

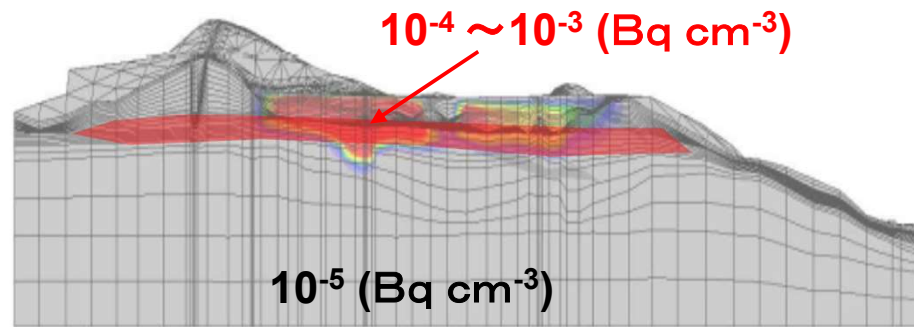
露天採掘場跡地の ラジウム(Ra)の挙動に関する研究

(2019.3.15 第20回鉍山跡措置技術委員会 資料)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
バックエンド研究開発部門
人形峠環境技術センター

目的

露天採掘場跡地内のラジウム (Ra) の挙動を明らかにする。



地下水中のラジウム (Ra) 濃度分布

露天採掘場跡地内外に分布する花崗岩中のラジウム濃度は、約1/10 ~ 約1/100 濃度が低い

- ・露天採掘場跡地内に分布する鉱物にラジウム (Ra) が選択的に吸着していることが推測される
- ・最終的には、鉱物への吸着メカニズム、吸着量、及び吸着層の吸着性能や脱離の可能性を明らかにする

露天採掘場跡地の地下水水質の現状

露天採掘場跡地の概要

○経緯

- S32～35 坑道掘削によるウラン採鉱
- S52～62 露天採掘によるウラン採鉱
→ 採掘深度は場所により異なる
- S54～63 露天採掘した鉱石からのヒープリーチングによるウラン回収
→ 鉱石55,650tから39.5tU回収
中和処理ののち捨石埋設、覆土、植栽

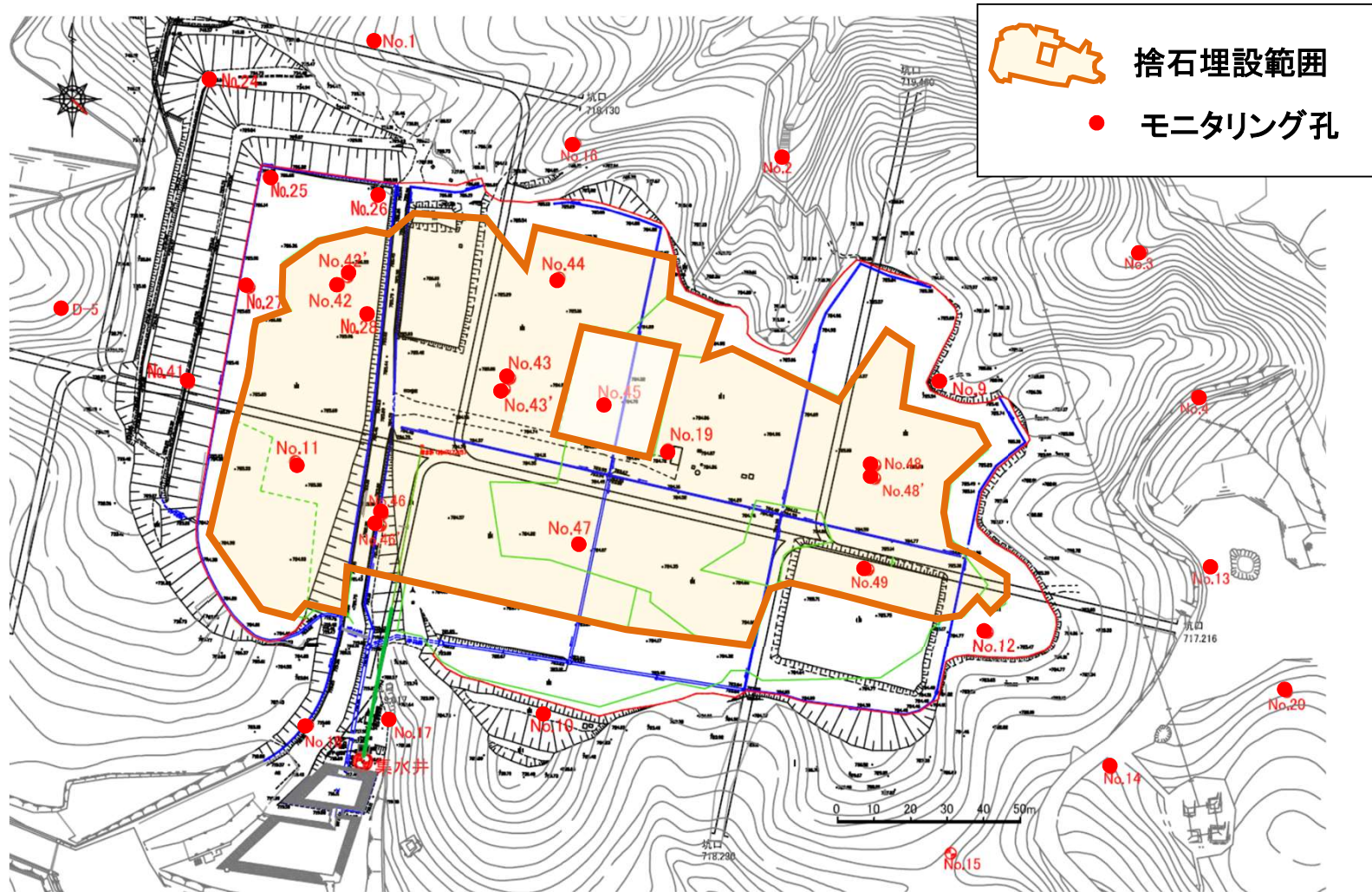


露天採掘場跡地

○現状

- ・ 規模 約29,600㎡(E-W 約200m, N-S 約150m)
- ・ 旧坑道 排水用暗渠を設置し埋め戻している
- ・ たい積物 下位から捨石、表土(露天採掘前の地山である主に堆積岩)、客土(センター外から搬入したマサ土)
- ・ 坑水 暗渠により跡地南部の集水井へ流下、のち鉱さいたい積場へ流送
水量: 約 2 万m³/年
水質: 鉄濃度(19.7μg/cm³)が法令値(10 μg/cm³)及びセンターの定める排出基準値(1μg/cm³)を超過
⇒ 将来における坑水処理の負荷低減化のため、水量低減化・水質改善が必要

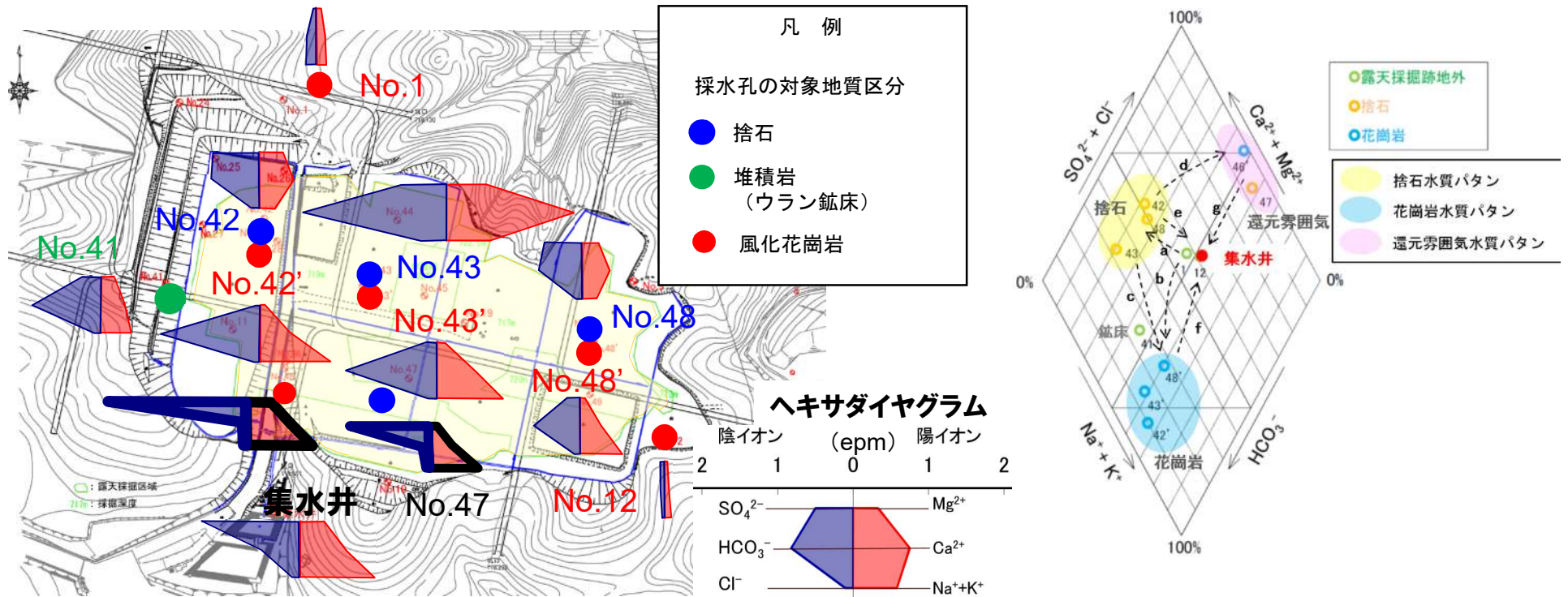
露天採掘場跡地の地下水水質の現状 モニタリング孔の位置



地下水モニタリング孔は、捨石埋設部に「14地点」、周辺に「20地点」設置

露天採掘場跡地内の地下水水質の特徴

■主要成分 (ヘキサダイアグラム、キーダイアグラム)



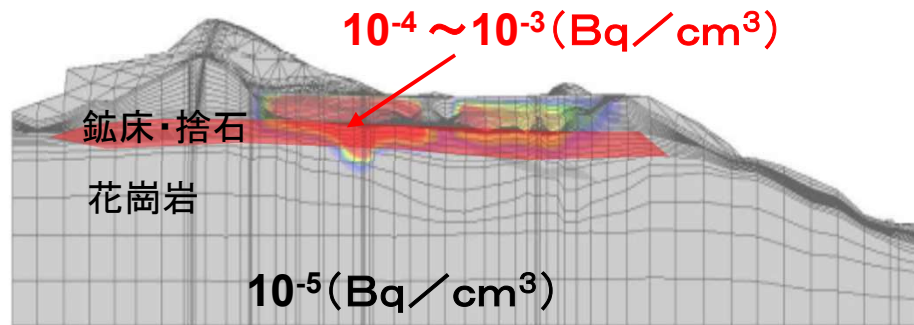
地点 (H28.10.3採水)			場外上流		露天採掘場内						場外下流	集水井*	
			花崗岩	鉱床	捨石			花崗岩			花崗岩		
			No. 1	No. 41	No. 42	No. 43	No. 48	No. 42'	No. 43'	No. 48'	No. 12		
主成分	陽イオン	Mg ²⁺	epm	0.07	0.25	0.47	0.70	0.32	0.10	0.16	0.10	0.04	0.43
		Ca ²⁺	epm	0.16	0.45	0.67	2.31	0.52	0.59	0.70	0.40	0.07	0.80
		Na ⁺	epm	0.16	0.52	0.25	0.44	0.23	1.27	1.14	0.70	0.09	1.22
		K ⁺	epm	0.03	0.05	0.07	0.33	0.06	0.06	0.08	0.07	0.02	0.05
	陰イオン	SO ₄ ²⁻	epm	0.04	0.33	0.83	0.82	0.69	0.08	0.19	0.23	0.08	1.67
		HCO ₃ ⁻	epm	0.18	1.28	0.88	2.61	0.78	1.80	1.68	0.85	0.08	0.64
		Cl ⁻	epm	0.20	0.10	0.11	0.45	0.09	0.12	0.11	0.09	0.04	0.12
重金属	S-Fe	mg/L	0.09	14.71	9.99	2.33	0.92	0.31	0.08	0.09	0.11	16.0	
放射性	Ra	Bq/cm	1.9E-04	1.3E-04	7.6E-04	2.3E-03	6.9E-05	3.8E-05	6.8E-05	2.0E-05	1.4E-04	1.6E-03	

露天採掘場跡地内のラジウム濃度は非常に高い

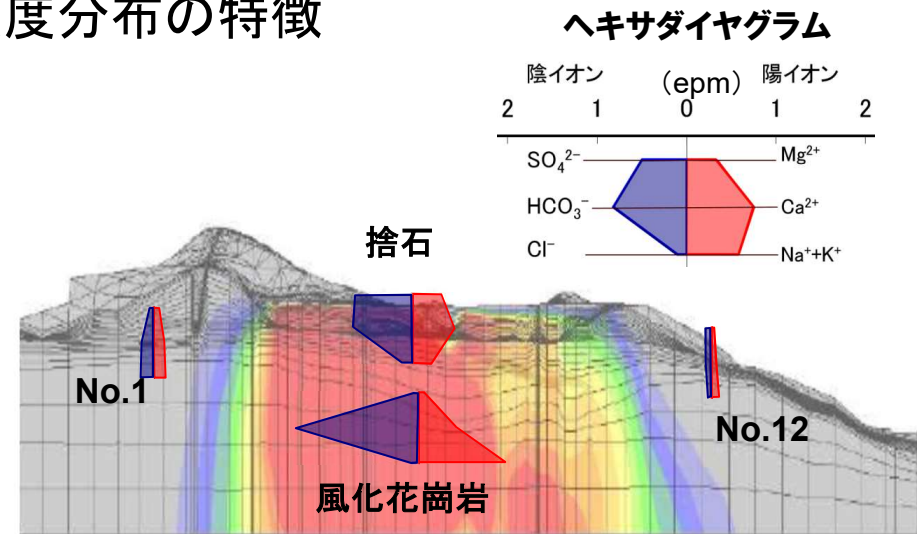
集水井*はH25.12.20 採水結果

露天採掘場跡地内の地下水水質の特徴

■ラジウム(Ra)濃度分布の特徴



Ra濃度分布のイメージ図



主成分濃度分布のイメージ図

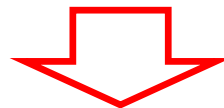
(Raが遅延しない場合の濃度分布図)

●Ra濃度分布

- ・ 露天採掘場跡地場外と捨石部の地下水で $10^{-4} \sim 10^{-3}$ (Bq/cm³) オーダーの濃度を示した。
 - ・ 捨石分布範囲の深部花崗岩の地下水は、 10^{-5} (Bq/cm³) オーダーの低い値を示した。

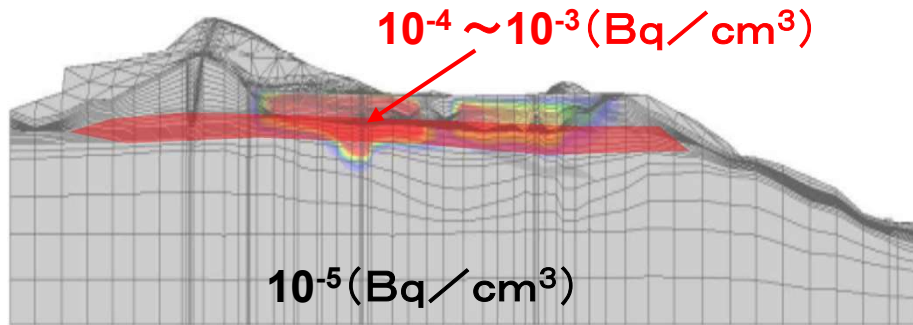
●主成分濃度分布

- ・ 主成分の濃度は捨石分布範囲の地下水が高く、露天採掘場跡地場外の地下水の濃度は低かった。



深部花崗岩に希釈効果があれば、主成分も約1/10に希釈されるはずだが、そうではないことから、Raが堆積岩と花崗岩の不整合部付近でトラップされていると推察される。

ラジウム (Ra) の挙動調査



地下水中のラジウム (Ra) 濃度分布

露天採掘場跡地内外に分布する花崗岩中のラジウム濃度は、約1/10～約1/100濃度が低い

- ・露天採掘場跡地内に分布する鉱物にラジウム (Ra) が選択的に吸着していることが推測される
- ・鉱物への吸着メカニズム、吸着量、そして将来における吸着層の吸着性能や脱離の可能性については不明である

～ Ra の挙動メカニズムを解明することの目的 ～

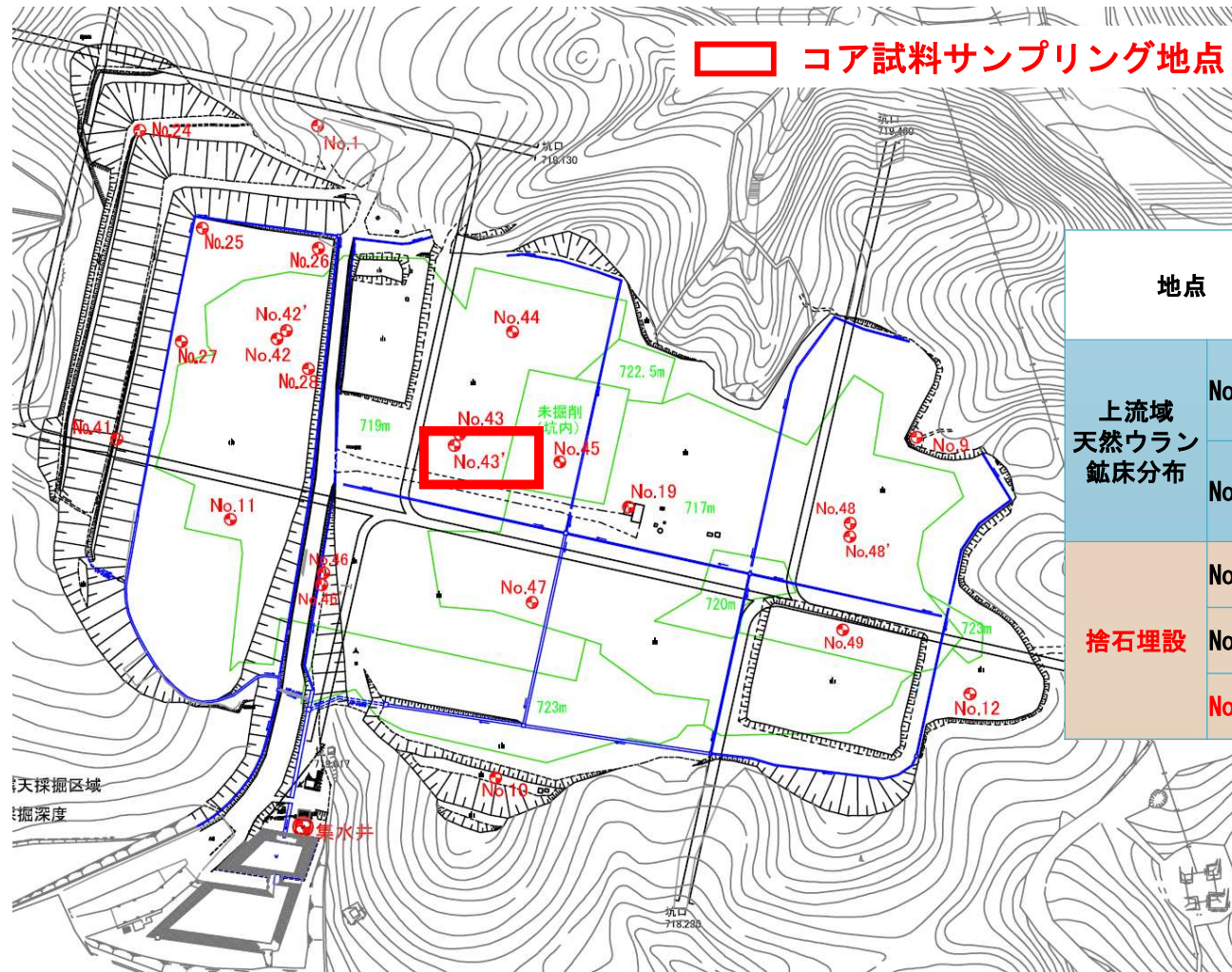
1. 露天採掘場跡地内の地下水中の Ra 物質移行解析
2. 露天採掘場跡地坑水の発生源対策
3. センター全域を含む広域の Ra 挙動の基本原理を解明する



