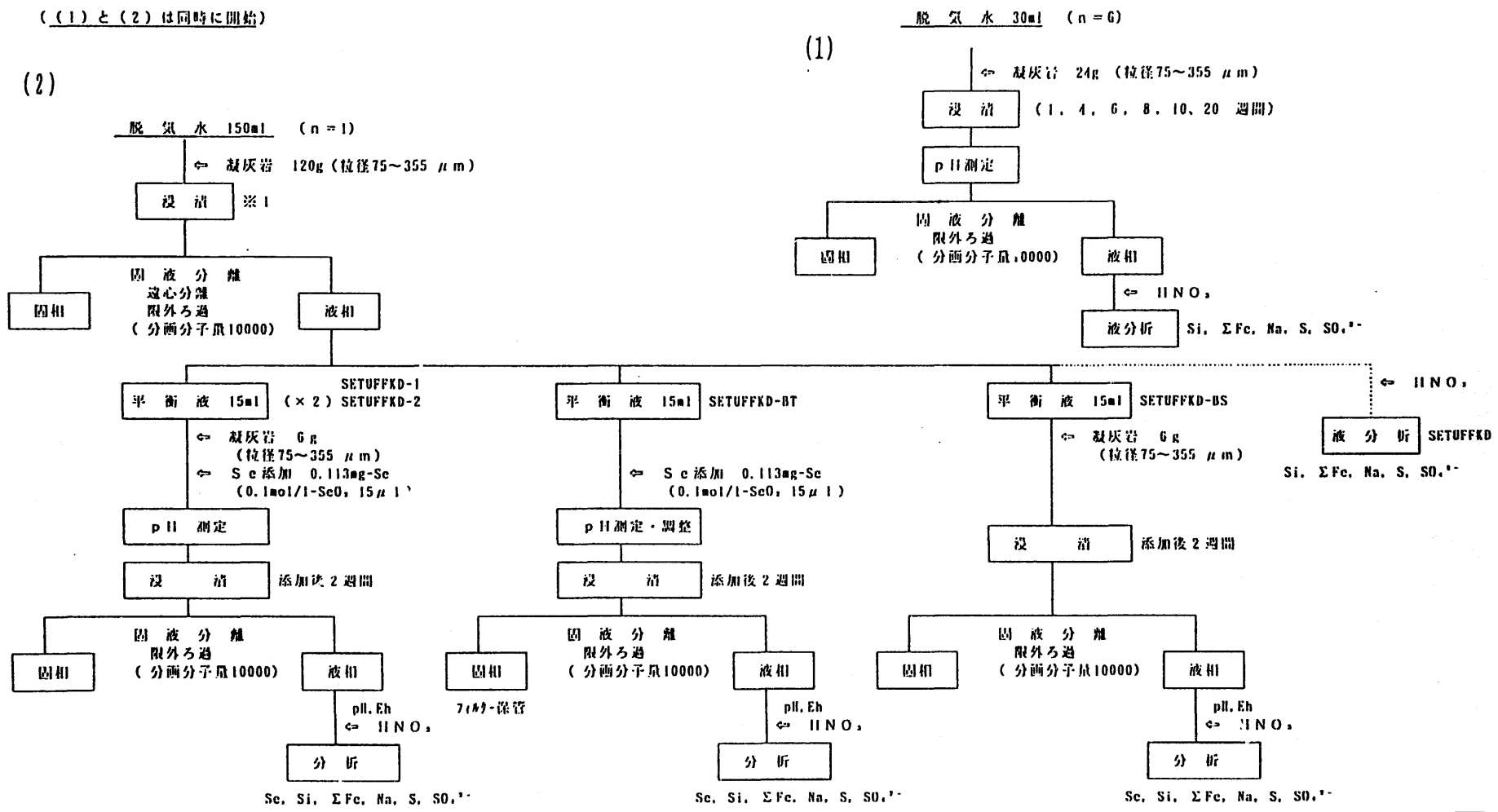
実験フローを図3. 2. 1に示す。実験はすべて酸素濃度1ppm以下の雰囲気制御グローブボックス中で行った。実験に用いた脱気水は窒素でバブリングを行い、溶存酸素を除去した。粉碎された試料と脱気した脱イオン水を所定量混合しpH及び化学種濃度をモニターしながら液組成が平衡に達するまで浸漬する。液組成が平衡に達したなら固液分離を行い固液分離後の平衡液と新鮮な凝灰岩（目視にて風化が観測されないもの）とを所定量混合し、Seを添加して2週間浸漬させ反応させる。浸漬期間中は振とうを常に行った。浸漬後、固相と液相を分画分子量10000の限外ろ過フィルターにより分離、ろ過液についてはICP（発光分光分析）により溶液中のSe濃度を分析した。Seの容器への吸着量を見積もるためにブランク試験も同時に行った。

### 3. 3 Kd値（分配係数）の求め方

Seの凝灰岩へのKd値は3. 3. 1式により求めた。

$$K_d = \frac{C_b - C_t}{C_t} \times \frac{L}{S} \quad (3. 3. 1)$$

- Kd : 分配係数 (ml/g)  
 Ct : 試験液中のSe濃度 (ppm)  
 Cb : ブランク中のSe濃度 (ppm)  
 L : 試験液液量 (ml)  
 S : 固相の量 (g)



