硫酸-硫酸塩(UO_2SO_4 , CdSO_4 , Li_2SO_4 , Na_2SO_4) 混合水溶液の水および溶質の活量*

栗 倉 泰 弘¹ 朴 誠 国² 日 合 弘³
日 比 紀 孝⁴ 真 嶋 宏⁵

[UDC 541, 134]

Activities of Water and Solutes of the Aqueous H_2SO_4 Solutions Containing UO_2SO_4 , CdSO_4 , Li_2SO_4 and Na_2SO_4

by Yasuhiro AWAKURA¹, Sung-kook PARK², Hiroshi HIAI³, Toshitaka HIBI⁴ and Hiroshi MAJIMA⁵

Isopiestic measurements for determining water activity at 298 K were extended to the aqueous solutions of $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-M}_x(\text{SO}_4)_y$ (including UO_2SO_4 , CdSO_4 , Li_2SO_4 , and Na_2SO_4). The applicability of Robinson-Bower equation, which had been proposed for evaluating water activity in mixed solutions, was examined for these solution systems, and it was found that the water activities calculated by this equation are in good agreement with those experimentally determined. The mean activity coefficients of H_2SO_4 and $\text{M}_x(\text{SO}_4)_y$ in these solution systems were calculated by the McKay-Perring method on the basis of equiwater activity lines. The mean activity coefficients of H_2SO_4 calculated by the McKay-Perring method agreed well with those measured at 298 K by the emf method using a cell consisting of a glass electrode and a $\text{PbO}_2\text{-PbSO}_4$ electrode. The applicability of the Meissner-Kusik method to the aqueous solution of $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-CdSO}_4$ was examined by comparing the mean activity coefficients calculated by this method with those determined by the emf method. The Meissner-Kusik method gives activity coefficients of 20 - 40 pct higher than those determined experimentally.

KEY WORDS: Activity of Water, Activity of Electrolyte, Sulfuric Acid-Sulfate Solution

- 1, 4, 5. Faculty of Engineering, Kyoto University. 1. Assoc. Prof., Dr.
2. Dr., formerly Graduate Student with Kyoto University. Now Senior Researcher with Kwang Yang Research Center, Research Institute of Industrial Science and Technology, Korea.
3. Formerly, Graduate Student with Kyoto University. Now Nippon Mining Co., Ltd.
4. Graduate Student 5. Prof., Dr.

1. 緒 言

著者らはこれまで温度298 Kにおける $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-M}_x(\text{SO}_4)_y$ ならびに HCl-MCl_x 混合水溶液の水および溶質の活量を決定し、得られた結果を学会誌に報告するとともにデータ集¹⁾として集録した。その中に集録されなかった系としては $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-UO}_2\text{SO}_4$ および $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-CdSO}_4$ があり、これらの系に対する活量値の決定が望まれる。また $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-Li}_2\text{SO}_4$ および $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-Na}_2\text{SO}_4$ 系についてはデータは集録されているが、濃度範囲が狭く利用価値を増すためには測定濃度範囲を拡げておくことが必要である。

このような観点から本研究においては硫酸-硫酸塩(UO_2SO_4 , CdSO_4 , Li_2SO_4 および Na_2SO_4)系混合水溶液をとりあげ、それ

らの溶液の温度298 Kにおける水の活量を等圧法により決定するとともに、本来アルカリまたはアルカリ土類金属の塩化物混合水溶液の水の活量値の推定のために提案されたRobinson-Bower則²⁾の適用性を検討した。さらに測定により得られた水の等活量線に基づきMcKay-Perring法³⁾を適用して硫酸および硫酸塩の平均活量係数の決定を行った。さらにこれらの溶液系の硫酸の平均活量係数を $\text{PbO}_2\text{-PbSO}_4$ 電極ならびにガラス電極を用いる起電力法で決定し、上記計算値との対比を行うとともに、 $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-CdSO}_4$ 系混合水溶液についてはMeissner-Kusik法⁴⁾の適用性について検討した。