平成 29 年度の取り組み: Ra の挙動調査・研究概要

調査・研究		方法	目的(ねらい)
1	ボーリングコア試料を用いた深度方向のラジウム及びウラン濃度の分析	・捨石分布範囲のコア (No. 43') ・ガンマ線スペクトリメトリ	露天捨石堆積エリアの Ra, U 濃度 及び Ra/U 放射能比の分布の特徴
2	Ra, U 濃度 及び Ra/U 放射能比と地質との関係	1 の結果を地質別に区分・整理する (地質項目: 岩種、含有鉱物、...)	Ra, U の挙動と地質との関係 Ra 吸着の特徴
3	Ra (Ba) のホスト相	・捨石分布範囲のコア ・放射光分析 (μ -XRF, μ -XANES, μ -XRD)	Ra のホスト相を調べる (粘土鉱物の有無)
4	Ra の分配係数の求め方 (露天の Ra 分配係数)	1 ~ 3 で判明した Ra 挙動の特徴から分配係数を求める最適な試験方法を考える	移流分散解析に用いる Ra 遅延係数 (R) の決定

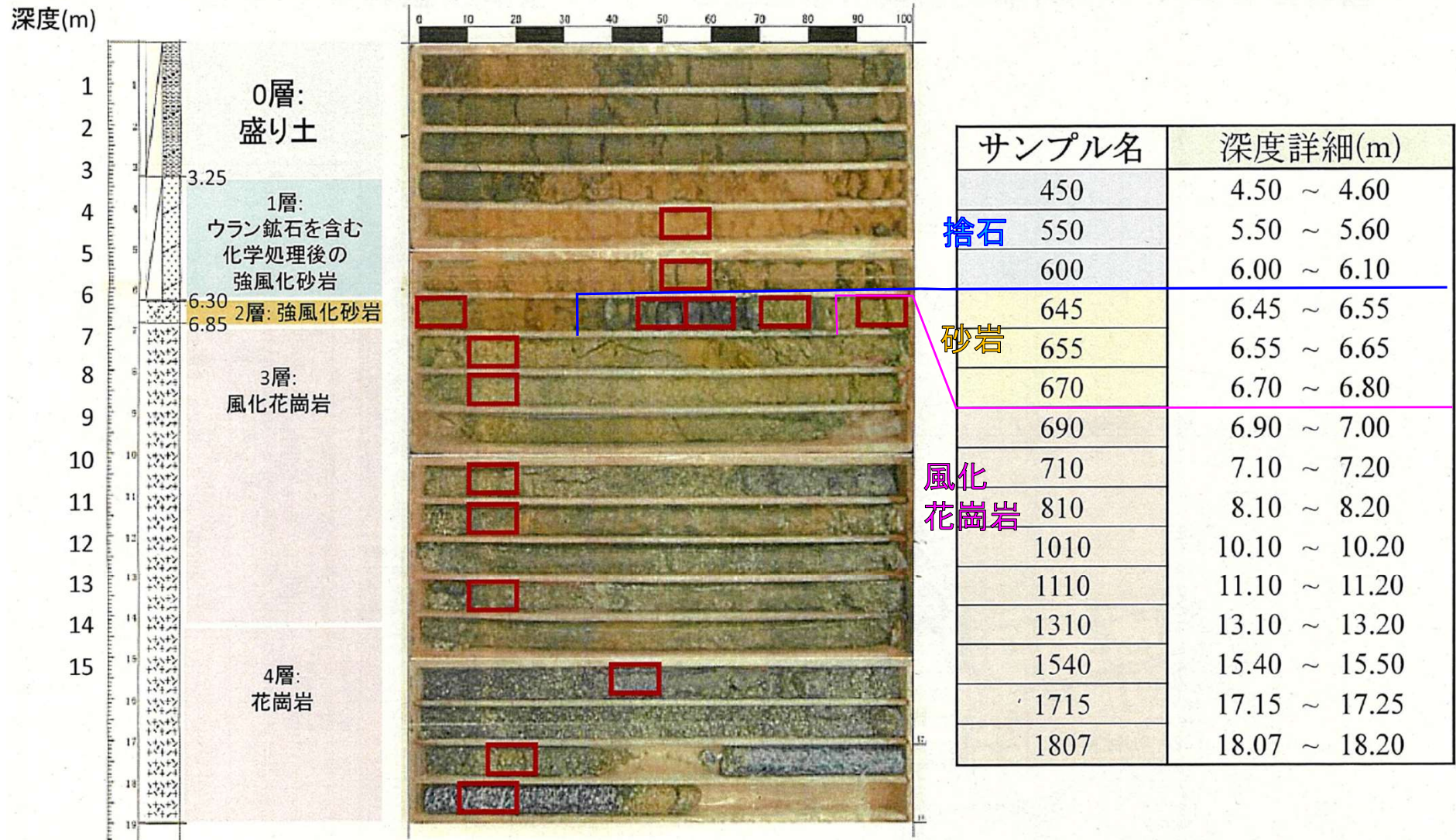
コア試料のサンプリング地点: No. 43'



地点		ボーリングコア	モニタリング孔	
			採水	採水部 (地質)
上流域 天然ウラン 鉱床分布	No. 24	●	●	オールスクリーン (堆積岩-花崗岩)
	No. 41	●	●	ウラン鉱床部
捨石埋設	No. 42	-	●	捨石部
	No. 43	-	●	捨石部
	No. 43'	●	●	風化花崗岩

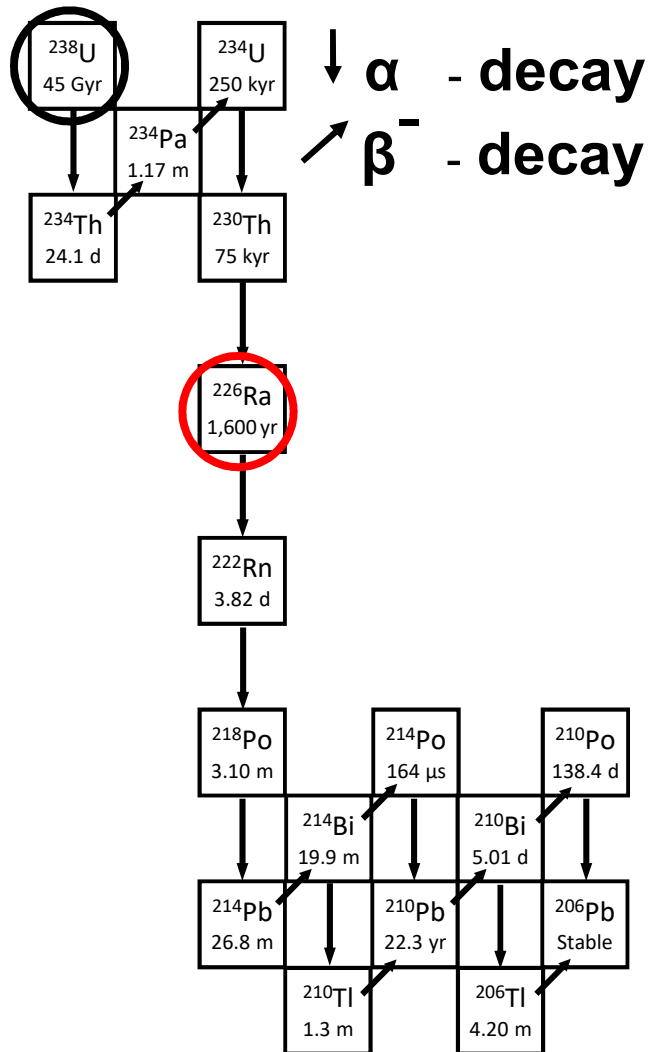
ラジウム (Ra) の挙動に関する研究 (委託研究)
 東京大学大学院理学系研究科 高橋嘉夫、栗原雄一、山口瑛子

コア No. 43' 試料



コア No. 43' は、盛り土、捨石層、砂礫岩層及び強・弱風化花崗岩層からなる。
 → 捨石層及び砂礫岩層から各 3 試料、強・弱風化花崗岩層から 9 試料を採取

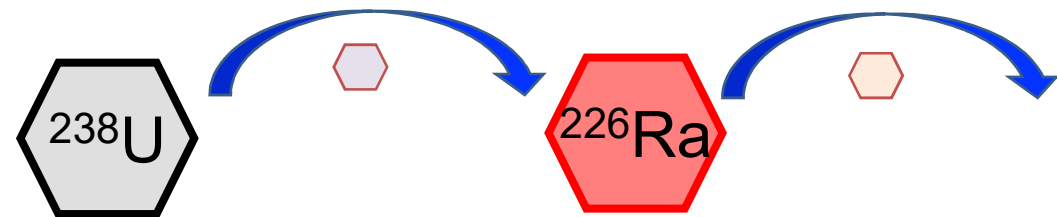
ウラン系列核種間の放射平衡の関係



ウラン系列

T: 半減期; λ : 放射定数 (= ln2/T)
 N: 原子の数 A: 放射能 (= -dN/dt)

元素の移行等がない場合、半減期の10倍以上の時間が経過すると放射平衡に達する



放射平衡に至ると、以下の式が成り立つ

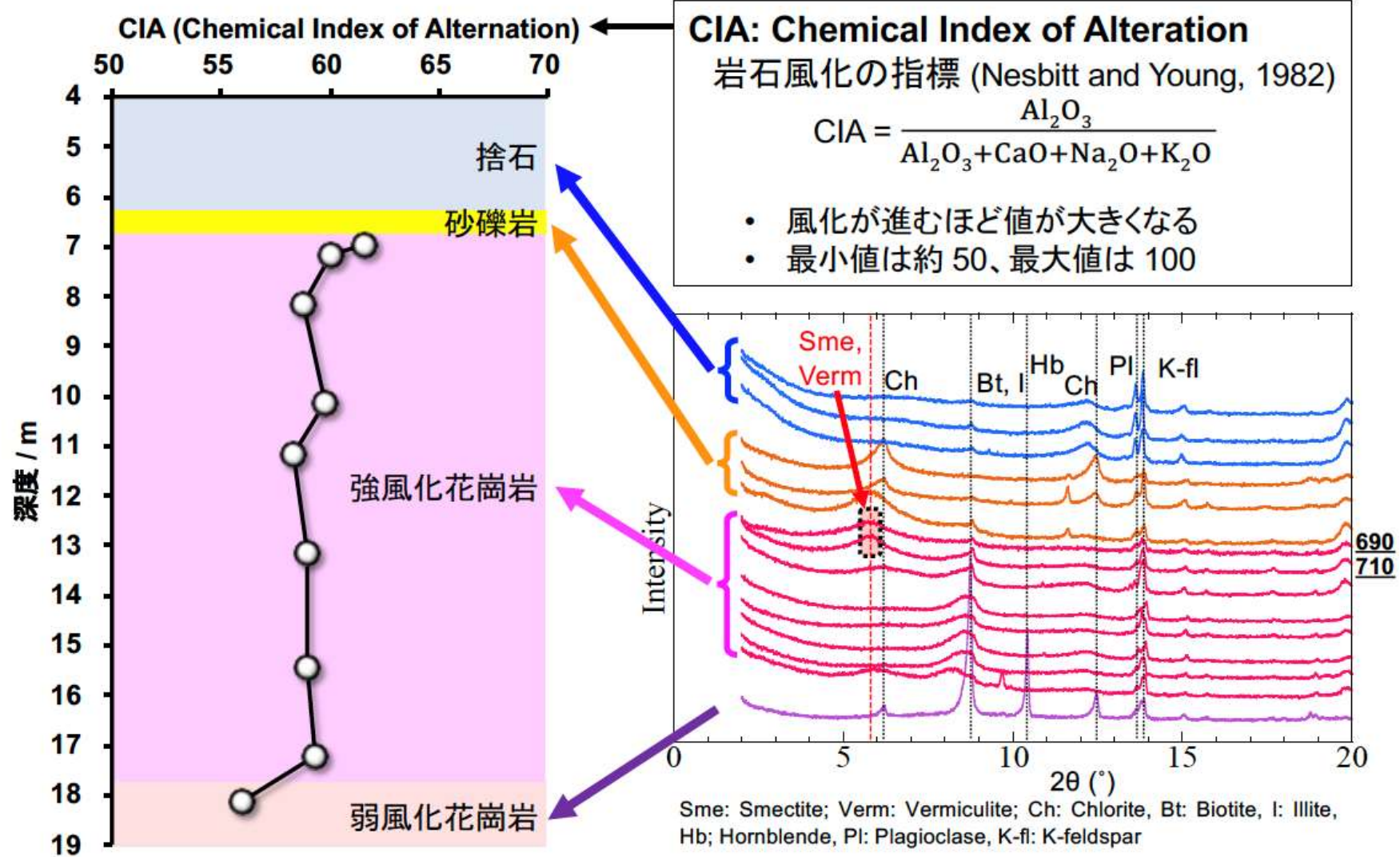
$$\lambda(U) N(^{238}\text{U}) = \lambda(\text{Ra}) N(^{226}\text{Ra})$$

変形すると

$$A(^{226}\text{Ra}) / A(^{238}\text{U}) = 1$$

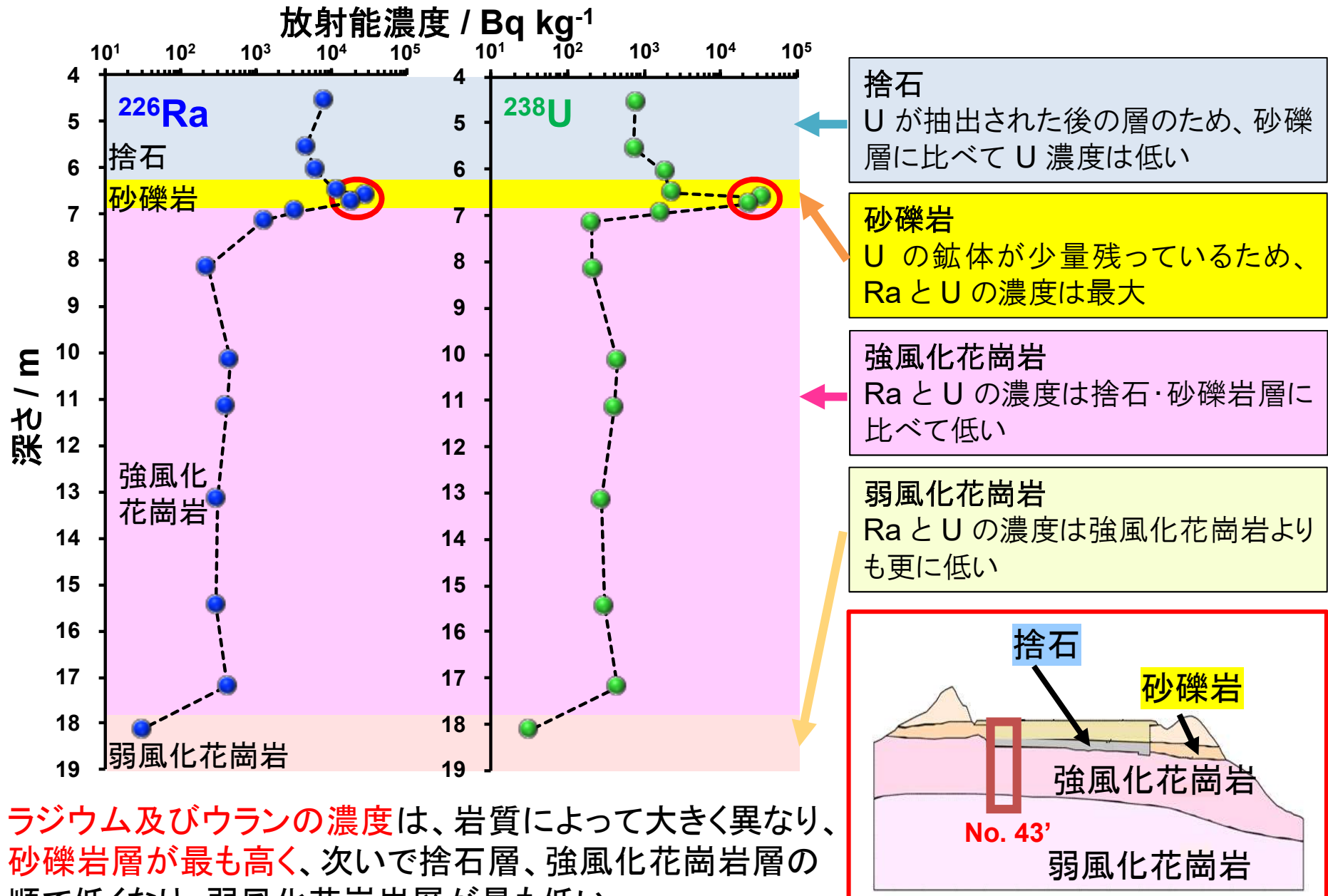
したがって $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ の放射能比は 1 になる
 = 半減期の10倍の時間、元素の移動がない