※1 上記(1)フローにて、液相成が平衡に達したなら同時に開始した(2)の浸漬液も平衡状態にあると仮定して(2)の試験での平衡液を用いて吸着試験を開始した。

注) SETUFFKD-1, SETUFFKD-2 「固相入り試験液」試験の分析試料名、  
 SETUFFKD-BTについては、「固相なしブランク試験液」試験の分析試料名、  
 SETUFFKD-BSについては、「Seなしブランク試験液」試験の分析試料名を示す。  
 SETUFFKDが凝灰岩を用いたSeのKd取得試験共通番号、次の-1、-2、-BT、-BSが試験別試料名を示す。  
 SETUFFKDについては、吸着実験開始前の分析用溶液を示す。(浸漬期間200日)

図3.2.1 凝灰岩を用いたSeのKd取得実験フロー

#### 4. 花崗岩、凝灰岩に対するS e 吸着試験結果及び考察

##### 4. 1 花崗岩、凝灰岩に対するp H依存性実験の結果

各p Hでの花崗岩へのS e 吸着率の一覧表を表4. 1. 1に、凝灰岩へのS e 吸着率の一覧表を表4. 1. 2に示す。吸着率のp H依存性グラフを図4. 1. 1に示す。花崗岩については花崗岩分析結果一覧表（付表1）のS e濃度分析結果からも分かるように、ブランク試験液だけでなく固相入り試験液についても、p Hに依存せず滴下したS e濃度がそのまま検出されていることから、本実験条件下ではS eは花崗岩に対して吸着せずp H依存性が無いことが確認された。凝灰岩については凝灰岩のZPC<sup>(1)</sup>と考えられるp H 8付近までの酸性側低p H領域で高い吸着率を示し、p H 8を過ぎた辺りから徐々に低下し始める傾向が見られ、S eは凝灰岩に対してp Hに依存して吸着挙動に変化があることが確認された。

##### 4. 2 凝灰岩に対するK d値取得実験の結果

K d取得実験で用いた平衡液の調製期間（20週間）での化学種濃度変化及びp Hの変化を図4. 2. 1、図4. 2. 2に示す。各化学種の濃度については平衡液作製期間内でp Hと共に平衡に達したことが確認された。

S eの凝灰岩に対する既存K d値0.001-0.025(m<sup>3</sup>/Kg)（文献）<sup>(6)</sup>に対して0.084(m<sup>3</sup>/Kg)が得られた。

##### 4. 3 考察

花崗岩、凝灰岩の吸着率p H依存性の傾きを図4. 1. 1に示した。S eの種々の鉱物に対する吸着の既存データと比較した結果を図4. 3. 1に示す。凝灰岩の結果と既存データの結果と似ているものは少なく、Al(OH)<sub>3</sub><sup>(4)</sup>及びα-FeOOH<sup>(3)</sup> 2つが似ている挙動を示している。凝灰岩を形成している構成鉱物中にAlやFeの風化生成物が含まれていると考え、花崗岩と凝灰岩の鉱物分析の結果を参照したところ、凝灰岩の大部分（60%近く）は主要鉱物として分類できなかった。これは風化鉱物を多量に含有する為と思われる。全岩分析の結果（付表4）<sup>(5)</sup>ではSi、Ti、Al、Ca、Na等の分析がされておりAlについては花崗岩(3.23%)、凝灰岩(2.99%)と違いはなくFeについても花崗岩(1.91%)、凝灰岩(2.45%)と違いはない

ことが分かる。しかしながらFeについて含有量は等しくても風化の度合いにより鉄鉱物の種類が変化するのは明らかであり、Seの吸着と鉄鉱物の相関について検討が必要と思われる。また、違いの大きいS、Cから以下のような影響が考えられる。Sについては硫化物の存在が考えられ、CについてはCO<sub>2</sub>の含有量では違いがないため炭酸塩以外の炭素化合物の存在が考えられる。花崗岩と凝灰岩の吸着の違いが硫化物及び炭素化合物の二点には絞り切れないが、今後の課題として炭素化合物等の吸着実験を行うことを考えている。

一方、Al(OH)<sub>3</sub>及び $\alpha$ -FeOOHのZPC(Al(OH)<sub>3</sub>;7.4,  $\alpha$ -FeOOH;7.2) <sup>(4)</sup> (その他鉱物のZPCについては表4. 3. 1参照) <sup>(1)</sup> から見ても高pH領域ではプラスの電荷が存在しないため吸着しないことが考えられ、pH 11、12を過ぎても吸着する今回の実験結果を説明するには、より等電点の高い鉱物が凝灰岩中に含まれていてその鉱物が寄与している可能性も考えられる。凝灰岩平衡液分析経時変化(図4. 2. 1)から分かるようにSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度が非常に高く検出されていることから風化している凝灰岩ではないだろうかと考えられる。以前、岩石浸漬液の作製時に凝灰岩のpH経時変化を測定したところ、1週目でpH7あった値が14週目にはpH4.5位まで低下した値を示していた。このpHの変化をみて使用した凝灰岩は風化していると判断されている。しかし、今回使用した凝灰岩は1週目から20週目までpH7付近の値を示し、pHの低下が確認されていないことからpHの低下の点で見ると風化しているとは判断しがたいと思われる。また今回使用した凝灰岩は中部事業所で採取され原石のまま保管してあった凝灰岩である。原石のまわりにはAlの硫酸塩等が確認できるような状態があり、加工してAlの硫酸塩等を取り除き円柱のコアとして当事業所に移送し大気下で粉碎したものである。加工してAlの硫酸塩等を取り除き円柱のコアを作製する際に、多少なりともAlの硫酸塩等が混入してしまいSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度が高くなったのではないかと考えられる。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>イオンがSeに対してどのような影響を与えているかについては、今のところ十分なデータが集まらないため、今後検討が必要である。