本報はそれらの結果を取りまとめたものである。

2. 実験方法ならびに活量の計算法

2・1 水の活量測定

硫酸-硫酸塩(UO_2SO_4 , CdSO_4 , Li_2SO_4 および Na_2SO_4)系混合水溶液の温度298 Kにおける水の活量測定には等圧法を用いたが、この方法ならびに測定方法については既に詳細に報告⁵⁾したので、本報では省略する。

2・2 硫酸の活量測定

上記混合水溶液の硫酸の活量測定には硫酸イオンおよび水素イ

* 1989年6月28日受付 11月15日受理

1. 正会員 工博 京都大学助教授 工学部冶金学科
2. 正会員 工博 韓国産業科学研究所主任研究員(元 京都大学大学院工学研究科冶金学専攻)
3. 正会員 日本鉱業(株)佐賀開製錬所(元 京都大学大学院工学研究科冶金学専攻)
4. 京都大学大学院学生 工学研究科冶金学専攻
5. 正会員 工博 京都大学教授 工学部冶金学科
キーワード: 水の活量, 電解質の活量, 硫酸-硫酸塩水溶液

オン感応電極として、それぞれ $\text{PbO}_2\text{-PbSO}_4$ 電極およびガラス電極を用いる起電力法を適用した⁶⁾⁷⁾。

2・3 試薬

本研究に用いた試薬は UO_2SO_4 を除いてすべて試薬特級として市販されているものである。 $\text{UO}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{SO}_4$ 混合水溶液は次のようにして調製した。すなわち純度 99.9% 以上の UO_2 ペレットを過酸化水素水を用いて硫酸水溶液に溶解し、できるだけ遊離硫酸の少ない全ウラン濃度 $589\text{ g}\cdot\text{dm}^{-3}$ および全硫酸根濃度 $254\text{ g}\cdot\text{dm}^{-3}$ の母液を得た。この母液と市販特級の H_2SO_4 とを混合し所定濃度の $\text{UO}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{SO}_4$ 水溶液を調製した。なお水溶液の調製にはすべて比抵抗 $5\times 10^6\ \Omega\cdot\text{cm}$ 以上の脱イオン水を使用した。

2・4 混合水溶液の水の活量値の計算法

硫酸-硫酸塩混合水溶液の水の活量値を計算で求めるためには、硫酸および硫酸塩の完全解離を仮定し、Robinson-Bower 式²⁾を適用した。硫酸-硫酸塩系については著者らの従来行った研究⁶⁾⁸⁾により、硫酸および硫酸塩の完全解離を仮定しても、あるいは硫酸の解離および硫酸塩構成金属の硫酸根錯体形成を考慮しても、ほぼ同様の結果が得られるが、完全解離を仮定した方がむしろ計算値と実測値との間により一致が得られることによるものである。

2・5 硫酸および硫酸塩の平均活量係数の計算法

硫酸-硫酸塩混合水溶液の硫酸および硫酸塩の平均活量係数の計算には、混合水溶液系の実測した水の等活量データに基づいて McKay-Perring 法³⁾を適用した。計算法の詳細については前報⁹⁾に詳述したので本報には省略する。 $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-CdSO}_4$ 系混合水溶液の溶質の平均活量係数の計算には Meissner-Kusik⁴⁾により提案された方法の適用性についても検討した。

3. 結果ならびに考察

3・1 水の活量

硫酸-硫酸塩 (UO_2SO_4 , CdSO_4 , Li_2SO_4 および Na_2SO_4) 系混合水溶液の温度 298 K における水の活量値を等圧法により測定したが、測定結果は直接等活量線図の形で図示できる。図 1 は、 $a(\text{H}_2\text{O}) = 0.96$ 傍の本研究で得た等活量線を従来の測定で得た他の硫酸-硫酸塩 ($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ¹⁰⁾, MnSO_4 ¹¹⁾, CoSO_4 ¹¹⁾,

Fig. 1 The equi- $a(\text{H}_2\text{O})$ lines for the aqueous solution systems of $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-M}_x(\text{SO}_4)_y$ at 298 K.