コア No. 43': 蛍光 X 線分析と X 線回折分析



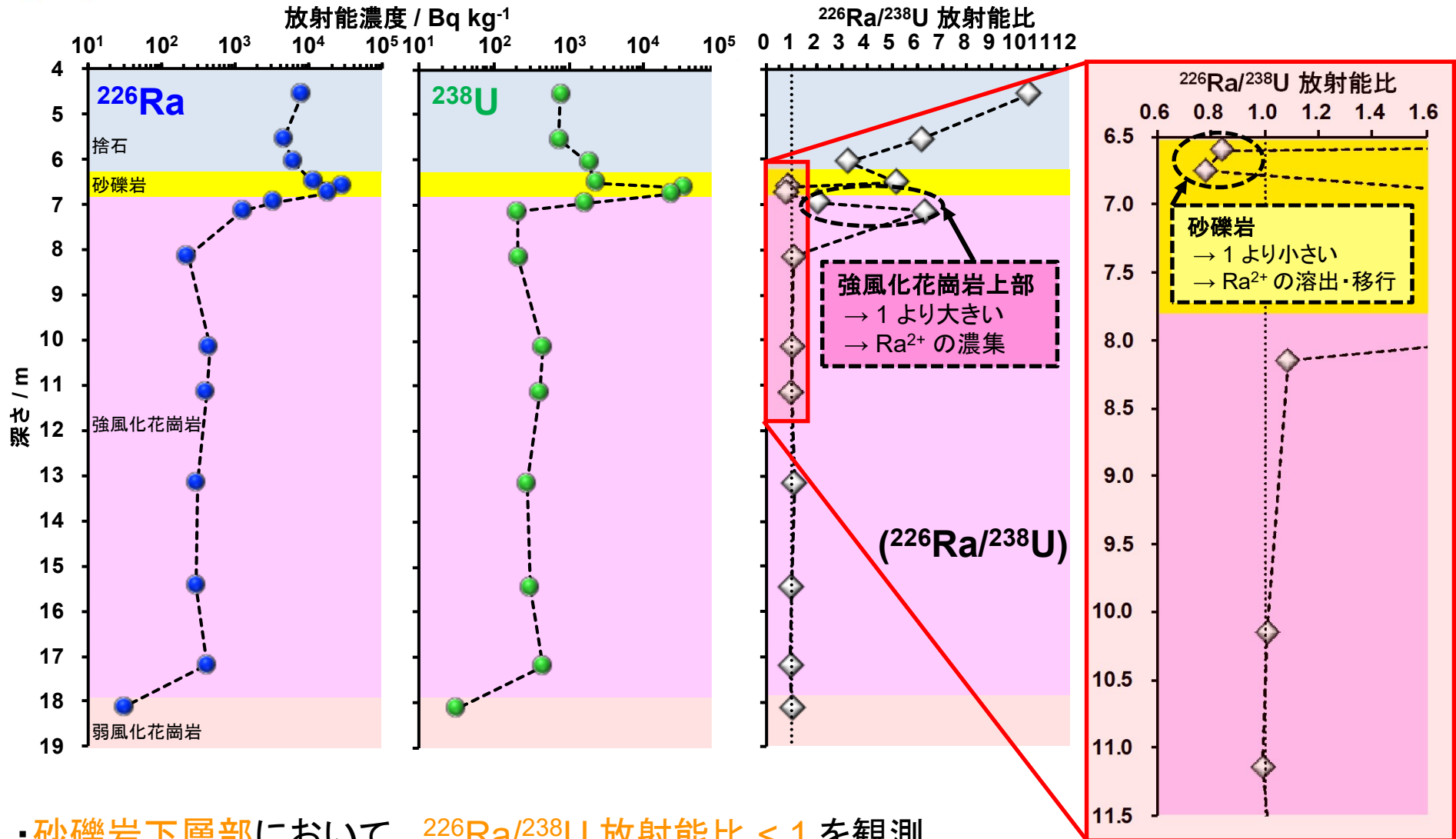
- ・CIA の値は、強風化花崗岩の上層部が最も高く、最下層の弱風化花崗岩が最も低い
 → 深度が浅くなるにつれて風化が進むことと合致 (風化によって粘土鉱物が生成)
- ・X 線回折図形より、強風化花崗岩の上層部 (690 及び 710) で粘土鉱物のピークを確認

コア No. 43': Ra-226 と U-238 の放射能濃度



ラジウム及びウランの濃度は、岩質によって大きく異なり、砂礫岩層が最も高く、次いで捨石層、強風化花崗岩層の順で低くなり、弱風化花崗岩層が最も低い。

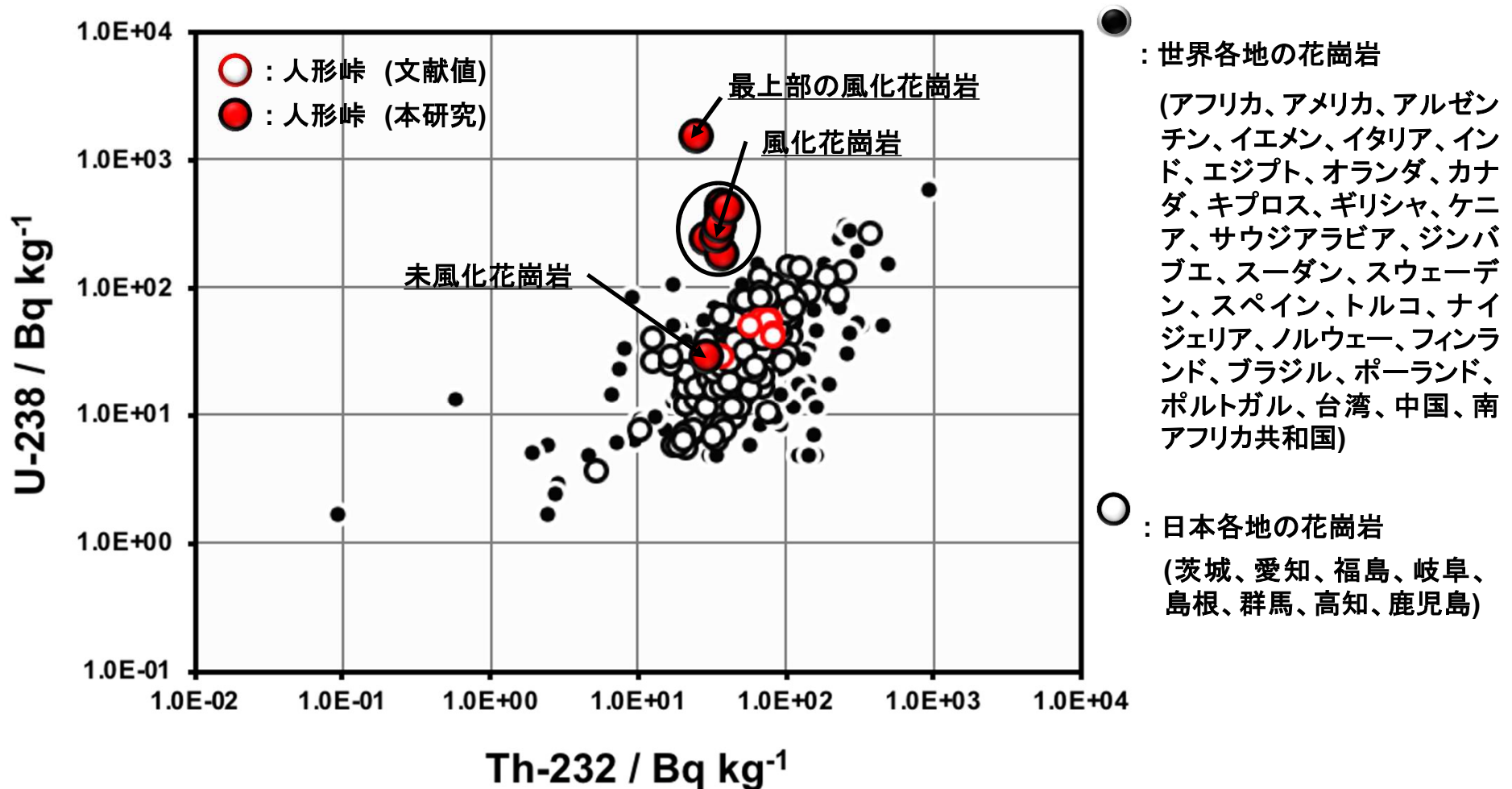
コア No. 43': Ra・U 濃度及び ($^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$) 放射能比



- ・砂礫岩下層部において、 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 放射能比 < 1 を観測
- ・強風化花崗岩上層部において、 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 放射能比 > 1 を観測

→ 砂礫岩層から溶出した ^{226}Ra が下方へ移行し、強風化花崗岩上層部に濃集している。

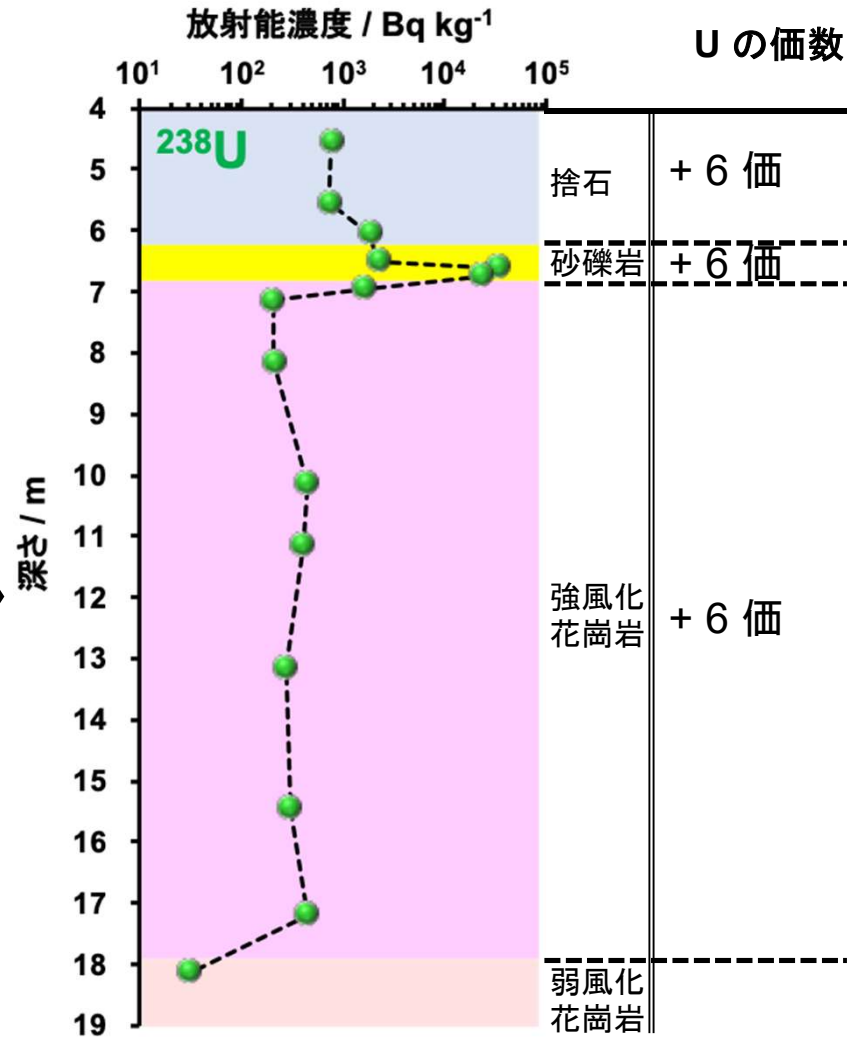
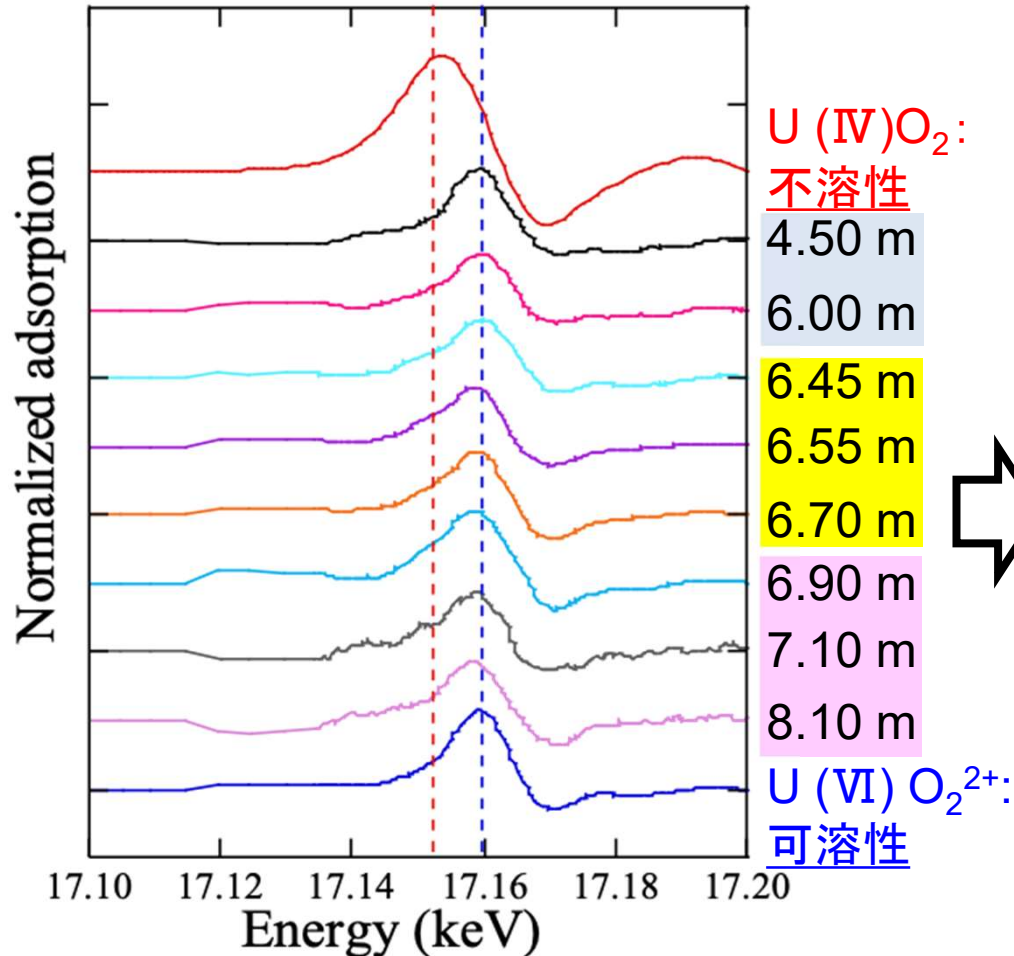
世界各地及び日本国内の花崗岩中の U・Th 濃度との比較



世界各地及び日本国内の花崗岩中のウラン・トリウム濃度と比較すると、コア No. 43' の強風化花崗岩中の U 濃度は、同じ Th 濃度において**顕著に高い**。

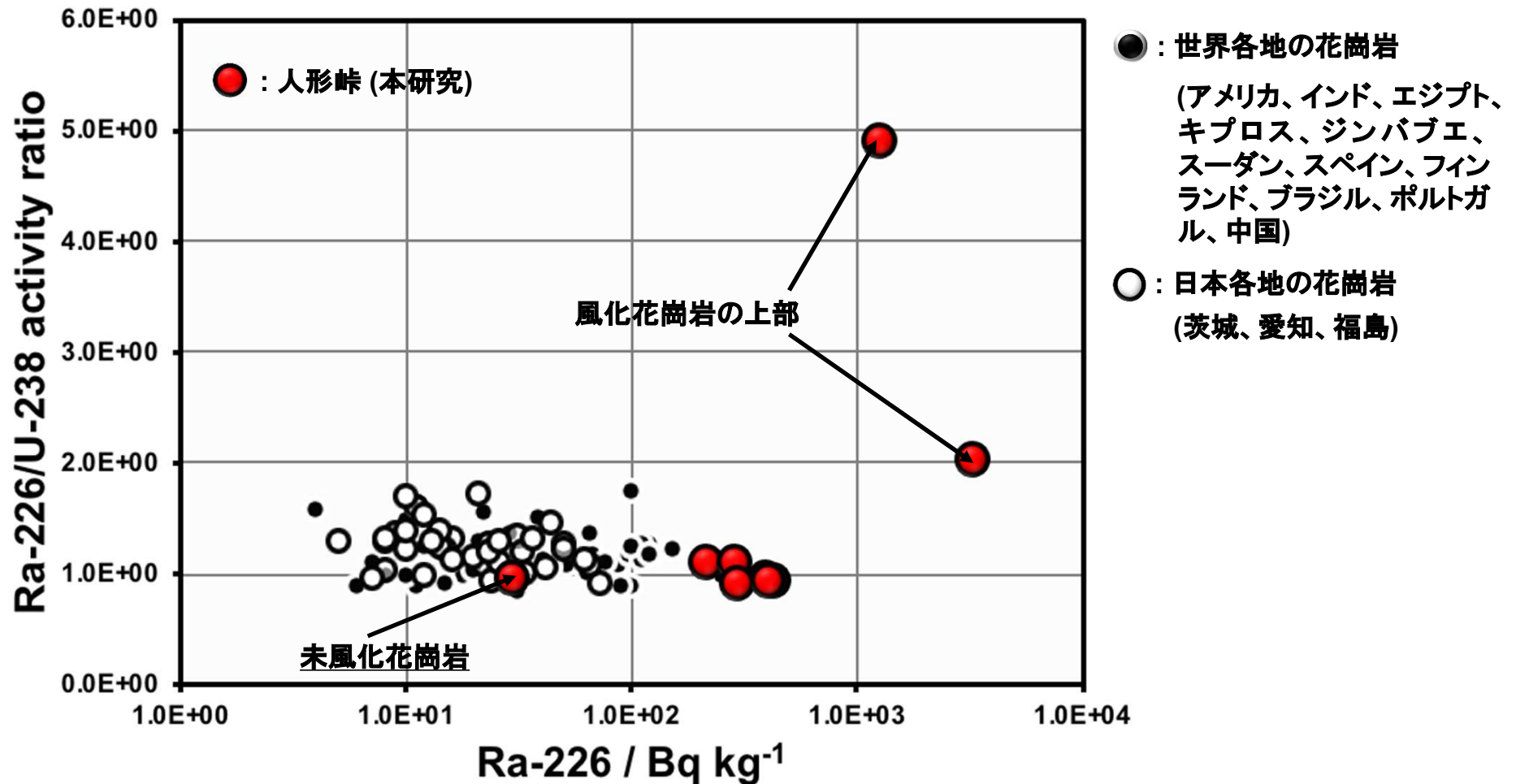
コア No. 43' 試料: ウランの化学状態

U の L_{III} 吸収端 XANES の微分



捨石・砂礫岩・強風化花崗岩層 (上部) 中のウランの価数は、概ね + 6 価
 → コア No. 43' 中のウランは可溶性で動き易い状態にあると考えられる。

世界各地及び日本国内の花崗岩中の ^{226}Ra 濃度と $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比との比較