Kd取得実験\*<sup>2)</sup> (pH6.34, pH6.30)でのKd値0.084(m<sup>3</sup>/Kg)とpH依存性実験\*<sup>3)</sup>での同等pH (pH6.36, pH6.26)のKd値0.061(m<sup>3</sup>/Kg)を比較してみると、同じオーダーの値を示したため両者の顕著な違いである溶液中の共存イオンは影響していないことから、岩石平衡液を用いなくてもイオン強度を調整すれば同等なKd値を得られることも分かった。

花崗岩についてはK d値を求めることができなかった。K d値取得を目的として花崗岩のスルーディフュージョン法拡散実験を行いK d値を求める実験を検討する必要がある。

- 
- \*<sup>1)</sup> 本文中では、等電点のことをZ P Cと示している。
  - \*<sup>2)</sup> K d取得実験での分析結果及びp Hを付表3に示す。
  - \*<sup>3)</sup> p H依存性実験での分析結果及びp Hを付表2に示す。

表 4. 1. 1 各 pH での花崗岩への S e 吸着率

p H	5.19	5.56	5.62	5.87	6.98	7.47	8.19	8.50
吸着率 (%)	0	0	0	0	0	0	0	0
p H	9.40	9.64	10.14	10.63	—	—	—	—
吸着率 (%)	0	0	0	0	—	—	—	—

表 4. 1. 2 各 pH での凝灰岩への S e 吸着率

p H	4.31	4.27	5.31	5.25	6.36	6.26	7.23	7.27
吸着率 (%)	100	100	96	96	96	96	95.8	95.8
p H	8.13	8.11	8.04	8.76	8.69	8.66	10.02	10.12
吸着率 (%)	91.3	91.3	91.3	82.1	82.1	83.3	55.6	56.8
p H	9.73 *	9.74 *	10.38 *	10.35 *	11.68 *	11.46 *	12.54 *	12.57 *
吸着率 (%)	61.7	63.0	50.6	51.9	43.6	38.5	27.3	26.0