NiSO_4 ¹¹⁾, $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ ⁸⁾, $\text{Cr}_2(\text{SO}_4)_3$ ¹²⁾ 系混合水溶液のそれらと比較して示したものである。図中点線で示した直線は次式で示される Zdanovskii 則¹³⁾から決定される等 $a(\text{H}_2\text{O})$ 線を表す^{a)}。

$$\frac{m(\text{H}_2\text{SO}_4)}{M(\text{H}_2\text{SO}_4)} + \frac{m(\text{M}_x(\text{SO}_4)_y)}{M(\text{M}_x(\text{SO}_4)_y)} = 1 \quad \dots\dots\dots (1)$$

式中 $m(\text{H}_2\text{SO}_4)$ および $m(\text{M}_x(\text{SO}_4)_y)$ はそれぞれ混合水溶液中の H_2SO_4 および $\text{M}_x(\text{SO}_4)_y$ の重量モル濃度を、また $M(\text{H}_2\text{SO}_4)$ および $M(\text{M}_x(\text{SO}_4)_y)$ は混合水溶液と同じ水の活量をもつ H_2SO_4 単味水溶液および $\text{M}_x(\text{SO}_4)_y$ 単味水溶液の重量モル濃度を示す。図に明らかなように $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-UO}_2\text{SO}_4$ 系ならびに $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-CdSO}_4$ 系の等 $a(\text{H}_2\text{O})$ 線は Zdanovskii 則によく従い、その勾配は約 2 で、 CoSO_4 ¹¹⁾, NiSO_4 ¹¹⁾ および MnSO_4 ¹¹⁾ を含む硫酸水溶液と同じ傾向を示している。一方 $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-Li}_2\text{SO}_4$ および $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-Na}_2\text{SO}_4$ 系水溶液の等 $a(\text{H}_2\text{O})$ 線は Zdanovskii 則から予想される値より大きな水の活量値を示し、その勾配はほぼ 1 であった。この傾向は $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-(NH}_4)_2\text{SO}_4$ ¹⁰⁾ のそれと比較的よく一致している。

等 $a(\text{H}_2\text{O})$ 線が Zdanovskii 則によるそれから偏倚する場合には、実験的に求めた等 $a(\text{H}_2\text{O})$ 線を数量化するため式(2)で表す修正 Zdanovskii 則¹⁴⁾が用いられる。

$$\frac{m(\text{H}_2\text{SO}_4)}{M(\text{H}_2\text{SO}_4)} + \frac{m(\text{M}_x(\text{SO}_4)_y)}{M(\text{M}_x(\text{SO}_4)_y)} + b \frac{m(\text{H}_2\text{SO}_4) \cdot m(\text{M}_x(\text{SO}_4)_y)}{m(\text{H}_2\text{SO}_4) + m(\text{M}_x(\text{SO}_4)_y)} = 1 \quad \dots\dots\dots (2)$$

ここでパラメータ b は Zdanovskii 則からの偏倚の程度を示すパラメータである。実験データに式(2)を適用し b 値を決定する際には最小自乗法を用いた。

図 2 は本研究で取扱った系の b 値を $a(\text{H}_2\text{O})$ の関数として示したものである。同図には参考のため他の硫酸塩 (CoSO_4 ¹¹⁾, $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ ¹⁵⁾) を含む硫酸溶液の b 値も併せ示した。図に明らかなように $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-CdSO}_4$ 系の b 値は $a(\text{H}_2\text{O})$ が 1 に近い領域で直線的に零よりわずかに正方向に偏倚するが、その様子は $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-CoSO}_4$ 系のそれに類似している。本研究で取り上げた他の 3 種類の硫酸塩系の b 値の零からの偏の方向は CdSO_4 系のそれと逆であり、 $a(\text{H}_2\text{O})$ の変化に対し非直線的に変化している。

図 2 に示した本研究で取り上げた系の b 値と $a(\text{H}_2\text{O})$ の関係を数量化するため最小自乗法により分数関数と 4 次の多項式から成

Fig. 2 The relationship between b and $a(\text{H}_2\text{O})$ for the aqueous solution systems of $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-M}_x(\text{SO}_4)_y$ at 298 K.

a) 図 1 に示した点線は例として番号 11, 2, 5 および 1 で示した $\text{Cr}_2(\text{SO}_4)_3(\text{g})$, Na_2SO_4 , $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$, あるいは Li_2SO_4 を含む H_2SO_4 水溶液に対応するものである。