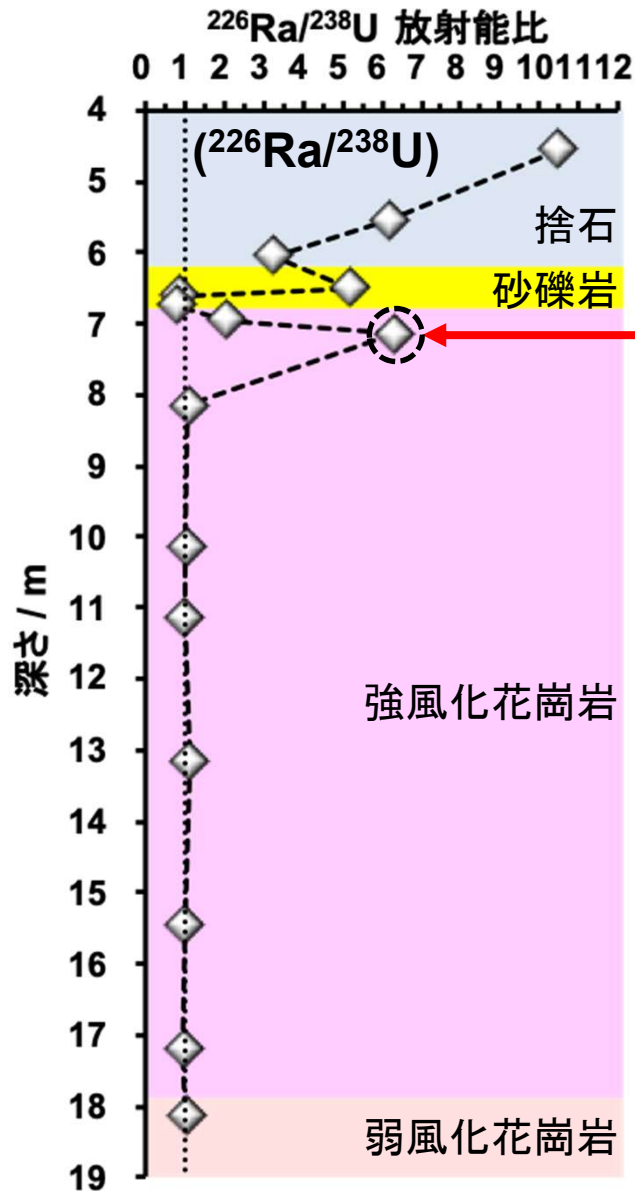


世界各地及び日本国内の花崗岩中の $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比は ^{226}Ra 濃度との相関はなく 1 ~ 2 の範囲にあり、人形峠の未風化花崗岩もその範囲に入る。

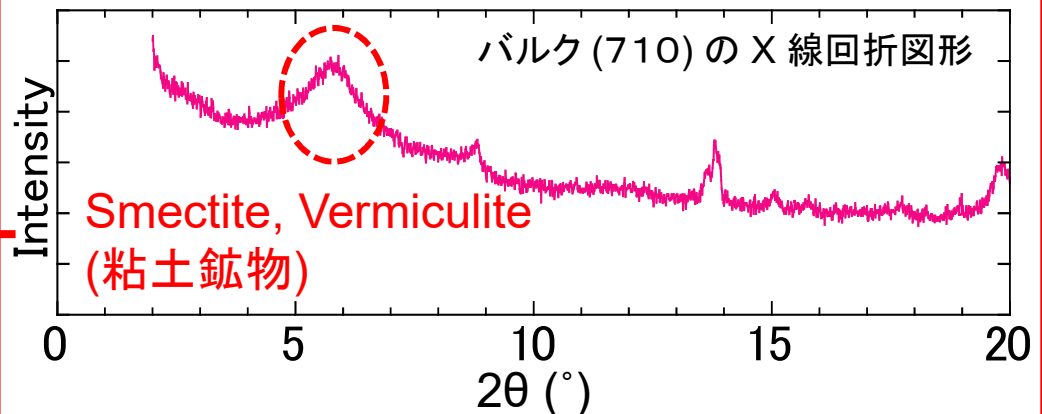
コア No. 43' の強風化花崗岩中の ^{226}Ra 濃度は高く、上部は顕著に高い $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比を示す。

ラジウムのホスト相の推定

~風化花崗岩上部層でラジウムを固定している相は？~



$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比が 1 よりも高い試料に着目



Ba をアナログとした SR- μ -XRF-XANES-XRD

Ba²⁺ は Ra²⁺ のアナログとして使用される

- ・ 共にアルカリ土類金属であり、同様の挙動を示す
(Vargers, et al., 1997; Yoshida and Kitamura, 2009, ほか多数)

例) 炭酸塩の溶解度積 Ksp (log Ksp)

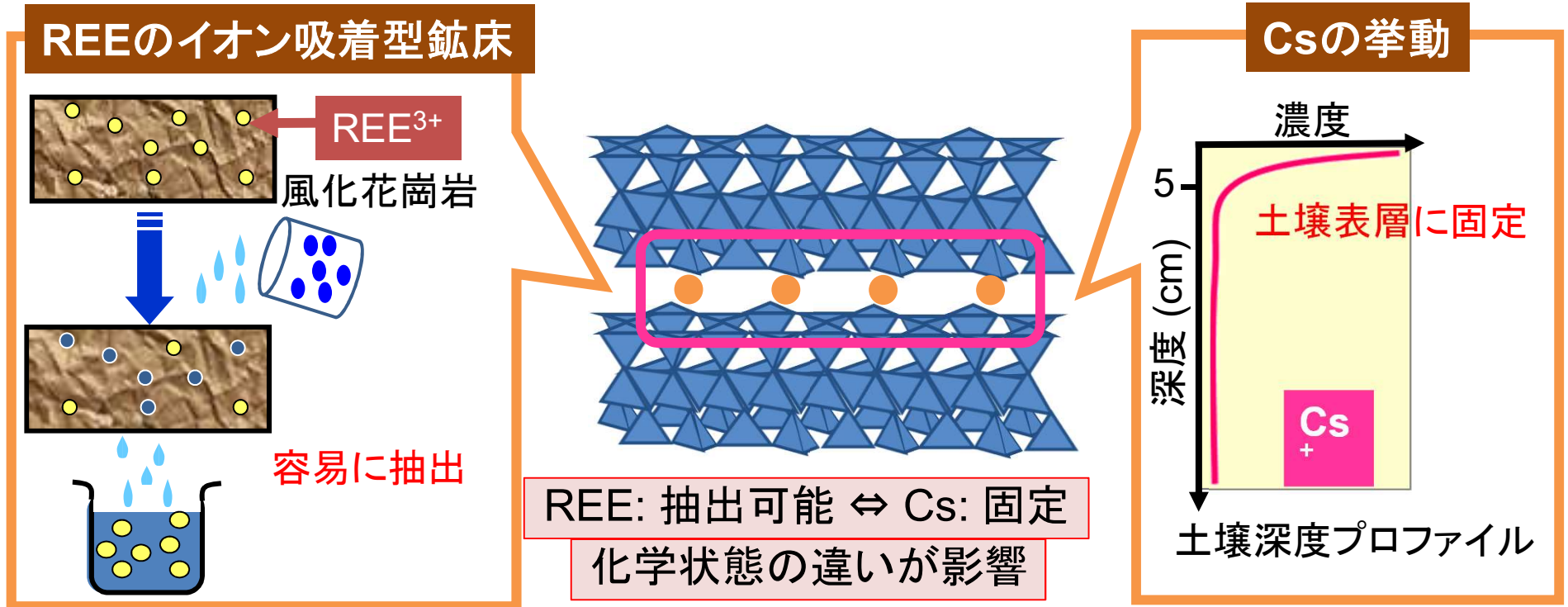
SrCO₃: -9.27

BaCO₃: -8.57

RaCO₃: -8.30

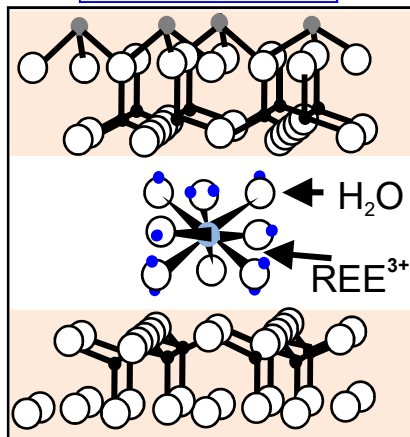
(Langmuir and Riese, 1985; Smith et al., 2003; Jaremalm and Lidman, 2013)

2:1 型粘土鉱物への陽イオンの吸着反応



外圏錯体

(Takahashi et al., 1998)



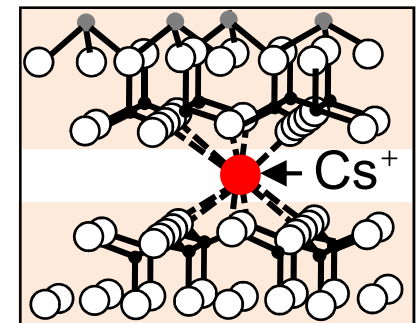
水和した状態で吸着
→ 脱着しやすい

SiO₂層と相互作用
→ 脱着しにくい

同じ粘土鉱物への吸着反応でも
イオンによって化学状態が異なり、
その結果天然での現象も異なる。

内圏錯体

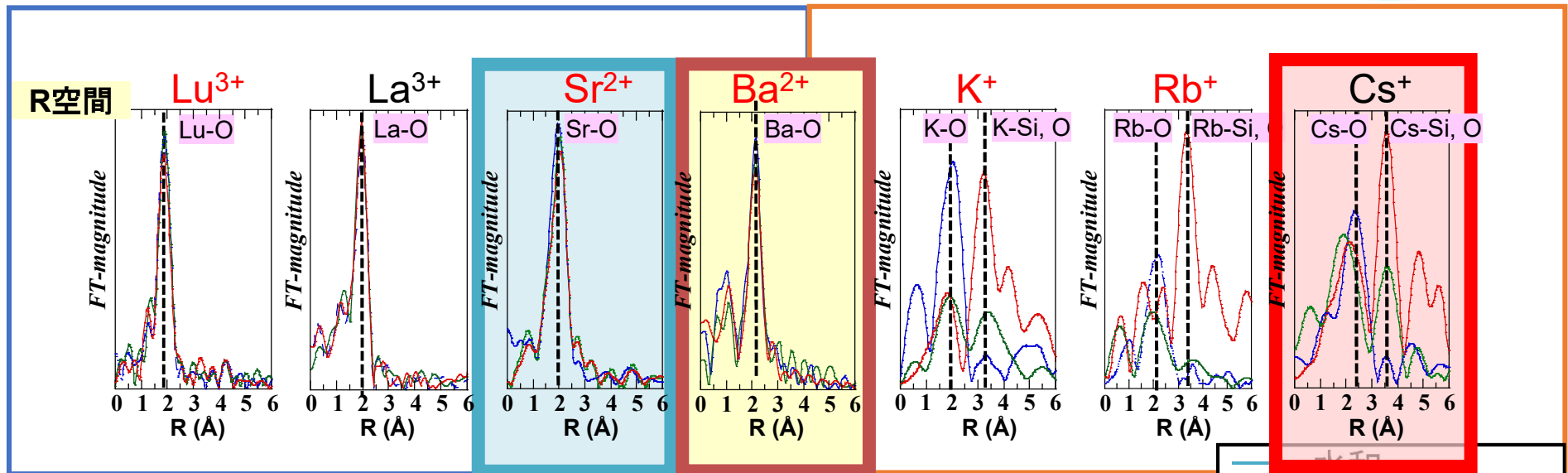
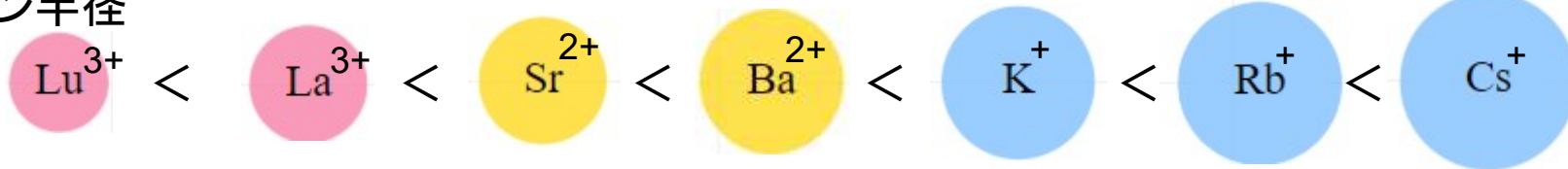
(Qin et al., 2012; Yamaguchi et al., 2018)



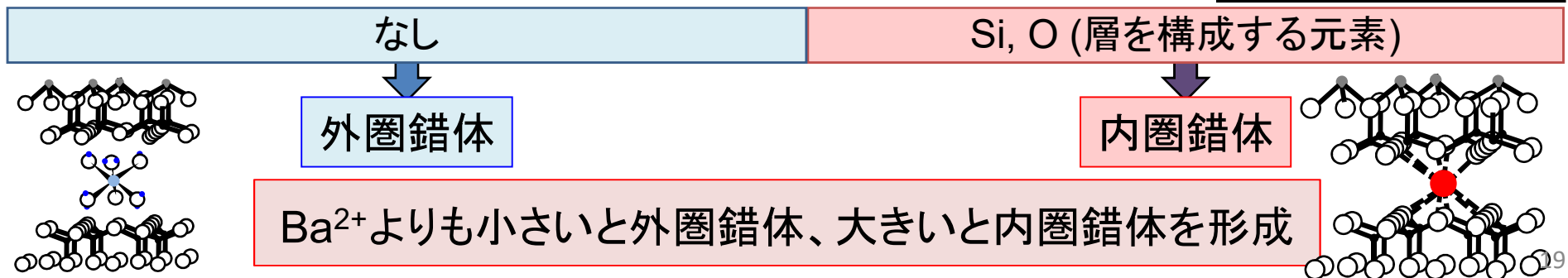
様々なイオンの吸着構造 (EXAFS)