\* 追実験でのデータを示す



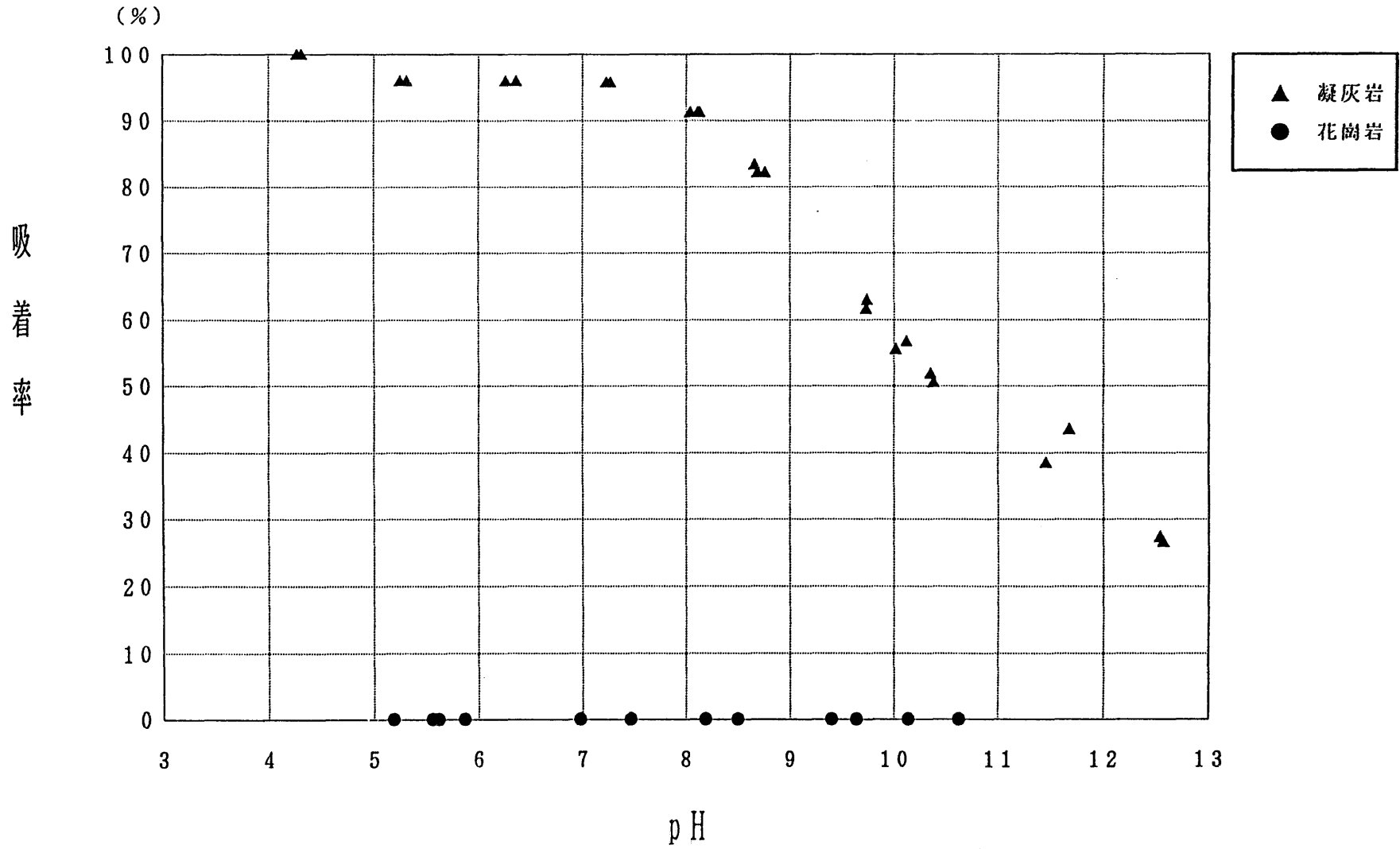


図4. 1. 1 花崗岩・凝灰岩のSeの吸着率のpH依存性

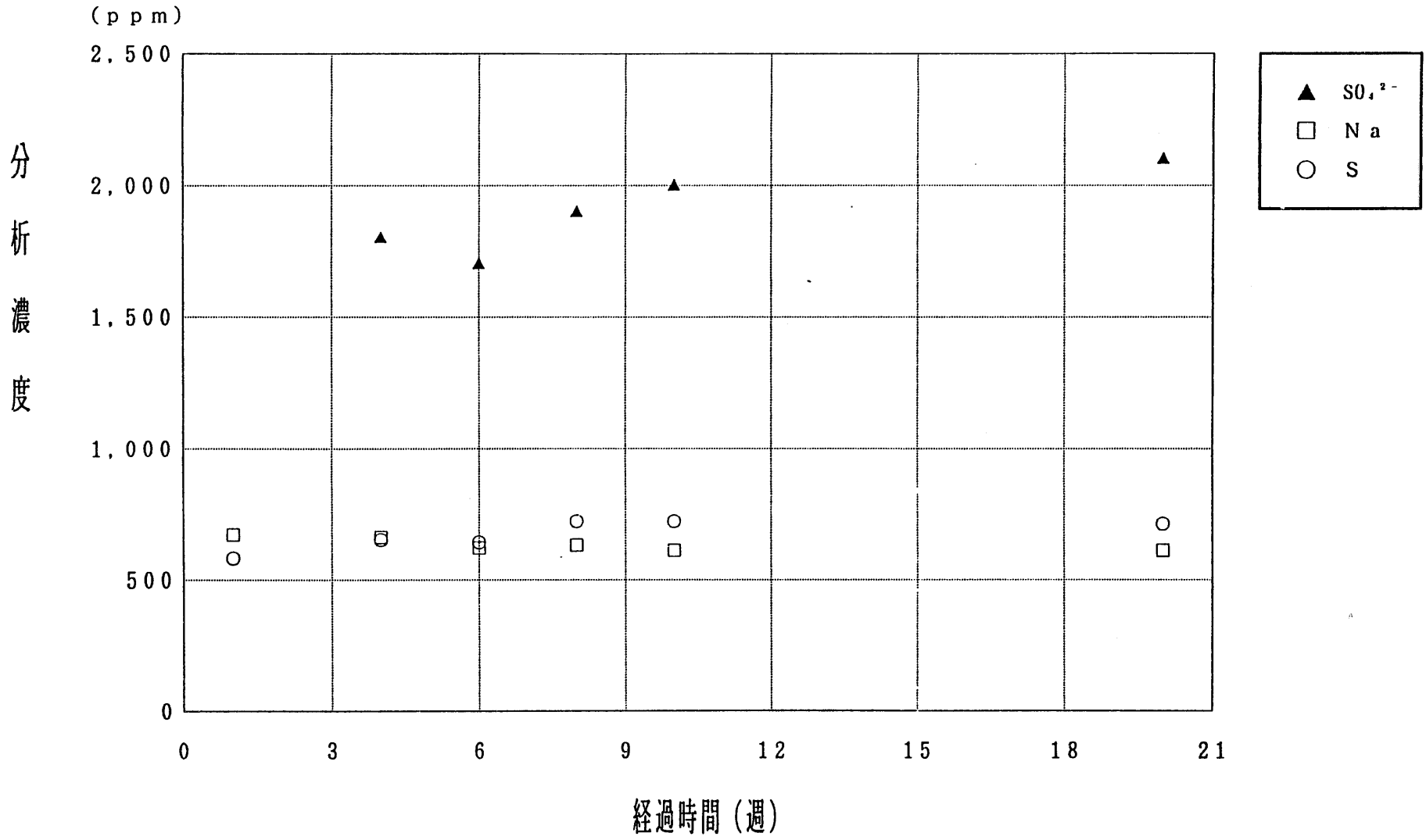
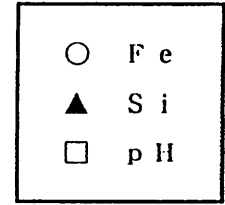