Table 1 Constants of the regression equation for b value in the aqueous solution systems of $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-M}_x(\text{SO}_4)_y$ determined by the isopiestic method at 298 K.

$$b = -\frac{B_0 a(\text{H}_2\text{O})}{1 + B_1 a(\text{H}_2\text{O})} + A_0 + A_1 a(\text{H}_2\text{O}) + A_2 a(\text{H}_2\text{O})^2 + A_3 a(\text{H}_2\text{O})^3 + A_4 a(\text{H}_2\text{O})^4$$

$\text{M}_x(\text{SO}_4)_y$	B_0	B_1	A_0	A_1	A_2	A_3	A_4
UO_2SO_4	0.0950	-0.95	8.1654	-6.9147	-9.1436	0.7852	8.4265
CdSO_4	0.0001	0.90	-6.7736	18.855	-9.9108	-10.825	8.7475
Li_2SO_4	0.0662	-0.95	4.0053	-10.459	7.1360	—	—
Na_2SO_4	0.0930	-0.93	1.6069	-3.2355	1.6761	0.0138	0.6588

valid on $1.00 > a(\text{H}_2\text{O}) > 0.91$, $1.00 > a(\text{H}_2\text{O}) > 0.81$, $1.00 > a(\text{H}_2\text{O}) > 0.84$ and $1.00 > a(\text{H}_2\text{O}) > 0.75$ for UO_2SO_4 , CdSO_4 , Li_2SO_4 and Na_2SO_4 , respectively.

る式で近似したが、その結果を表1に示す。この表中の係数と式(2)とから等 $a(\text{H}_2\text{O})$ 線が推定可能であることは当然であるが、このようにして得た b 値を後述する溶質の平均活量の計算に使用した。

Majimaら⁵⁾⁶⁾はさきに硫酸-硫酸塩混合水溶液の水の活量値は、硫酸および硫酸塩の完全解離を仮定し、本来アルカリまたはアルカリ土類金属塩化物の混合水溶液の水の活量計算に対して提唱されたRobinson-Bower式を用いることにより成分硫酸塩単味水溶液の水の活量のデータから精度よく計算できることを明らかにしたが、本研究で取扱った溶液系に対してもRobinson-Bower式の適用性を検討した。図3はそのような試みの結果の一例として $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-CdSO}_4$ 系の水の活量値の計算結果を、実測値と対比して示したものである。図に明らかなように上記仮定のもとでの $a(\text{H}_2\text{O})$ の計算値は実測値と偏差0.75%以下で一致し、Robinson-Bower則が精度よく適用できることを示唆している。同様な試みをも UO_2SO_4 、 Li_2SO_4 および Na_2SO_4 を含む H_2SO_4 水溶液についても行ったが、計算値と実測値の偏差はそれぞれ0.5%、2.5%および1.6%であり、これら混合水溶液の水の活量の推定にもRobinson-Bower式が適用できると考えられる。なおこれらの計

算において使用した硫酸塩単味水溶液の水の活量データはRobinson-Stokesの本に記載のものである¹⁶⁾。

3・2 硫酸の平均活量係数

さきにAwakuraら⁹⁾は上述の b 値および各硫酸塩単味水溶液の平均活量係数データを適用して混合水溶液の溶質の平均活量係数を計算しうること示したが、同様の方法により本研究において取扱った系の溶質、すなわち硫酸ならびに硫酸塩の平均活量係数の計算を行った。このためMcKay-Perring式に含まれる b 値の $a(\text{H}_2\text{O})$ による積分計算にあたっては表1に示した式を用いて積分を行った。なお、この計算に使用した硫酸塩単味水溶液の平均活量係数のデータはRobinson-Stokesの本¹⁶⁾に記載のものである。

図4は H_2SO_4 濃度を0.2および1.0 mol·kg⁻¹の一定値に保ち $\gamma_{\pm}(\text{H}_2\text{SO}_4)$ 値を計算した結果を示したものである。 Na_2SO_4 を含む H_2SO_4 水溶液の $\gamma_{\pm}(\text{H}_2\text{SO}_4)$ はいずれの H_2SO_4 濃度においても Na_2SO_4 濃度の増加とともに単調に減少するのに対し、他の硫酸塩系では H_2SO_4 濃度0.2 mol·kg⁻¹ではほぼ同様な傾向を示すが、 H_2SO_4 濃度1.0 mol·kg⁻¹では $\gamma_{\pm}(\text{H}_2\text{SO}_4)$ は硫酸塩濃度に対してそれほど敏感ではない。