広域X線吸収微細構造 (EXAFS): 粘土鉱物の層間イオンの局所構造を解明できる

* イオン半径

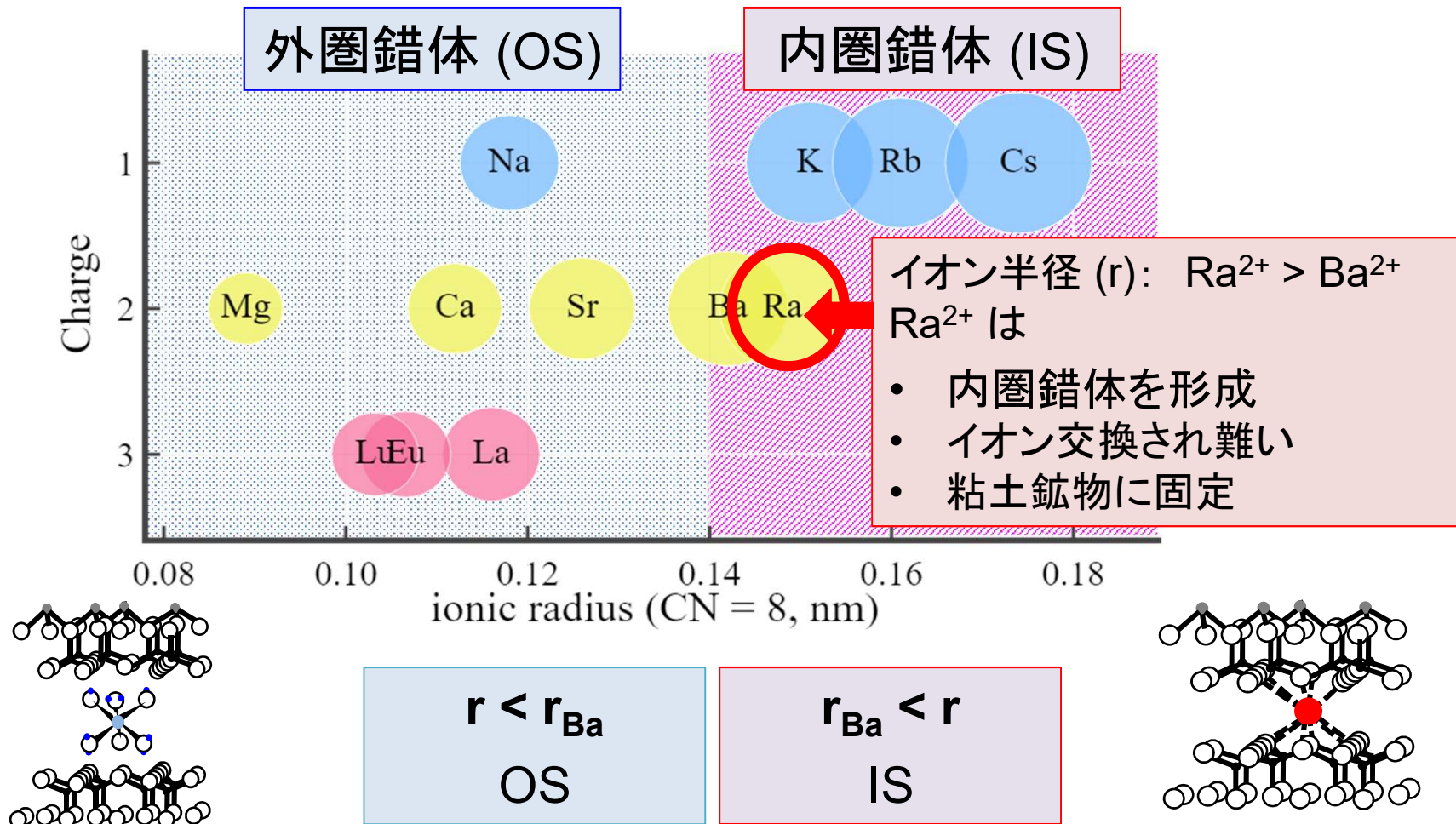


* 第二近接の元素

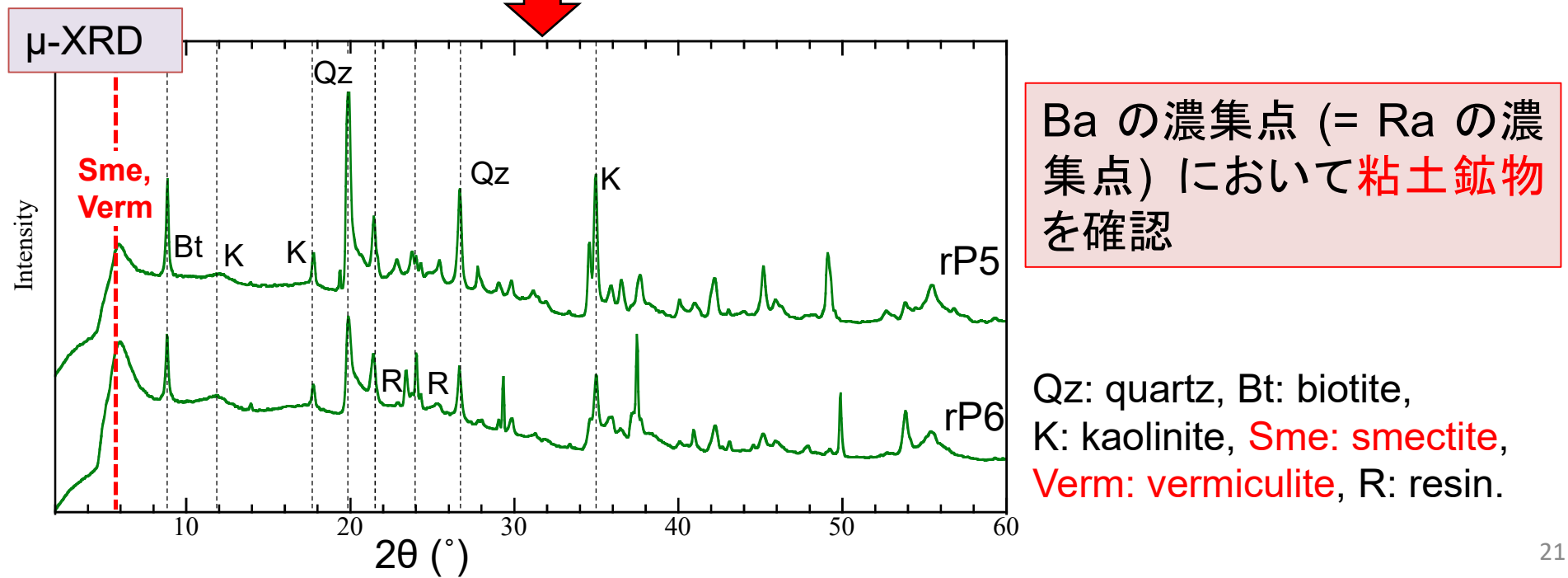
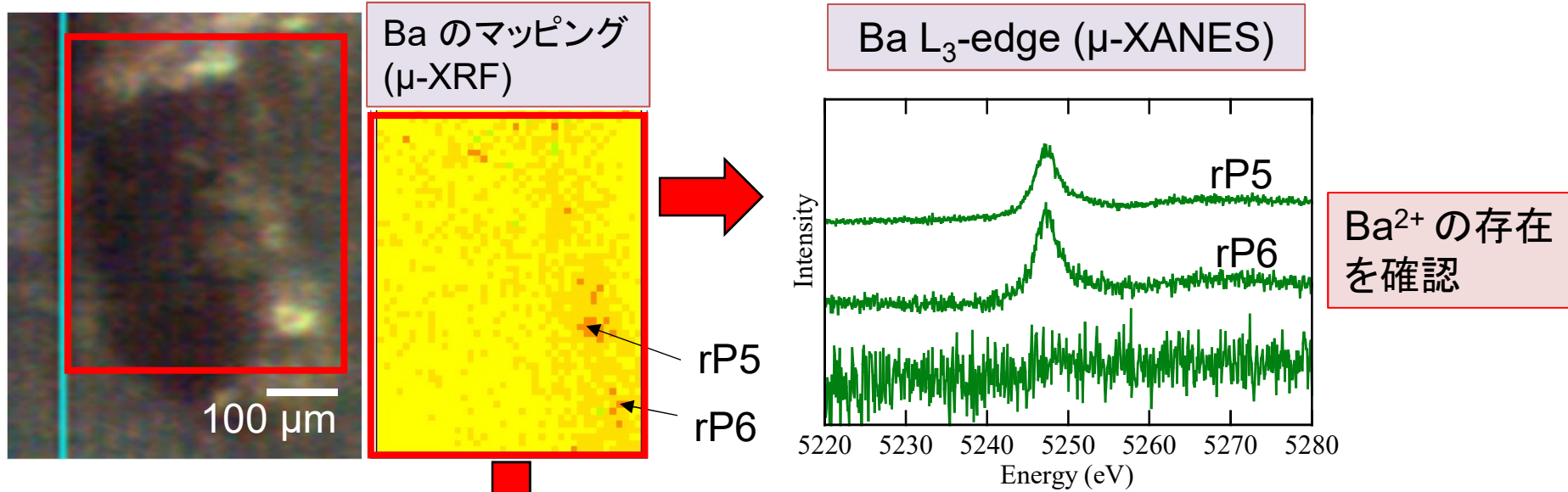


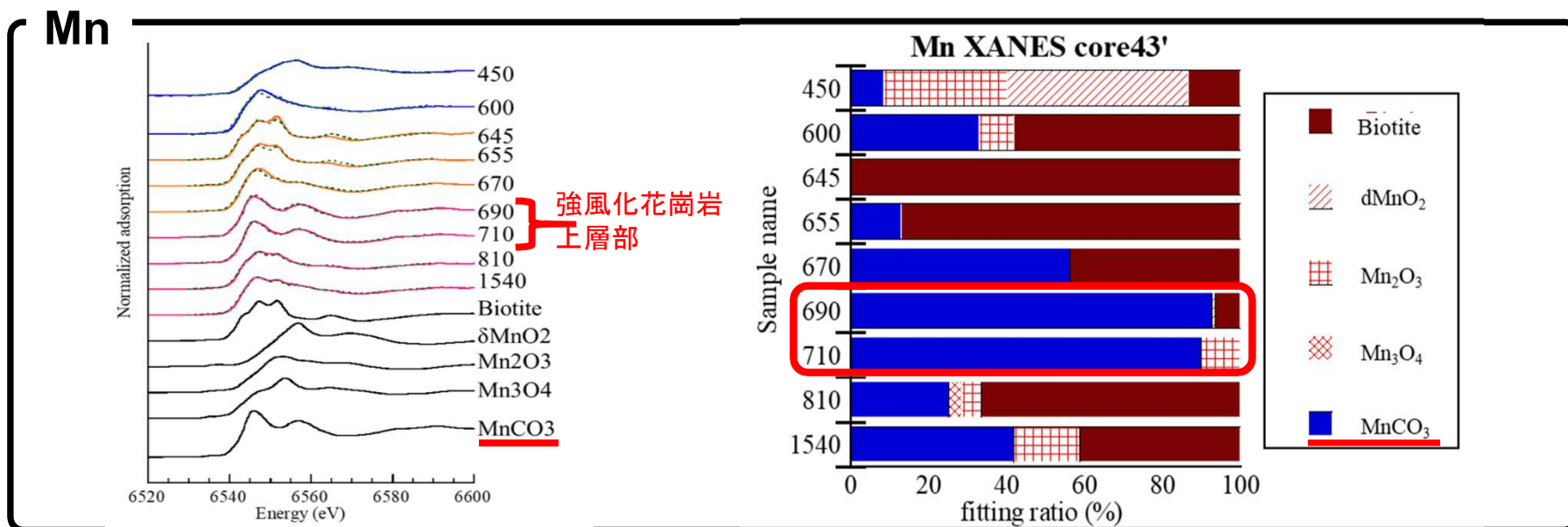
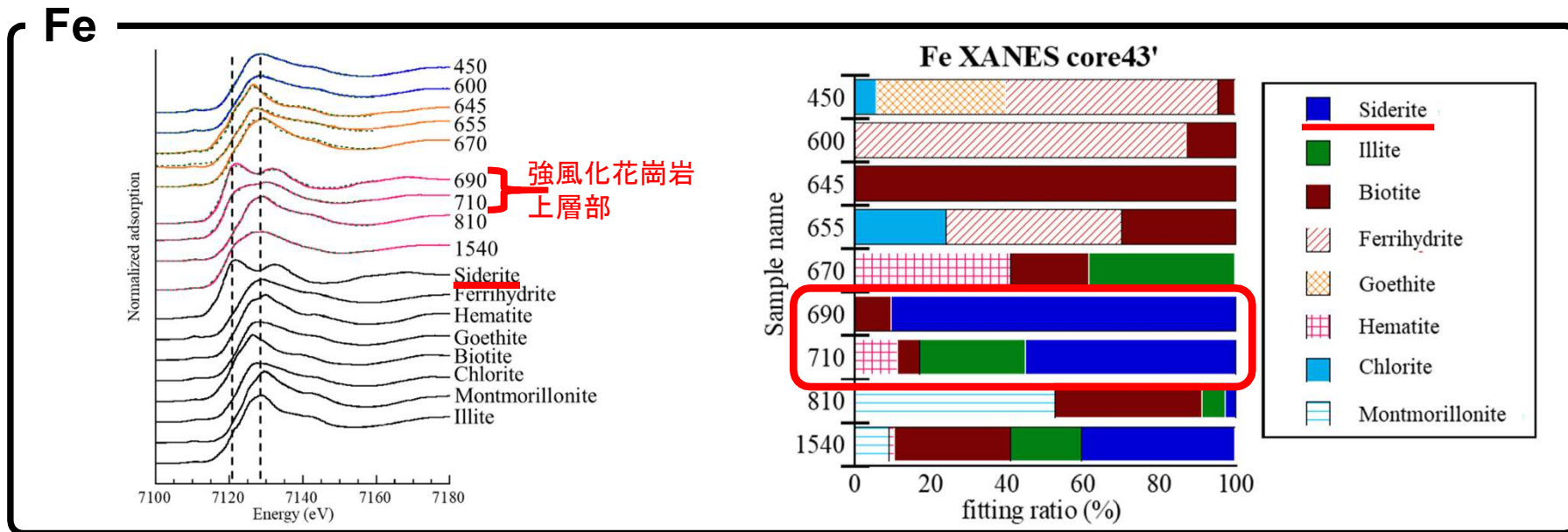
粘土鉱物への吸着反応と表面錯体

山口らの理論により、 Ra^{2+} の挙動を予測



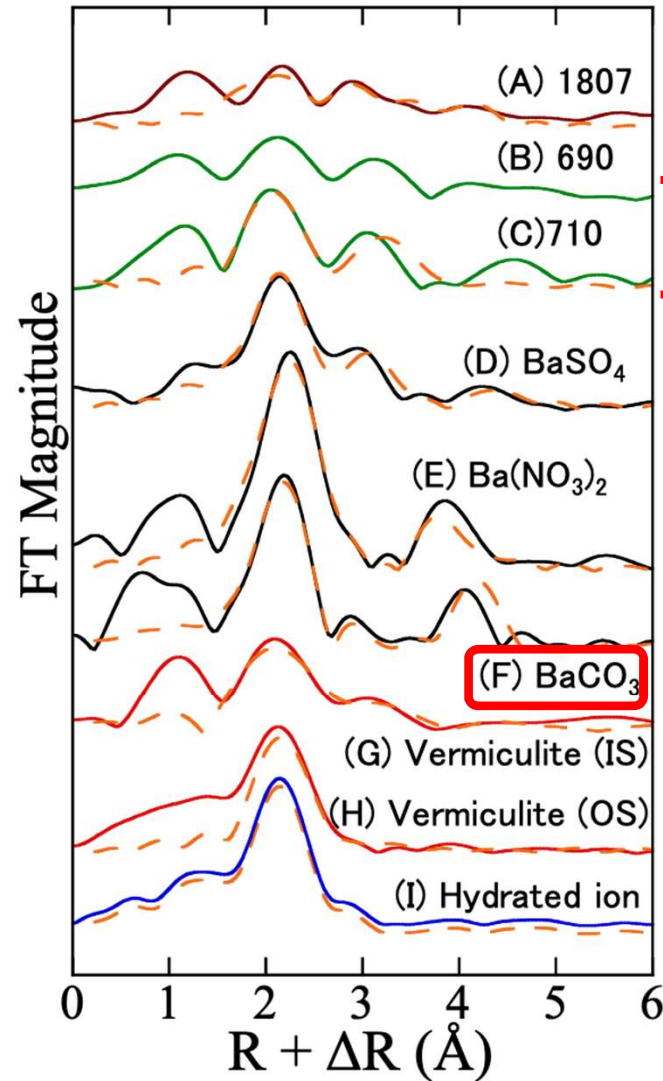
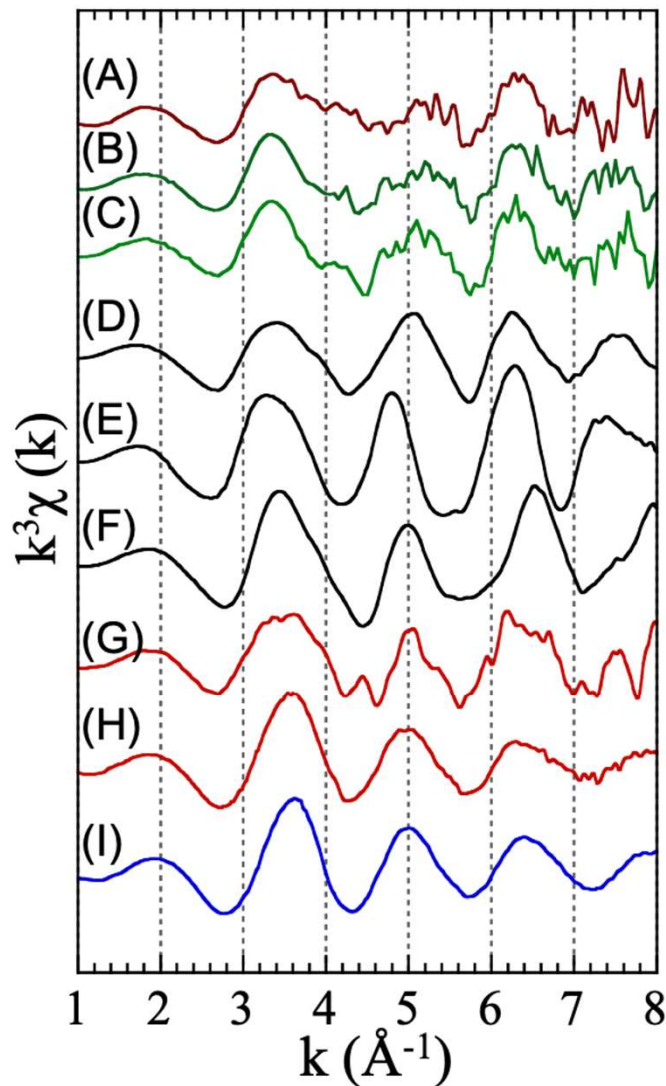
Core 43' (690): SR- μ -XRF-XANES-XRD





Fe・Mn について、強風化花崗岩上層部 (690 & 710) は炭酸塩が大半を占める。

コア No. 43' (690 & 710): SR- μ -XANES (バリウム)



強風化花崗岩
上層部

強風化花崗岩上層部 (690 & 710) のバリウム (Ba) は炭酸塩ではない
 → したがって、ラジウム (Ra) が炭酸塩として濃集している可能性は低い。²³



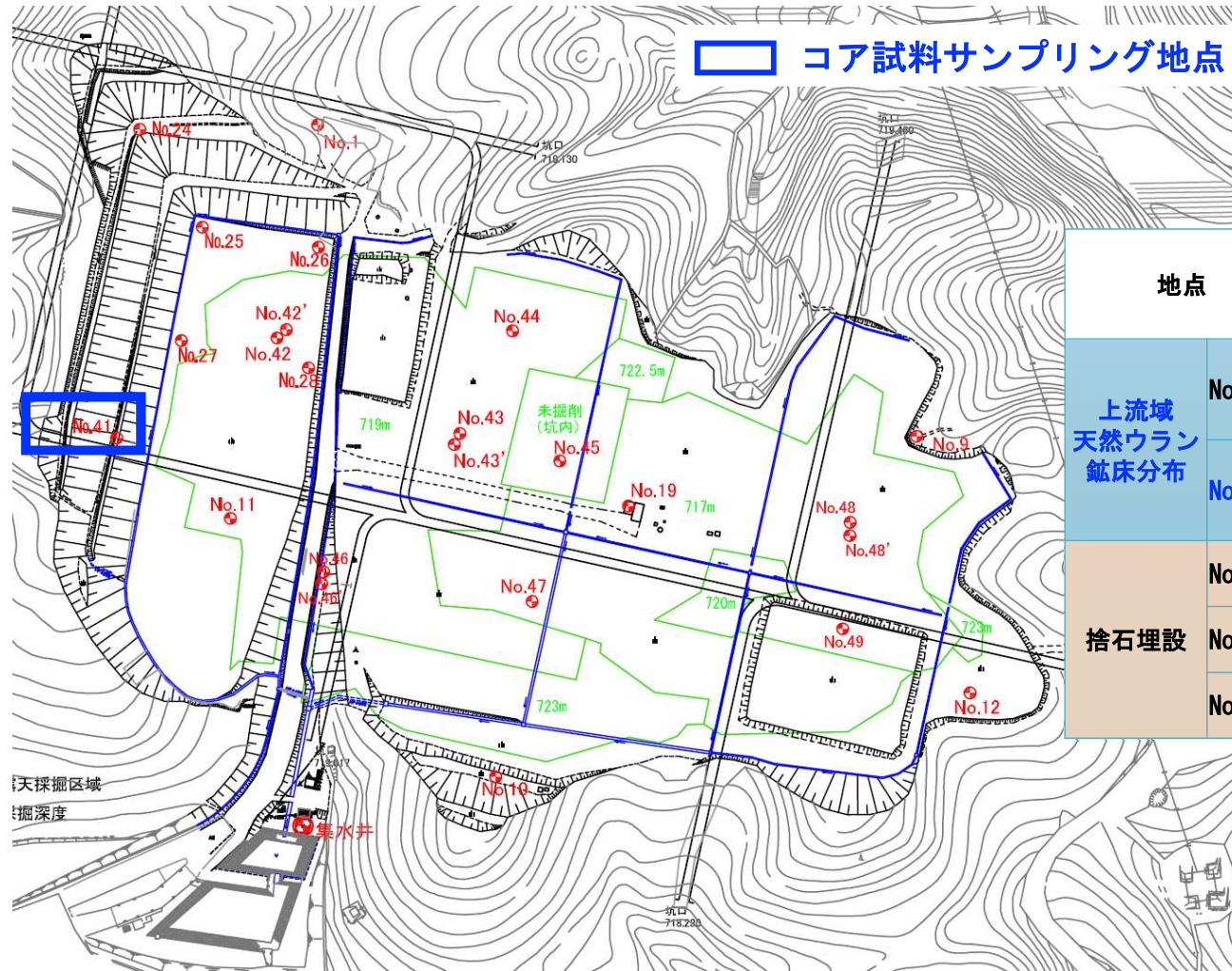
露天採掘場跡地のラジウム (Ra) の挙動に関する研究 コア試料を用いた Ra の挙動調査・研究概要 (平成 30 年度)

調査・研究		方法	目的(ねらい)
1	ボーリング試料を用いた深度方向の Ra 及び U 濃度分析	ウラン鉱床未掘削コア (No. 41) を用いて捨石分布範囲のコアの結果比較する	露天捨石堆積エリアと自然地山とのRa濃度の分布の特徴を調べる
2	Ra 及び U 濃度と地質との関係	1 の結果を地質別に区分・整理する (地質項目:岩種、含有鉱物、…)	Ra, U の挙動と地質との関係 Ra 吸着の特徴
3	モニタリング孔の水試料を用いた深度方向の Ra 及び U 濃度分析	捨石分布範囲及びウラン鉱床未掘削のモニタリング孔の水試料を用いて比較する	Ra/U 比がコア試料中の値と異なるかどうかを調べる (水中Ra/U 比の方が低いと予想)
4	Ra の分配係数 (露天の Ra 分配係数)	これまでに判明した Ra 挙動の特徴から分配係数を求める最適な試験方法を考え、実際に試験を行う	移流分散解析に用いる Ra 遅延係数 (R) の決定
5	Ra の固液分配の考察	これまでに判明した Ra 挙動の特徴から固液分配を再考察する	天然系でも露天と同じ Ra 挙動が起きているかの確認