圖 4. 2. 1 凝灰岩平衡液( $SO_4^{2-}$ , Na, S)分析經時變化



分析濃度

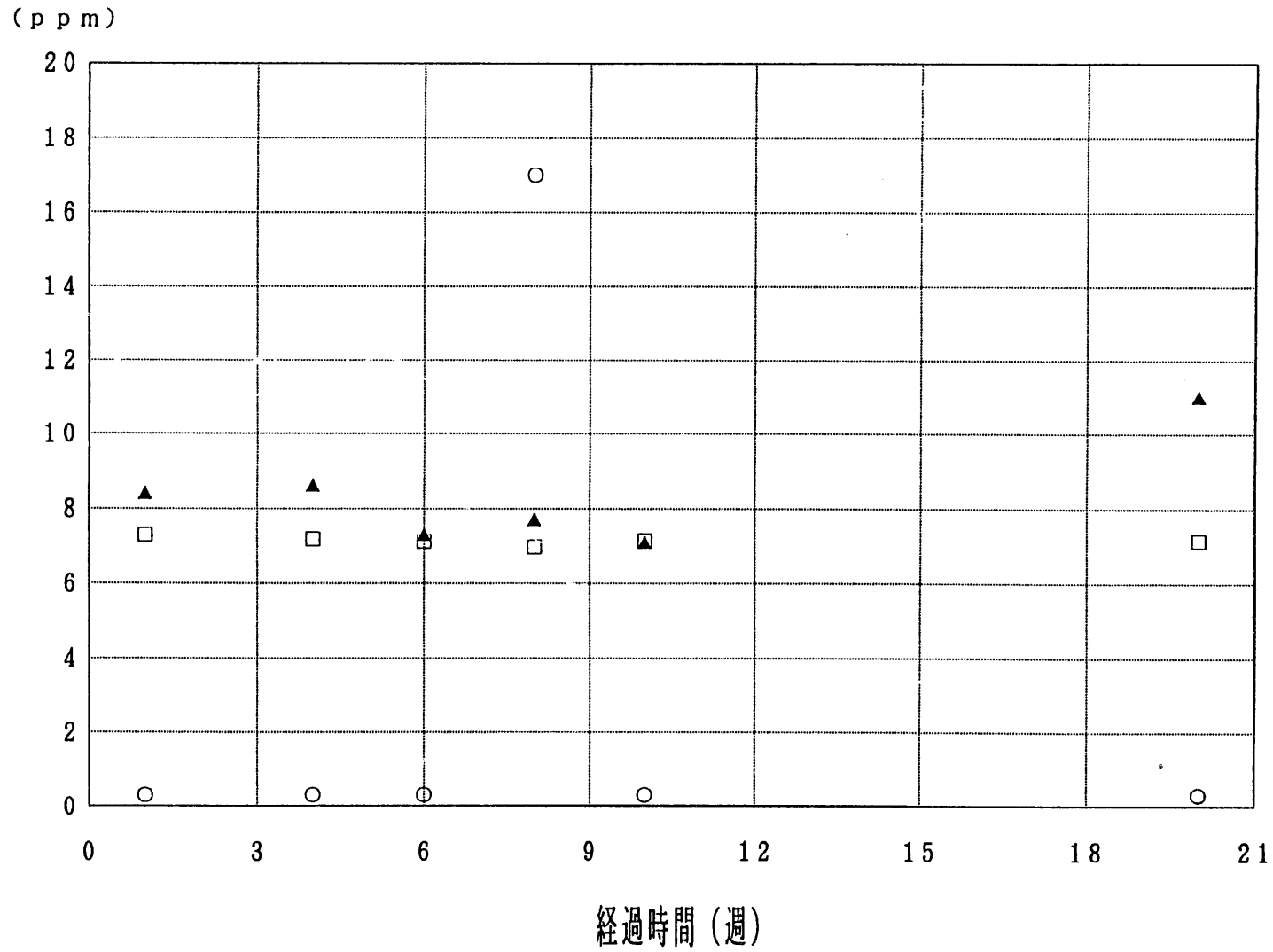


図4. 2. 2 凝灰岩平衡液 (Fe, Si)分析経時変化及びpH経時変化

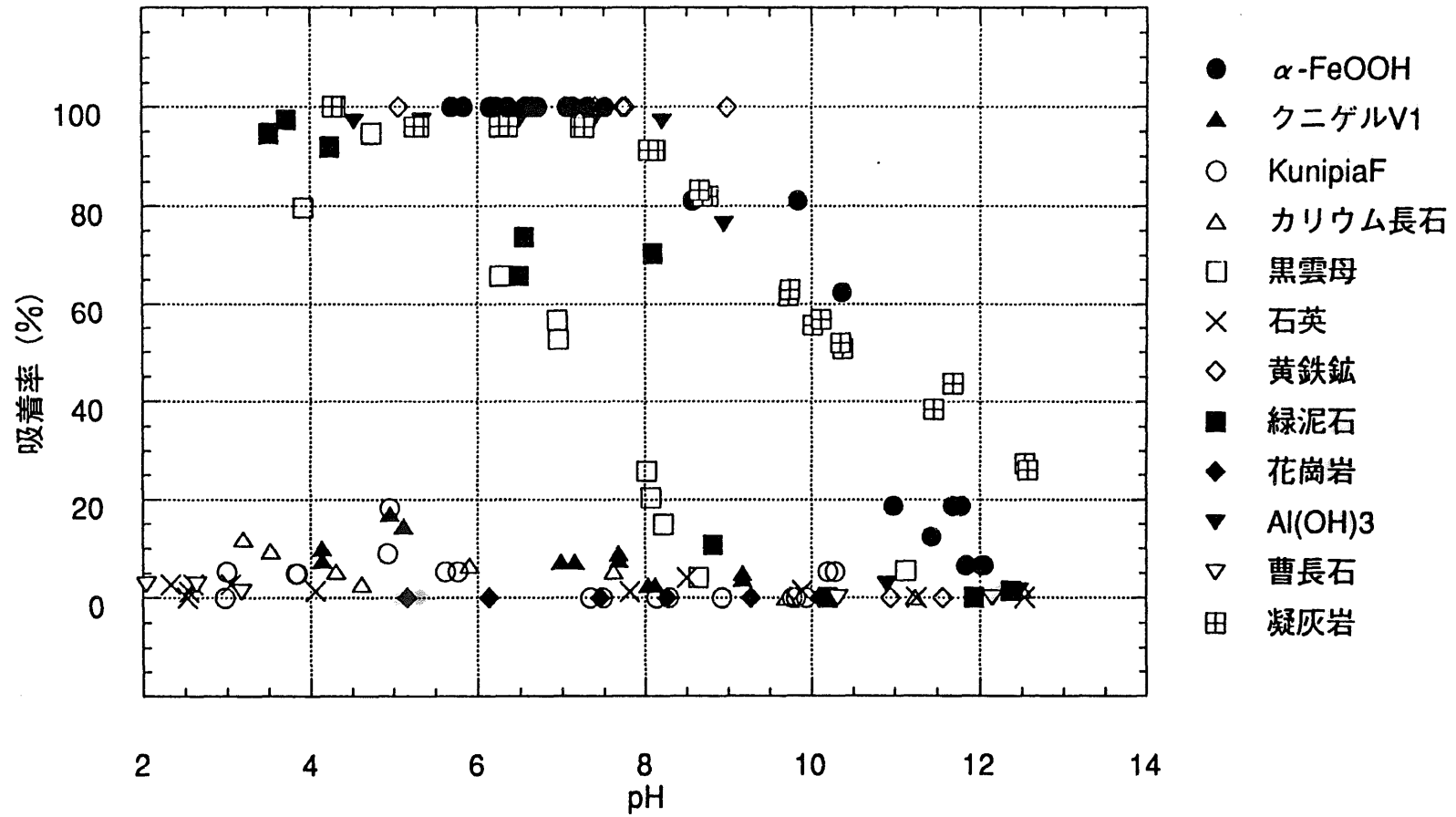


図4.3.1 Seの各鉱物への吸着率との比較

(4)  
 「出典；渋谷朝紀ら (1994) より」

表4. 3. 1 種々の鉱物の等電点 (ZPC) のpH

鉱物名	pH	出典
$\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	8. 5	(1 0)
Anatase(TiO <sub>2</sub> )	5. 8	(1 1)
Birnessite( $\delta$ -MnO <sub>2</sub> )	2. 2	(1 2)
Calcite(CaCO <sub>3</sub> )	9. 5	(1 3)
Corundum( $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	9. 1	(1 4)
Goethite( $\alpha$ -FeOOH)	7. 3	(1 5)
Hematite( $\alpha$ -Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	8. 5	(1 6)
Hydroxyapatite(Ca <sub>5</sub> (PO <sub>4</sub> ) <sub>3</sub> OH)	7. 6	(1 7)
Magnetite( $\alpha$ -Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> )	6. 6	(1 8)
Rutile(TiO <sub>2</sub> )	5. 8	(1 9)
Quartz( $\alpha$ -SiO <sub>2</sub> )	2. 9	(1 4)

## 5 謝辞

本実験を行うにあたり動燃事業団・東海事業所・地層処分開発室の澁谷朝紀氏には実験上の細かい指導、助言をいただきました。また、動燃事業団・東海事業所・再処理技術開発部プロセス分析開発室の皆様には実験液の分析を行っていただきました。改めて御礼申し上げます。

## 6 引用文献

- (1) Daniels W. R., Wolfsberg K. and Rundberg R. S. (1982), Summary report on the geochemistry of Yucca mountain and environs, L A - 9 3 2 8 - M S
- (2) Thomas K. W. (1987), Summary of sorption measurements performed with Yucca mountain, Nevada, tuff sample and water from Well-J-13, L A - 1 0 9 6 0 - M S
- (3) M R S ; VOLUME 333 Scientific Basis for Nuclear Waste Management  
X V II, P730
- (4) 澁谷朝紀ら, 技術資料 ; (印刷中)  
Seの岩石および鉱物に対する収着挙動に関する研究
- (5) 澁谷朝紀ら, 技術資料 ; PNC8410 92-198  
天然バリアにおける核種移行研究に用いる岩石の分類
- (6) 澁谷朝紀ら, 技術資料 ; PNC8410 92-163  
ベントナイト及び岩石中での核種の分配係数
- (7) Mineralogical Society of America / REVIEWS in MINERALOGY Volume 23. P210
- (8) K. F. Hayes, C. Papelis, and J. O. Leckie, Modeling Ionic Strength Effects on Anion Adsorption at Hydrated Oxide/Solution Interfaces, J. Colloid and Interface Science. Vol. 125. No. 2. October 1988