このようにしてMcKay-Perring法により計算で求めた $\gamma_{\pm}(\text{H}_2\text{SO}_4)$ 値の妥当性を検討するため、それらの値を $\text{PbO}_2\text{-PbSO}_4$

Fig. 3 A comparison of water activities determined experimentally at 298 K for the aqueous solution system of $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-CdSO}_4$ with those calculated from the Robinson-Bower equation without taking the formation of Cd(II) sulfato-complexes into consideration.

Fig. 4 The mean activity coefficients of H_2SO_4 in 0.2 and 1.0 mol kg⁻¹ H_2SO_4 solutions containing Li_2SO_4 , Na_2SO_4 , CdSO_4 , or UO_2SO_4 at different concentrations.

Fig. 5 A comparison of the mean activity coefficients of H_2SO_4 in the aqueous solutions of H_2SO_4 - CdSO_4 calculated by the McKay-Perring method with those measured by an emf method.

電極ならびにガラス電極を用いる起電力法⁶⁾⁷⁾で実験的に求めた $\gamma_{\pm}(\text{H}_2\text{SO}_4)$ 値と比較した。図5は一例として H_2SO_4 - CdSO_4 系混合水溶液の $\gamma_{\pm}(\text{H}_2\text{SO}_4)$ 値の計算値ならびに実測値を対比して示したものである。図にみられるように H_2SO_4 濃度 0.1, 0.5 および $1.0 \text{ mol}\cdot\text{kg}^{-1}$ の3水準における $\gamma_{\pm}(\text{H}_2\text{SO}_4)$ の計算値と実測値の一致は極めて満足すべきものであり、偏差は1.5%以下であった。このことはMcKay-Perring法は溶質の平均活量係数の計算に十分役立つものであることを意味する。

混合水溶液の溶質の平均活量係数の他の計算法としてMeissner-Kusik⁴⁾の方法があるが、この方法の適用性を検討する目的で H_2SO_4 - CdSO_4 系の $\gamma_{\pm}(\text{H}_2\text{SO}_4)$ を計算し、起電力法による実測値と比較した。混合水溶液の平均活量係数の算出に用いられるMeissner-Kusikの式は成分単味水溶液のそれらを用いるもので式(8)で与えられる。

$$\log \Gamma_{12} = \log \Gamma_{12}^{\circ} + 0.5(X_3) \log(\Gamma_{32}^{\circ} / \Gamma_{12}^{\circ}) \quad \dots\dots\dots (8)$$

ただし $\Gamma_{12} = \gamma_{12} / \frac{1}{z_1 z_2}$

Γ_{12} は電解質12の平均活量係数に関する'reduced'活量係数であり、 γ_{12} は混合水溶液の、また Γ_{12}° および Γ_{32}° は混合水溶液と等しいイオン強度を持つ成分単味電解質水溶液のそれである^{b)}。 z_1 および z_2 はそれぞれイオン1および2の価数を、 X_3 はイオンの重量モル濃度を m で表した際の $m_3 z_3 / (m_1 z_1^2 + m_3 z_3^2)$ に相当する項を示す。結果を図6に示す。Meissner-Kusik法による計算結果は実測値とかなり大きな差異を示すことが明らかであり、 CdSO_4 重量モル濃度 $0.3 \text{ mol}\cdot\text{kg}^{-1}$ 以上の領域では20~40%程度大きい値を与えている。Meissner-Kusik法は本来溶液のイオン強度に基づく計算法であり、 HCl - NaCl 混合水溶液の $\gamma_{\pm}(\text{HCl})$ はよい精度で算出が可能であるといわれている⁴⁾が、 H_2SO_4 - CdSO_4 系ではBaes¹⁷⁾の報告している H_2SO_4 の解離定数ならびに $\text{Cd}(\text{II})$ のスルファ錯体形成を考慮してイオン強度の計算を行っても $\gamma_{\pm}(\text{H}_2\text{SO}_4)$ の計算値は実測値から大きな偏差を示すことは前述のとおりである。 H_2SO_4 や CdSO_4 の完全解離を仮定すると $\gamma_{\pm}(\text{H}_2\text{SO}_4)$ の計算値は実測値からさらに大きく偏倚することになり、硫酸-硫酸塩混合水溶液系ではイオン強度の算出に問題

b) 例えば、 H_2SO_4 - CdSO_4 系混合水溶液では1, 2 および 3 はそれぞれ H^+ , SO_4^{2-} , および Cd^{2+} イオンを表す。