ウラン鉱床未掘削コアのボーリング試料 (No. 41) を用いた深度方向の Ra 及び U 濃度分析

コア試料のサンプリング地点: No. 41

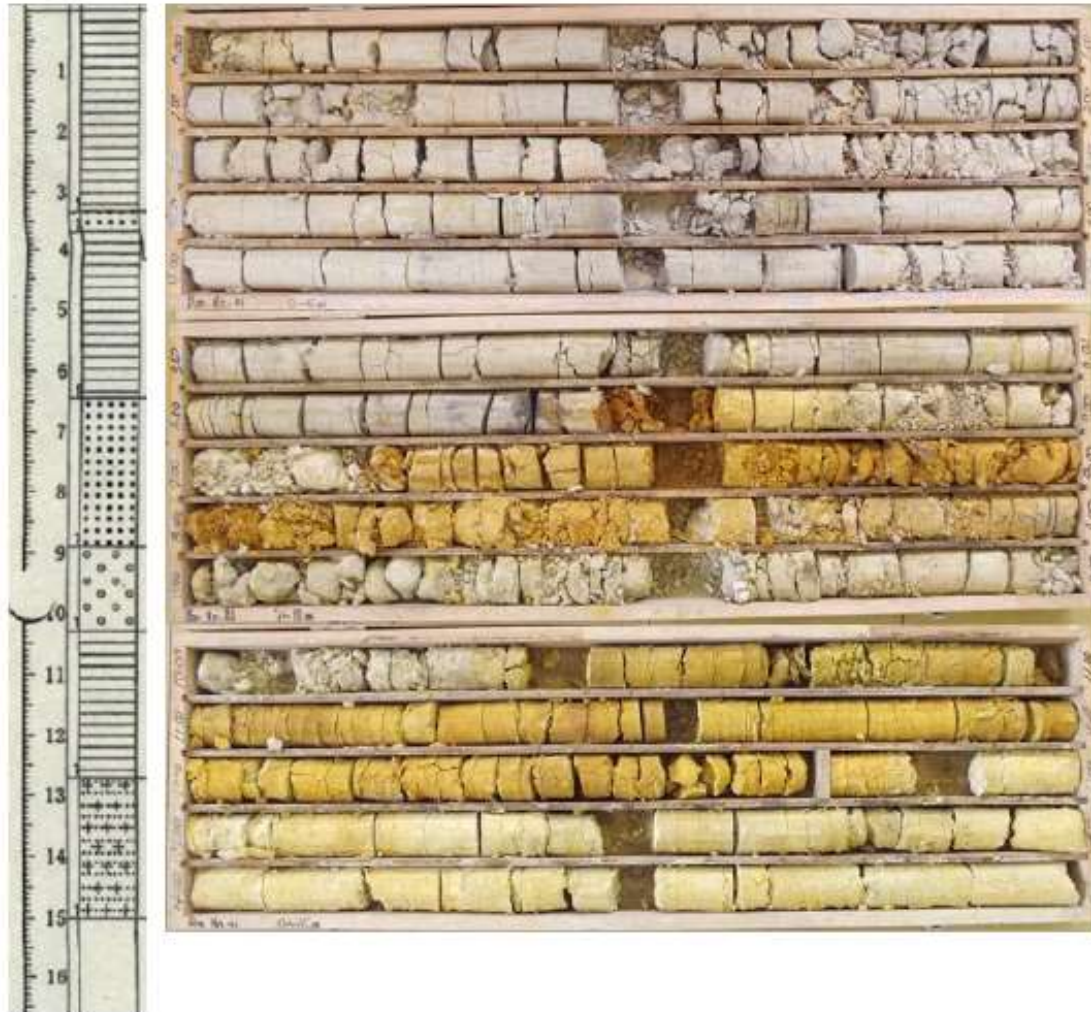


地点	ボーリングコア	モニタリング孔	
		採水	採水部 (地質)
上流域 天然ウラン 鉱床分布	No. 24	●	● オールスクリーン (堆積岩-花崗岩)
	No. 41	●	● ウラン鉱床部
捨石埋設	No. 42	-	● 捨石部
	No. 43	-	● 捨石部
	No. 43'	●	● 風化花崗岩

ラジウム (Ra) の挙動に関する研究 (委託研究)
 東京大学大学院理学系研究科 高橋嘉夫、栗原雄一、山口瑛子

コア No. 41 試料

深度 (m)

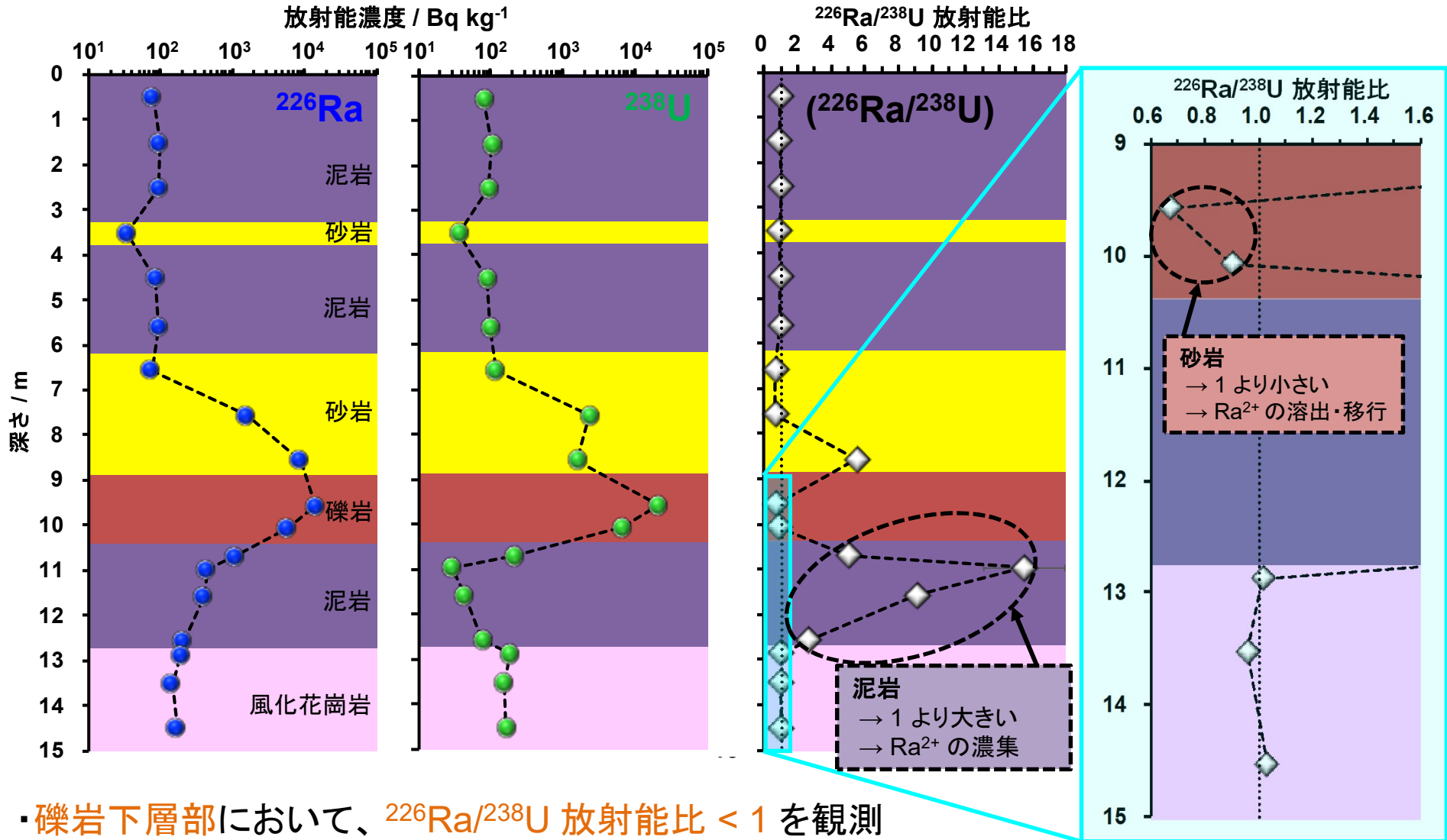


Sample name	Rock type	深度詳細(m)
50		0.50 ~ 0.55
150	泥岩	1.50 ~ 1.55
250		2.50 ~ 2.55
350	砂岩	3.50 ~ 3.55
450	泥岩	4.50 ~ 4.55
555		5.60 ~ 5.65
655		6.55 ~ 6.60
755	砂岩	7.55 ~ 7.60
855		8.55 ~ 8.60
955	礫岩	9.55 ~ 9.60
1005		10.05 ~ 10.10
1040		10.40 ~ 11.00
1095	泥岩	10.95 ~ 11.00
1155		11.55 ~ 11.60
1255		12.55 ~ 12.60
1285		12.85 ~ 12.90
1350	風化花崗岩	13.50 ~ 13.55
1450		14.50 ~ 14.55

コア No. 41 は、泥岩層、砂・礫岩層及び風化花崗岩層からなる。

→泥岩層から 9 試料、砂・礫岩層 6 試料及び風化花崗岩層から 3 試料を採取

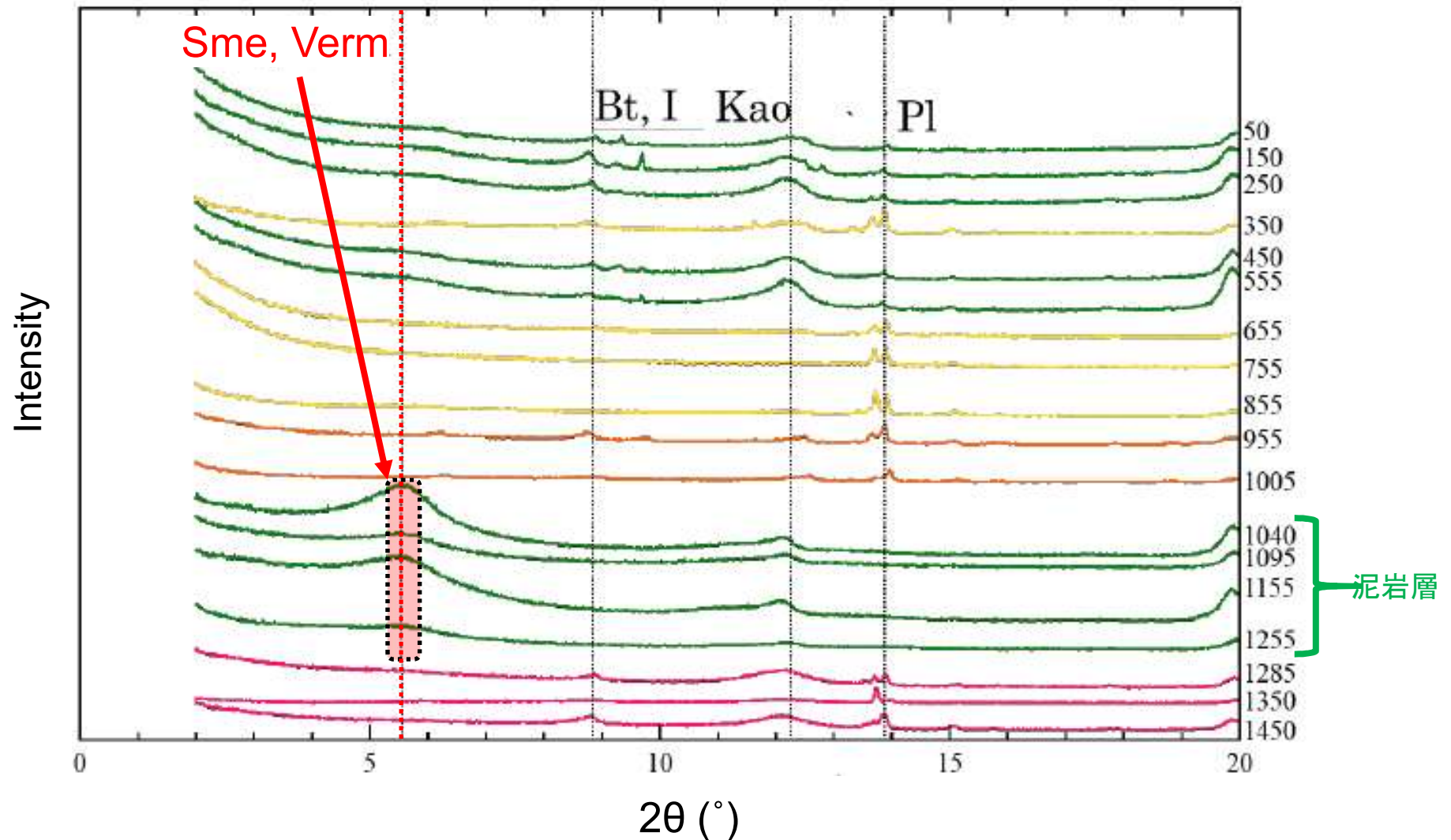
コア No. 41: Ra・U 濃度及び ($^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$) 放射能比



- ・礫岩下層部において、 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 放射能比 < 1 を観測
- ・泥岩層において、 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 放射能比 > 1 を観測

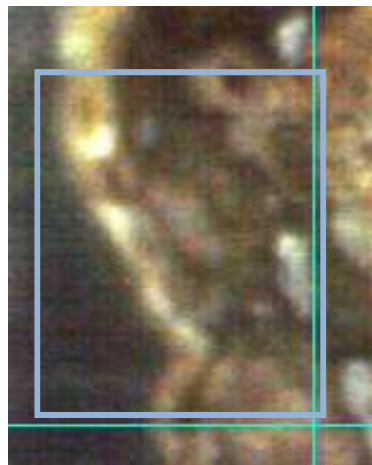
→ 礫岩層から溶出した ^{226}Ra が下方へ移行し、泥岩層に濃集している。

コア No. 41: X 線回折分析 (XRD)

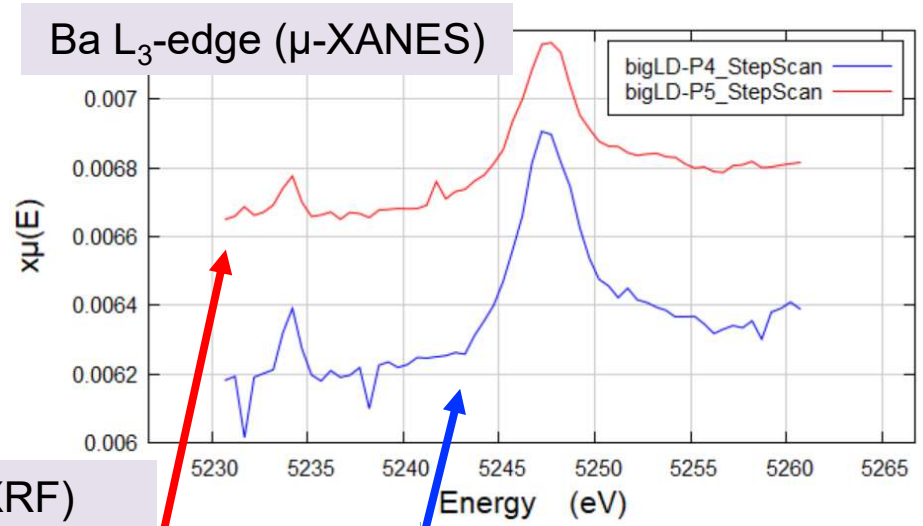


X 線回折図形より、コア No. 41 においても、コア No. 43' と同様、 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 放射能比 > 1 の試料 (礫岩層の下の泥岩層) において、粘土鉱物のピークを確認

Core 41 (1225): SR- μ -XRF-XANES-XRD

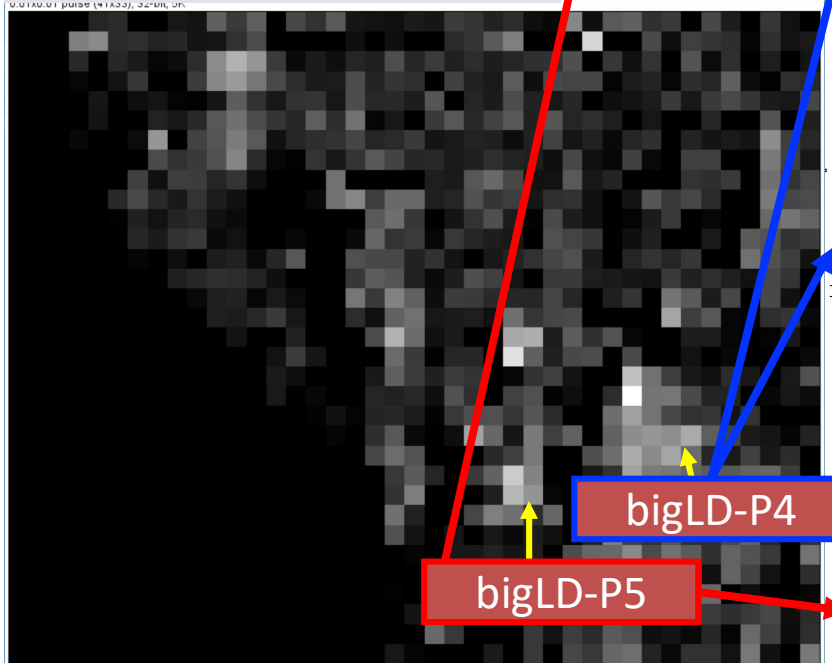


Ba のマッピング (μ -XRF)

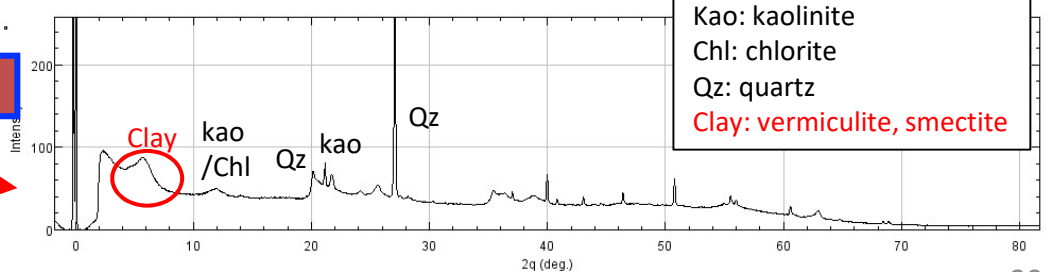
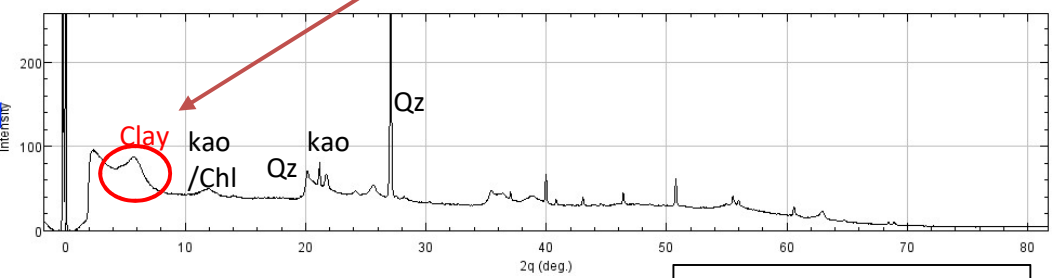