- (9) K. V. Ticknor, D. R. Harris, T. T. Vandergraaf, Sorption/Desorption Studies of Selenium on Fracture-Filling Minerals under Aerobic and Anaerobic Conditions, Atomic Energy of Canada Limited TR-453
- (10) Huang, C. P and Stumm, W. (1973) Specific adsorption of cations on hydrous  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ . J. Colloid Interface Sci. 22, 231-259

- (11) Berube, Y. G. and de Bruyn, P. L. (1968) Adsorption at the rutile-solution interface I. Thermodynamic and experimental study. *J. Colloid Interface Sci.* 27, 305-318
- (12) Balistrieri, L. S. and Murray, J. W. (1982) The surface chemistry of  $\delta$ - $\text{MnO}_2$  in major ion sea water. *Geochim. Cosmochim. Acta* 46, 1041-1052
- (13) Parks, G. A. (1975) Adsorption in the marine environment. In: *Chemical Oceanography*, 2nd ed., Vol. 1. J. P. Riley and G. Skirrow (eds.), Academic Press, San Francisco, CA, p. 241-308.
- (14) Sposito, G. (1984) *The Surface Chemistry of Soils*. Oxford University Press, New York
- (15) Atkinson, R. J., Posner, A. M., and Quirk, J. P. (1972) Kinetics of heterogeneous isotopic exchange of phosphate at the  $\alpha$ - $\text{FeOOH}$  aqueous solution interface. *J. Inorg. Nucl. Chem.* 34, 2201-2211.
- (16) Breeuwsma, A. and Lyklema, J. (1973) Physical and chemical adsorption of ions in the electrical double layer on hematite ( $\alpha$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ). *J. Colloid Interface Sci.* 43, 437-448.
- (17) Bell, L. C., Posner, A. M. and Quirk, J. P. (1973) The point of zero charge of hydroxyapatite and fluorapatite in aqueous solutions. *J. Colloid Interface Sci.* 42, 250-261.
- (18) Tewari, P. H. and McLean, A. W. (1972) Temperature dependence of point of zero charge of alumina and magnetite. *J. Colloid Interface Sci.* 40, 267-272.
- (19) Yates, D. E. (1975) The structure of the oxide/aqueous electrolyte interface. Ph. D. dissertation, Univ. Melbourne, Melbourne, Australia.