Fig. 6 A comparison of the mean activity coefficients of H_2SO_4 in the aqueous solutions of H_2SO_4 - CdSO_4 calculated by the Meissner-Kusik method with those measured by an emf method.

Fig. 7 The mean activity coefficients of $\text{M}_x(\text{SO}_4)_y$ in 0.2 and $1.0 \text{ mol}\cdot\text{kg}^{-1}$ H_2SO_4 solutions containing Li_2SO_4 , Na_2SO_4 , CdSO_4 , or UO_2SO_4 at different concentrations.

があるといえよう。

3・3 硫酸塩の平均活量係数

硫酸-硫酸塩混合水溶液の $\gamma_{\pm}(\text{H}_2\text{SO}_4)$ がMcKay-Perring法により十分な精度で計算できることが明らかになったので、同様な方法で $\gamma_{\pm}(\text{M}_x(\text{SO}_4)_y)$ の計算を行った。なお、この計算に用

いた各硫酸塩単味水溶液の平均活量係数のデータはRobinson-Stokesの本に記載のものである¹⁶⁾。

図7は $\text{M}_x(\text{SO}_4)_y$ の重量モル濃度を0.2および $1.0 \text{ mol} \cdot \text{kg}^{-1}$ 一定とし、Mckay-Perring法を用いて計算した $\gamma_{\pm}(\text{M}_x(\text{SO}_4)_y)$ 値を対比して図示したものである。 UO_2SO_4 あるいは CdSO_4 を含有する H_2SO_4 水溶液の $\gamma_{\pm}(\text{M}_x(\text{SO}_4)_y)$ の H_2SO_4 濃度依存性はそれぞれの $\text{M}_x(\text{SO}_4)_y$ 濃度において、互いに類似しているのに対し、 Li_2SO_4 または Na_2SO_4 系のそれらは UO_2SO_4 や CdSO_4 系のそれらよりはかなり大きい値を示し、 H_2SO_4 濃度依存性の傾向は同じであるが、 H_2SO_4 濃度の増大に伴う $\gamma_{\pm}(\text{M}_x(\text{SO}_4)_y)$ 値の減少の程度は大である。

4. 結 言

硫酸-硫酸塩(UO_2SO_4 , CdSO_4 , Li_2SO_4 および Na_2SO_4)系混合水溶液の温度298 Kにおける水の活量を等圧法を用いて測定した。これらの混合水溶液の水の活量値の計算は硫酸および硫酸塩の完全解離を仮定しRobinson-Bower式を適用することにより、十分精度よく計算できる。また実験により決定した等 $\alpha(\text{H}_2\text{O})$ 線に基づき H_2SO_4 および $\text{M}_x(\text{SO}_4)_y$ の平均活量係数をMckay-Perring法により修正 Zdanovskii 式の b 値を用いて計算した。この方法により計算した H_2SO_4 - CdSO_4 混合水溶液系の $\gamma_{\pm}(\text{H}_2\text{SO}_4)$ 値は起電力法で実測した値とよく一致する。なお、 H_2SO_4 - CdSO_4 系の $\gamma_{\pm}(\text{H}_2\text{SO}_4)$ の計算にMeissner-Kusik法が適用できるか否かについて検討したが、この方法による計算値が起電力法による実測値と偏倚することを見出し、硫酸-硫酸塩系水溶液では溶液のイオン強度の算定に問題のあることを明らかにした。