Ba²⁺ の存在を確認

Ba の濃集点 (= Ra の濃集点) において 粘土鉱物を確認



μ -XRD

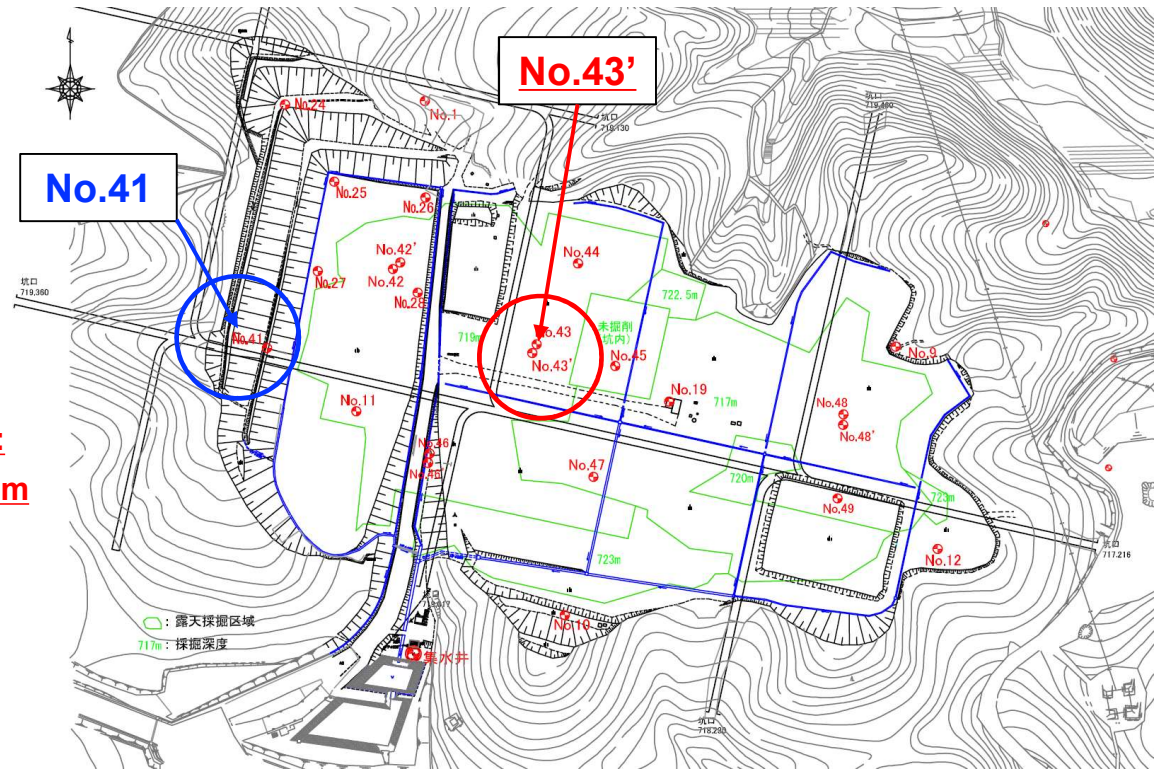
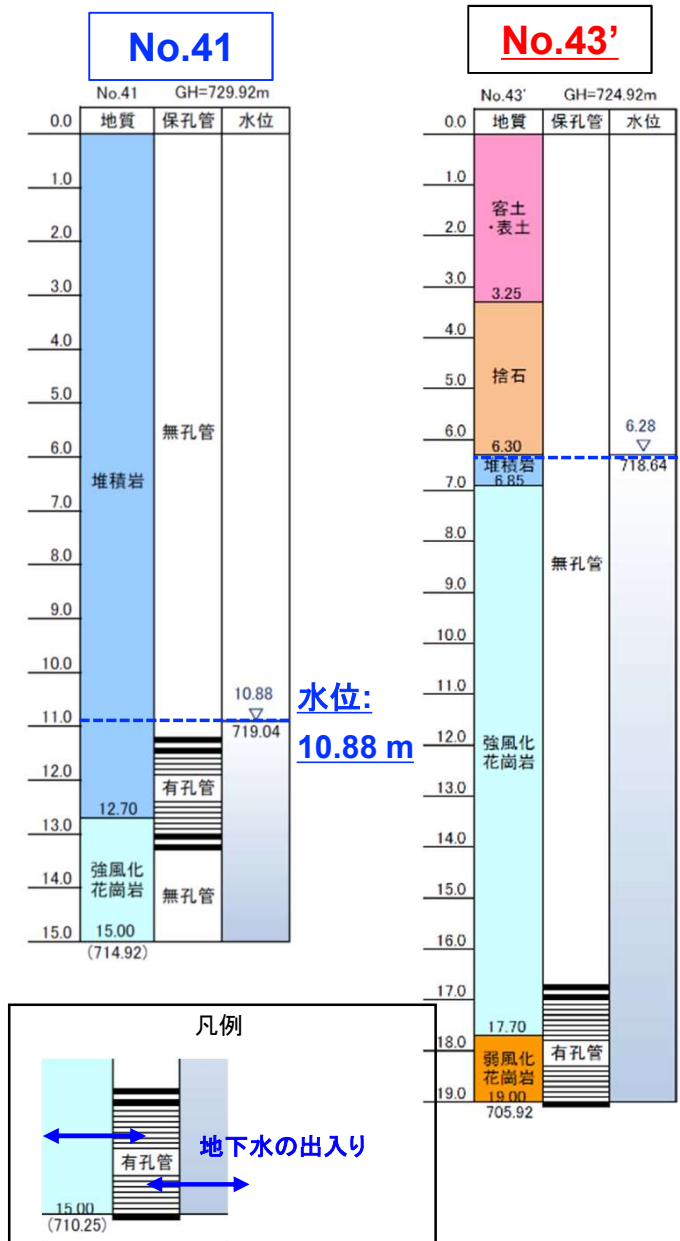


Kao: kaolinite
Chl: chlorite
Qz: quartz
Clay: vermiculite, smectite



No. 43' 及び No. 41のモニタリング孔から採水した 水試料中の Ra・U 濃度及び $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 放射能比

露天採掘場跡地のモニタリング孔 (No. 41 及び No. 43')



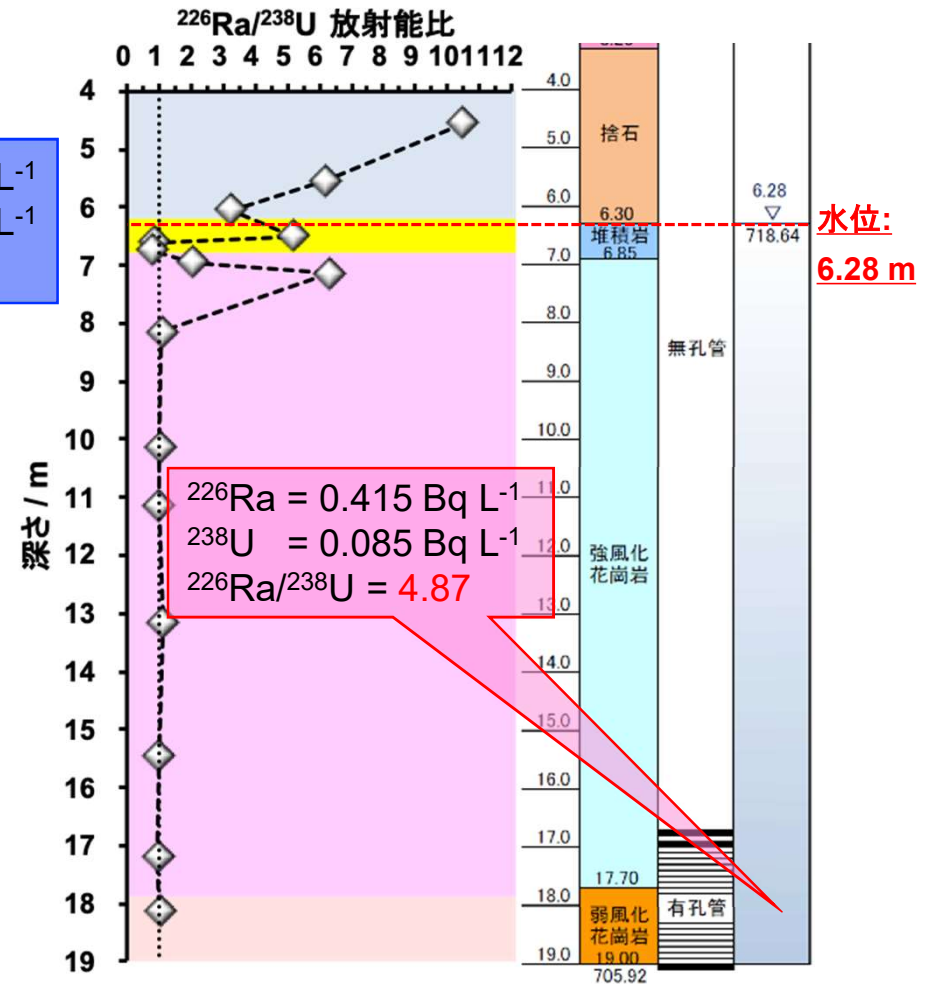
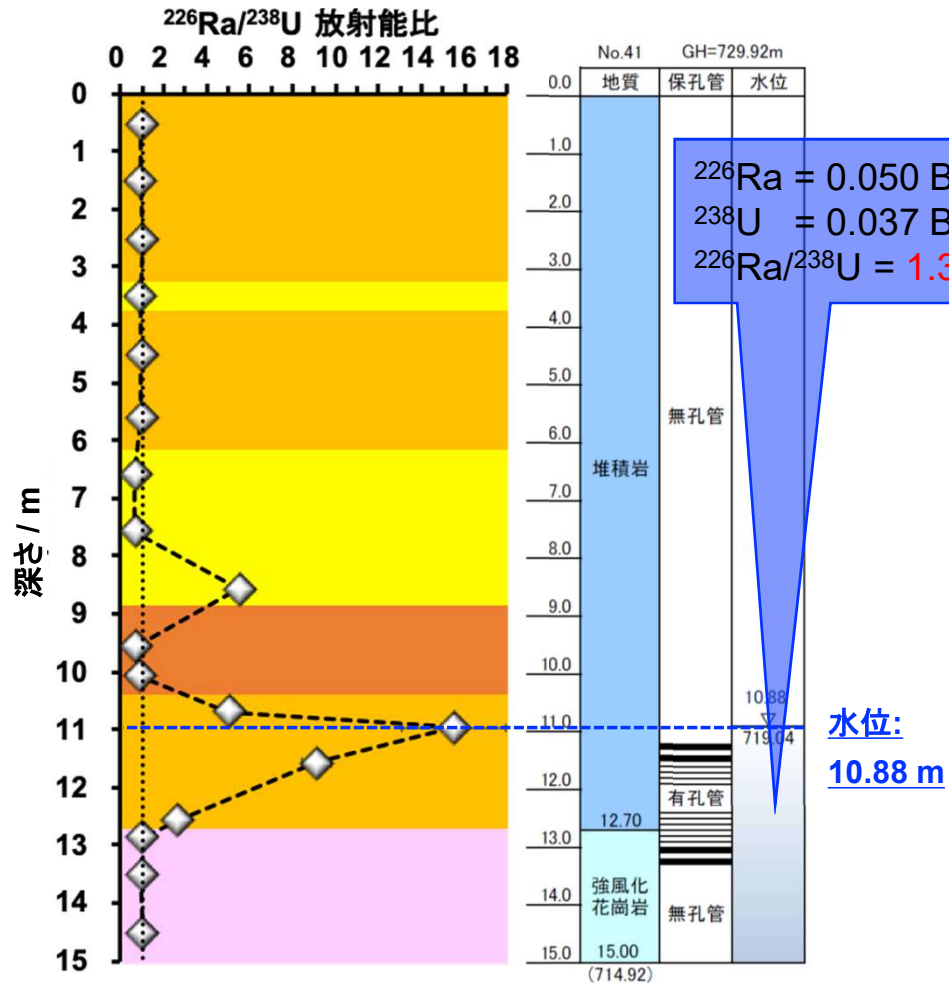
捨石分布範囲及びウラン鉱床未掘削のモニタリング孔の水試料を用いて比較する。
 試料量は **10 ~ 20 L** とし、加熱濃縮後、ガンマ線スペクトロメトリによりラジウム及びウランを定量した。



地下水 (No. 41 及び No. 43') 中 Ra・U 濃度及び $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 放射能比

No. 41

No. 43'



コア No. 41

$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$: 固相 (max: 15.5) >> 1.35
→ ラジウムは固相側に濃集

コア No. 43'

$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$: 固相 (max: 6.33) > 4.87
→ ラジウムは固相側に濃集



粘土鉱物に対するラジウムの分配係数 (ラジウムの吸着実験)

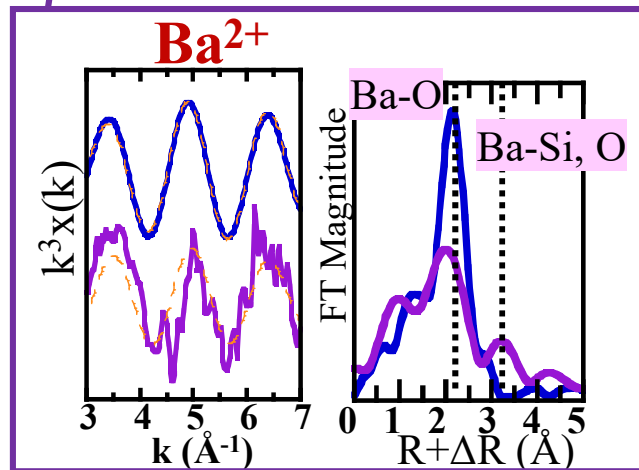
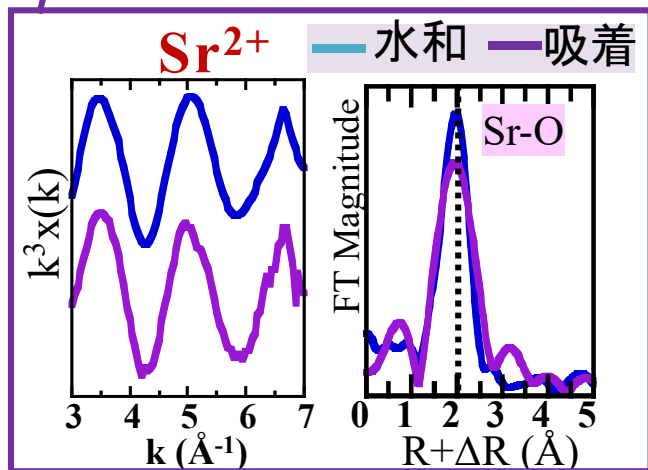
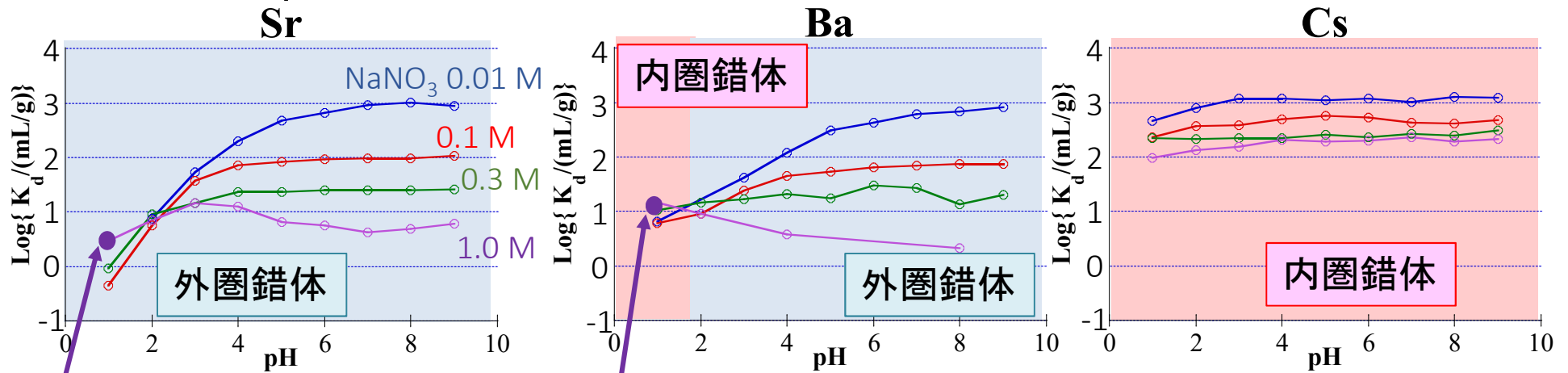
様々なイオンの吸着構造 (吸着実験)

分配係数 (K_d) の pH や イオン強度への依存性から吸着構造を推定

吸着時の安定化エネルギー:

$$\Delta G = \Delta G_{\text{水和}} + \Delta G_{\text{静電}} + \Delta G_{\text{化学}}$$

イオン強度と pH の影響: 外圏錯体 \Rightarrow 大 / 内圏錯体 \Rightarrow 小



Cs⁺
主に内圏錯体

Sr²⁺
主に外圏錯体

Ba²⁺
pH > 2: 主に外圏錯体
pH < 2: 主に内圏錯体

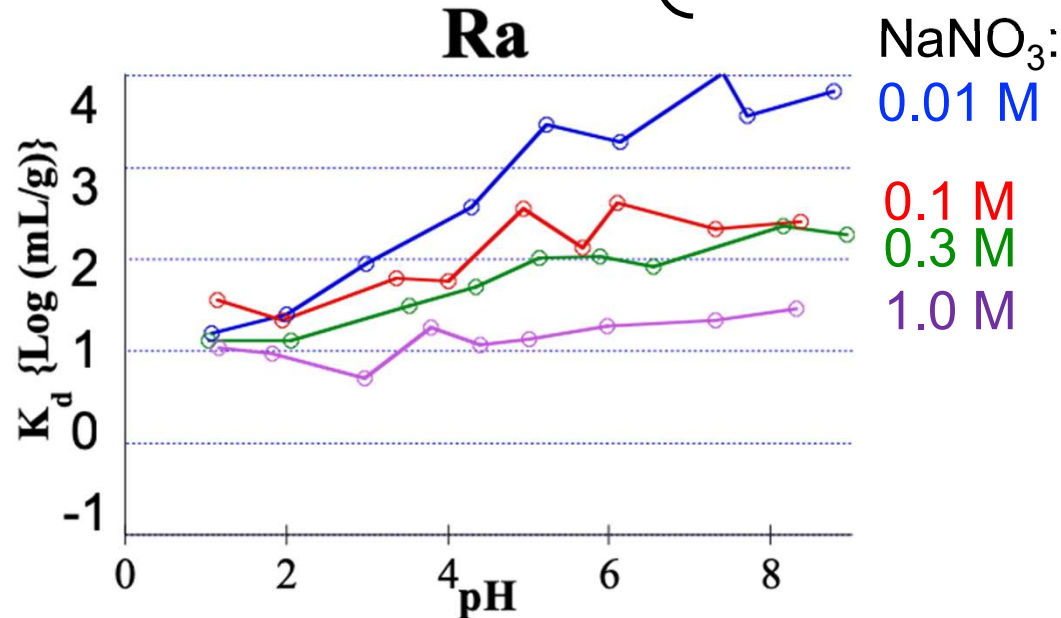
ラジウムの分配係数 (K_d)

実験: イオン強度と pH を調整した溶液に Na-バーミキュライト及び ^{226}Ra 溶液を添加し、約 3 日間振とうした後、溶液をろ過して液相を回収し、回収した溶液中の ^{226}Ra 濃度を測定した。