付表1 pH依存性試験後花崗岩分析結果一覧表 (群馬県 沢入産使用)

pH依存性試験後のサンプル液でのSe濃度及び化学種濃度分析結果

分析成分 試料番号	分析値 (ppm)											
	pH	Se	Al	Ca	Fe	Mg	Si	Na	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	HCO <sub>3</sub>	K
SE25GR5-B	5.16	2.5	0.4	7.9	0.4	<0.1	1.9	2.6	<0.4	<0.4	1.1	21
SE25GR5-1	5.19	2.6	0.3	6.9	0.3	<0.1	1.9	2.4	<0.4	<0.4	1.5	33
SE25GR5-2	5.56	2.7	0.3	7.1	<0.3	<0.1	2.0	2.6	<0.4	<0.4	1.7	42
SE25GR6-B	6.14	2.5	0.3	6.7	<0.3	<0.1	1.5	2.0	<0.4	<0.4	1.7	23
SE25GR6-1	5.62	2.5	0.3	7.3	<0.3	<0.1	1.9	2.1	<0.4	<0.4	2.1	29
SE25GR6-2	5.87	2.8	0.3	7.1	<0.3	<0.1	1.7	1.8	<0.4	<0.4	1.8	34
SE25GR7-B	7.46	2.6	0.3	5.7	<0.3	<0.1	1.8	2.9	<0.4	<0.4	2.8	25
SE25GR7-1	6.98	2.7	0.3	6.9	<0.3	<0.1	1.8	2.8	<0.4	<0.4	2.3	80
SE25GR7-2	7.47	2.7	0.3	6.5	<0.3	<0.1	1.8	2.6	<0.4	<0.4	2.4	35
SE25GR8-B	8.26	2.0	0.2	5.1	0.6	<0.1	1.7	2.4	<0.4	<0.4	2.4	28
SE25GR8-1	8.19	2.8	0.3	6.2	<0.3	<0.1	1.9	2.2	<0.4	<0.4	3.0	15
SE25GR8-2	8.50	2.8	0.3	5.9	<0.3	<0.1	1.7	2.4	<0.4	<0.4	4.0	34
SE25GR9-B	9.28	2.5	<0.2	2.6	<0.3	<0.1	2.0	4.4	<0.4	<0.4	7.0	6.9
SE25GR9-1	9.40	2.7	0.2	3.0	<0.3	<0.1	2.2	3.9	<0.4	<0.4	8.0	6.1
SE25GR9-2	9.64	2.7	0.2	2.3	<0.3	<0.1	2.4	4.6	<0.4	<0.4	7.0	5.4
SE25GR10-B	10.10	2.3	0.2	1.1	<0.3	<0.1	2.5	5.2	<0.4	<0.4	10	3.7
SE25GR10-1	10.14	2.6	0.2	1.6	<0.3	<0.1	2.6	5.6	<0.4	<0.4	9.0	5.6
SE25GR10-2	10.63	2.9	0.5	0.9	<0.3	<0.1	4.5	18	<0.4	<0.4	10	6.7

※1 SE25GRが共通番号、その次にpH-試験液の番号  
(Bは花崗岩なしブランクを示す。)

※2 分析値は3倍希釈して分析を行った結果を示す。



付表2 pH依存性試験後凝灰岩分析結果一覧表 (東濃鉱山産凝灰岩使用)

pH依存性試験後のサンプル液でのSe濃度及び化学種濃度分析結果

分析成分 試料番号	分析値 (ppm)						
	pH	Se	Fe	Na	Si	S	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>
TUFF4	4.36	—	9.3	2000	39	290	800
TUFF5	5.20	—	0.3	2100	20	310	870
TUFF6	6.55	—	<0.3	1700	16	260	740
TUFF7	7.58	—	<0.3	1500	12	240	690
TUFF8	8.20	—	0.4	1700	6.9	260	770
TUFF9	8.70	—	<0.3	1900	6.1	280	830
TUFF10	10.06	—	<0.3	1800	6.5	260	760
TUFF9*	9.37	—	<0.2	2400	9.1	400	1100
TUFF10*	10.15	—	<0.2	2500	12.0	410	1100
TUFF11*	11.47	—	<0.2	2500	27.0	350	970
TUFF12*	12.48	—	<0.2	3200	36.0	320	870
SEPHTUFF4-001	4.31	<0.2	11	1500	43	180	490
SEPHTUFF4-002	4.27	<0.2	14	2100	42	300	800
SEPHTUFF4-003	4.31	<0.2	12	2100	39	290	800
SEPHTUFF4-B	4.27	8.3	9.3	1900	38	290	820
SEPHTUFF5-001	5.31	0.3	<0.3	2200	17	300	810
SEPHTUFF5-002	5.25	0.3	<0.3	2100	18	270	750
SEPHTUFF5-003	5.35	<0.2	<0.3	2100	17	300	820
SEPHTUFF5-B	5.24	7.7	0.3	2100	20	310	880
SEPHTUFF6-001	6.36	0.3	<0.3	1900	11	250	680
SEPHTUFF6-002	6.26	0.3	<0.3	1800	12	270	730
SEPHTUFF6-003	6.14	<0.2	<0.3	2000	12	250	670
SEPHTUFF6-B	6.25	7.6	<0.3	1700	13	260	730
SEPHTUFF7-001	7.23	0.3	<0.3	1700	8.6	230	640
SEPHTUFF7-002	7.27	0.3	1.5	1600	8.2	250	710
SEPHTUFF7-003	7.37	<0.2	<0.3	1600	8.1	240	700
SEPHTUFF7-B	7.43	7.2	0.3	1600	8.9	240	710
SEPHTUFF8-001	8.13	0.7	<0.3	1800	5.9	260	720
SEPHTUFF8-002	8.11	0.7	<0.3	1700	6.1	260	720
SEPHTUFF8-003	8.04	0.7	<0.3	1600	5.7	250	690
SEPHTUFF8-B	8.03	8.0	<0.3	1600	6.3	260	730