K_d は以下の式から求めた。

$$K_d \text{ (dm}^3/\text{g)} = \frac{C_0 - C_e}{C_e R_{S/L}}$$

C_0 : ラジウムの総濃度
 C_e : 吸着反応後の溶液中のラジウム濃度
 $R_{S/L}$: 固液比 = 10 g/dm³



Ba の結果と比較的類似

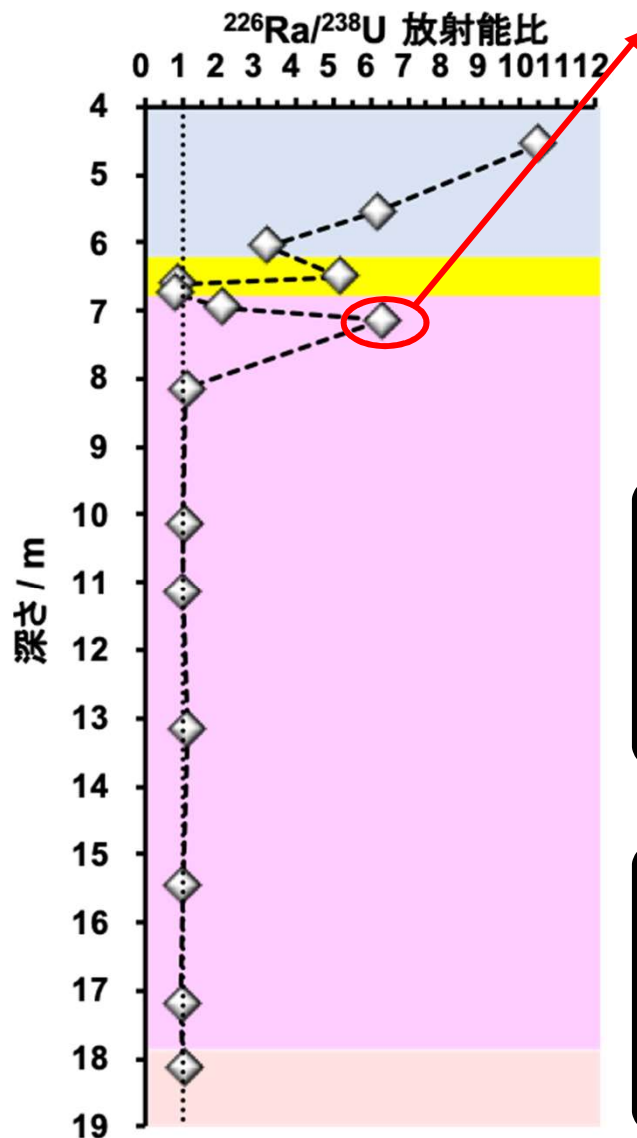
- ・pH が 2 よりも小さい条件でのイオン強度や pH への依存性はほとんど等しい
 - ・pH が 2 よりも大きい条件でのイオン強度や pH への依存性は Ra の方が Ba よりも小さい。
- Ra の方が Ba よりも内圏錯体を形成し易いことを示唆しており、Ra は粘土鉱物に固定されると考えられる。



コア No. 43' (710) に含まれる粘土鉱物

水簸による粘土鉱物の分離

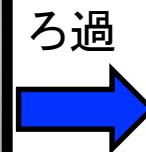
水簸法: 粒子の大きさによる水中沈降速度の差を利用



コア No. 43' 710 ($^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U} = 6.33$)

以下の操作により粒径がおよそ $2\ \mu\text{m}$ 以下の粒子を集めた
 1. 50 mL の遠沈管に固体試料 4 g と MQ 水 45 mL を加えよく攪拌

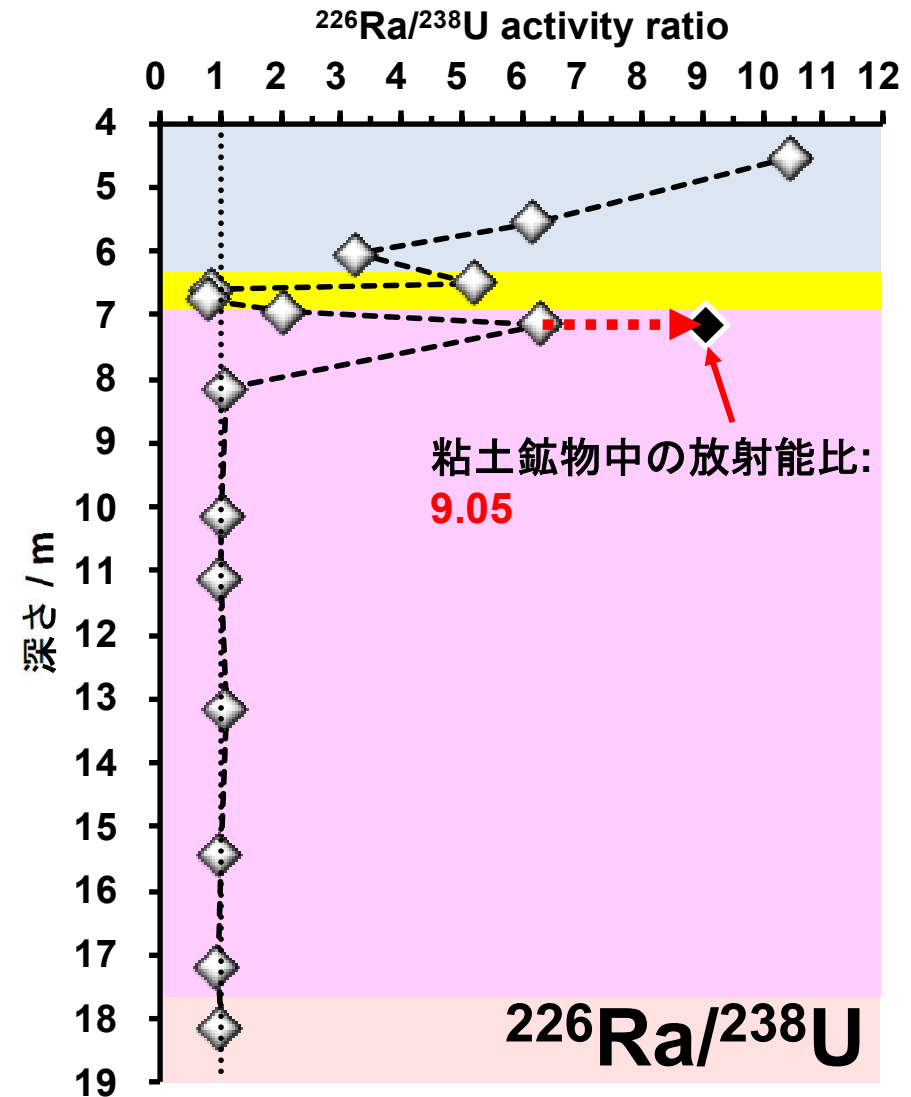
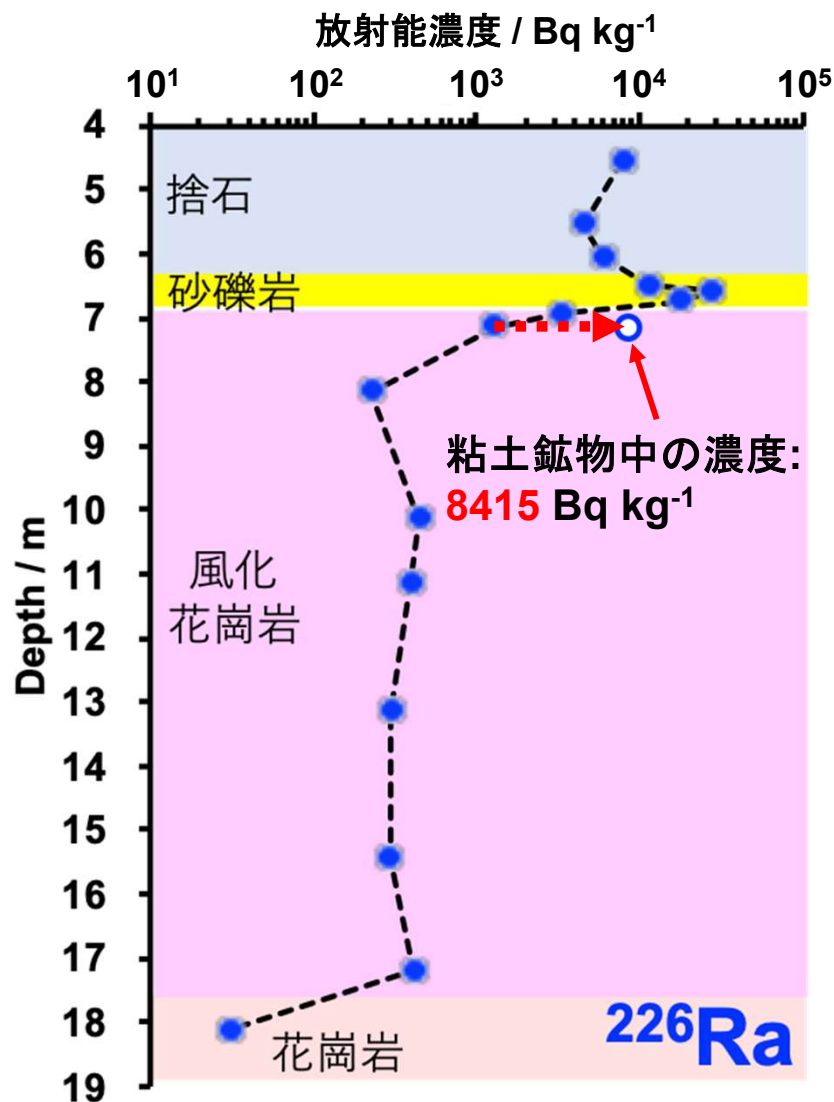
2. 室温で 4 時間静置した後、上から 5 cm の上澄みを分取
 3. 分取した上澄み液を孔径 $0.45\ \mu\text{m}$ のフィルターでろ過し、ろ紙上の固体をゲルマニウム半導体検出器によりガンマ線測定



γ 線測定



コア No. 43' (710): 水簾試料中の ^{226}Ra 濃度と $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 放射能



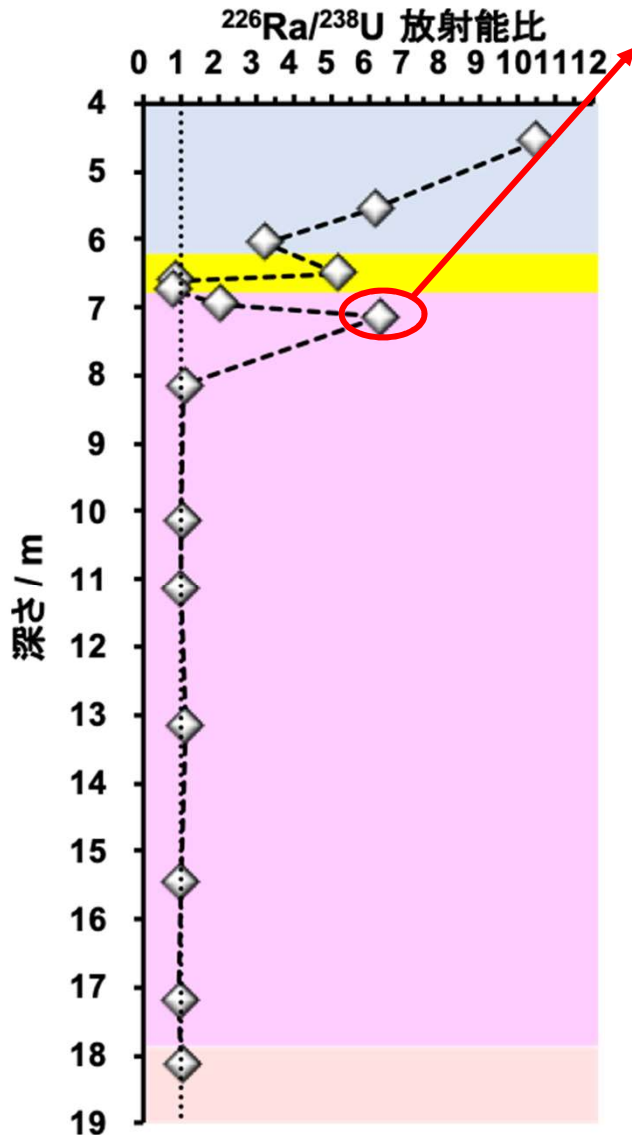
水簾試料中の ^{226}Ra 濃度は、 8415 Bq kg^{-1} (バルクの 1287 Bq kg^{-1} と比べて 6 倍以上の濃度)

水簾試料中の $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 放射能比は、 9.05 (バルクの値 = 6.33)

→ 粘土鉱物にラジウムが濃集

エチレングリコール処理による粘土鉱物の同定

粘土鉱物の違いによるエチレングリコールの層間への入りやすさの違いを利用

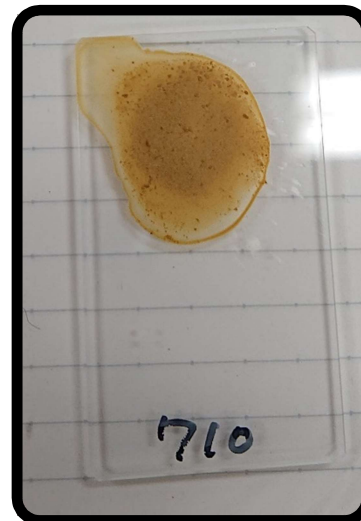


コア No. 43' 710 ($^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U} = 6.33$)

水簾試料に対して以下の実験を行った

1. 水簾試料を含む MQ 水をガラス上に落とし 40°C で乾燥
2. X 線回折分析を行った
3. X 線回折分析後の試料にエチレングリコール (EG) を数滴落とした
4. 再び X 線回折分析を行った

処理前



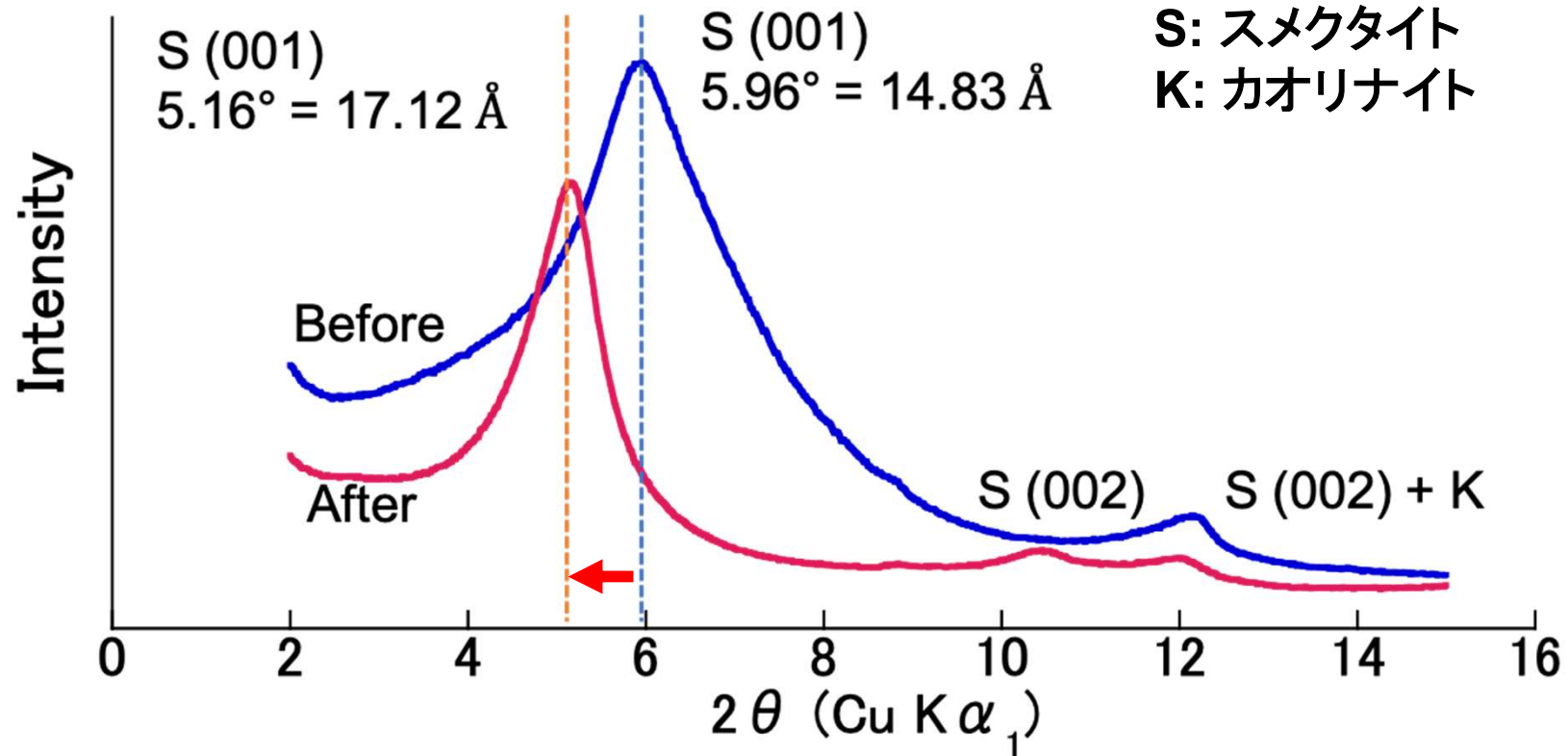
処理後



エチレングリコール処理による粘土鉱物の同定

EG 処理後に、

- ・ピーク位置が $2\theta = 6^\circ$ から $2\theta = 5^\circ$ へ動けば → スメクタイト
- ・ピーク位置が動かなければ → バーミキュライト



ピーク位置が動いた (層間の水が EG と置換し層格子の厚さが増大)
→ コア No. 43' (710) に含まれる粘土鉱物は **スメクタイト** であると考えられる。

まとめ

■ コア No. 43' (捨石を含む) 及びコア No. 41 (未掘削) コア試料について、蛍光 X 線分析 (XRF)、X 線回折分析 (XRD)、ガンマ線測定、シンクロトロン- μ -XRF-XANES-XRD 分析を行った。

- ・ ラジウム及びウラン濃度、 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 放射能比の結果より、ラジウムはウラン鉱床から下方へ移行し、粘土鉱物を含む層に濃集していることが明らかになった (露天採掘場跡地及び未掘削地のコア試料の両方)。
- ・ 蛍光 X 線分析 (XRF)、X 線回折分析 (XRD) 及びシンクロトロン- μ -XRF-XANES-XRD の結果は、ラジウムが粘土鉱物へ吸着しているという推定と整合的である。
- ・ 地下水及び水簸試料中のラジウム濃度と $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 放射能比の結果もラジウムの粘土鉱物への吸着を支持している。
- ・ 実験室系での吸着実験の結果より、ラジウムは粘土鉱物に内圏錯体を形成して固定され易いことが示唆された。
- ・ コア No. 43' (710) 内のラジウムを吸着している粘土鉱物は、スメクタイトであると推定された。

■ 今後の取組み

- ・ コア No. 43' 中の Ra/U 比が 1 より高い試料に対して逐次抽出法を適応することにより、固相中のラジウムの分配を調べる。
- ・ 様々な固体試料を充填したカラムにラジウムを含む水試料を通液するカラム試験を行う。