\* 追実験データを示す。

付表2 pH依存性試験後凝灰岩分析結果一覧表 (続き)

分析成分 試料番号	分析値 (ppm)						
	pH	Se	Fe	Na	Si	S	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>
SEPHTUFF9-001	8.76	1.4	<0.3	1900	5.7	290	810
SEPHTUFF9-002	8.69	1.4	<0.3	1900	5.8	290	780
SEPHTUFF9-003	8.66	1.3	<0.3	1800	5.5	310	870
SEPHTUFF9-B	8.65	7.8	<0.3	1800	5.7	280	760
SEPHTUFF10-001	10.02	3.6	<0.3	1900	6.2	280	800
SEPHTUFF10-002	10.12	3.5	<0.3	1800	6.3	220	620
SEPHTUFF10-003	10.17	<0.2	<0.3	1800	6.5	250	710
SEPHTUFF10-B	10.01	8.1	<0.3	1900	6.2	260	770
SEPHTUFF9-001 *	9.73	3.1	0.2	2600	9.2	440	1200
SEPHTUFF9-002 *	9.74	3.0	0.2	2500	8.6	400	1100
SEPHTUFF9-003 *	9.79	<0.2	0.2	2500	8.2	400	1100
SEPHTUFF9-B *	9.68	8.1	<0.2	2400	9.0	400	1100
SEPHTUFF10-001*	10.38	3.9	<0.2	2500	10.0	410	1100
SEPHTUFF10-002*	10.35	3.8	<0.2	2500	9.8	410	1200
SEPHTUFF10-003*	10.43	<0.2	<0.2	2500	10.0	420	1200
SEPHTUFF10-B*	10.31	7.9	<0.2	2500	11.0	400	1100
SEPHTUFF11-001*	11.68	4.4	<0.2	2600	28.0	370	1000
SEPHTUFF11-002*	11.46	4.8	<0.2	2600	22.0	420	1200
SEPHTUFF11-003*	11.66	<0.2	<0.2	2500	28.0	370	1100
SEPHTUFF11-B*	11.47	7.8	<0.2	2400	26.0	340	960
SEPHTUFF12-001*	12.54	5.6	<0.2	3100	49.0	340	920
SEPHTUFF12-002*	12.57	5.7	<0.2	3100	50.0	330	920
SEPHTUFF12-003*	12.55	<0.2	<0.2	3100	50.0	340	930
SEPHTUFF12-B*	12.51	7.7	<0.2	3100	33.0	320	870

\* 追実験データを示す。

- ※1 TUFFが共通番号、その次にpH  
 ※2 SEPHTUFFが共通番号、その次にpH-試験液の番号  
 (3はSeなしブランク、Bは凝灰岩なしブランクを示す。  
 但し、pH8、pH9については3は無い)  
 ※3 共通番号TUFFは試験開始時(Se添加直前)サンプルを示し、  
 共通番号SEPHTUFFは試験終了時(Se添加2週間)サンプルを示す。

付表3 Kd取得試験後凝灰岩分析結果一覧表 (東濃鉱山産凝灰岩使用)

Kd取得試験後のサンプル液でのSe濃度及び化学種濃度分析結果

分析成分 試料番号	Se 添加 前 pH	Se 添加 後 pH	分析値 (ppm)					
			Se	Fe	Na	Si	S	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>
SETUFFKD	8.18	—	<0.2	<0.2	540	11	620	1800
SETUFFKD-1	—	6.34	0.2	<0.2	940	15	1000	2900
SETUFFKD-2	—	6.30	0.2	<0.2	930	15	1000	2900
SETUFFKD-BT	—	6.32	6.9	<0.2	500	12	570	1700
SETUFFKD-BS	—	—	<0.2	<0.2	940	15	1000	3000

※1 SETUFFKDが共通番号、次の1、2が試験液、BTが凝灰岩なしブランク、BSがSeなしブランクを示す。共通番号のみのものは試験開始時の溶液を示す。

付表 4 全岩化学分析結果一覽表

成分	單位	花崗岩	凝灰岩
S i	%	34.5	32.7
T i	%	0.19	0.27
A l	%	3.23	2.99
F e	%	1.91	2.45
M n	%	0.05	0.02
M g	%	0.53	0.67
C a	%	1.19	0.78
N a	%	1.07	0.42
K	%	1.62	0.68
H <sub>2</sub> O (-)	%	0.02	0.07
S	ppm	80	7300
C	ppm	270	5700
CO <sub>2</sub>	ppm	500	<100