参 考 文 献

- 1) H. Majima, Y. Awakura and Y. Kawasaki: "Activities of Water and Solutes in the Aqueous Solution Systems H_2SO_4 - $\text{M}_x(\text{SO}_4)_y$ and HCl - MCl_x " Agne-Shofu Publishing Inc., Tokyo (1988)
- 2) R. A. Robinson and V. E. Bower: J. Res. Nat. Bur. Stand., **69A**, 365~371, (1969)
- 3) H. A. C. Mckay and J. K. Perring: Trans. Faraday Soc., **43**, 49~56, (1953)
- 4) H. P. Meissner and C. L. Kusik: AIChE Journal, **18**, 294~299, (1972)
- 5) H. Majima and Y. Awakura: Metall. Trans. B, **16B**, 433~439, (1985)
- 6) H. Majima and Y. Awakura: Metall. Trans. B, **19B**, 347~354, (1988)
- 7) Y. Awakura, T. Michimoto, Y. Takeshima and H. Majima: Denki Kagaku, **51**, 302~309, (1983)
- 8) Y. Awakura, H. Ito and H. Majima: Denki Kagaku, **53**, 370~374, (1985)
- 9) Y. Awakura, K. Matsumoto and H. Majima: Denki Kagaku, **52**, 659~665, (1984)
- 10) S. K. Park, Y. Awakura and H. Majima: Metall. Trans. B, **20B**, 13~20, (1989)
- 11) Y. Awakura, S. K. Park, S. Morinaga and H. Majima: Denki Kagaku, **54**, 240~244, (1986)
- 12) Y. Awakura, S. K. Park and H. Majima: Metall. Trans. B, **20B** (1989) in Press
- 13) A. B. Zdanovskii: Trudy Solnyanoi Laboratorii Akad. Nauk, USSR. No. 6 (1936)
- 14) H. Chen, J. Sangster, T. T. Teng and F. Lenzi: Can. J. Chem. Eng., **51**, 234~239, (1973)
- 15) H. Majima and Y. Awakura: Metall. Trans. B, **17B**, 621~627, (1986)
- 16) R. A. Robinson and R. H. Stokes: "Electrolyte Solutions", 2nd. ed., Butterworth Science Publi., (1959)
- 17) C. F. Baes: J. Am. Chem. Soc., **79**, 5611~5617, (1957)

○転勤・転居

〔 〕は旧
山本平一 660 尼崎市大浜町1-1-2 新興化学工業(株)尼崎工場 〔大阪工場〕
中村真史 781-19 高知県高岡郡仁淀村大植日鉄鉱業(株)鳥形山鉱業所〔本社生産部〕
鈴木康生 806 北九州市八幡西区洞南町1-1 三菱鉱業セメント(株)九州事業所 〔東谷鉱山〕
和田勝安 708-15 岡山県久米郡柵原町吉ヶ原1089 日本弁柄工業(株)柵原工場 〔日本弁柄工業(株)〕
石原 馨 105 住友金属鉱山(株)資源事業部技術部 〔秘書室〕
甲賀哲義 105 港区新橋5-11-3 住友金属鉱山(株)製錬事業本部事業室 〔別子事業所〕
大谷興也 375 藤岡市中387 東邦亜鉛(株)藤岡事業所 〔契島製錬所〕

春田清二郎 785 須崎市下分乙1101 日鉄鉱業(株)鳥形山鉱業所環境保安課〔本社〕
都留年晴 810 福岡市中央区大手門1-1-12 大手門パインビル 松島炭鉱(株) 〔池島鉱業所〕
亀井隆徳 通産省工業技術院 標準部標準課
金子皓一 761-31 香川県香川郡直島町4049-1 三菱金属(株)直島製錬所 〔本社製錬部〕
薛 自求 305 つくば市東1-1-3 地質調査所環境地質部 高橋 学 気付 〔北大・学生〕
小山了二 714-22 岡山県後月郡芳井町上鳴 鋼管鉱業(株)芳井鉱業所 〔技術部〕
安井 弘 105 港区虎ノ門2-10-1 日本鉱

業(株)研究開発本部 〔中研〕
鳥谷部主 住友金属鉱山(株)播磨事業所 〔別子事業所〕
佐藤和雄 横河電気(株)プロセス営業本部技術統括部 〔第3営業本部〕
樋口敏三 津山高等工業専門学校機械工学科 〔金属工学科〕
田中貴金属工業 254 平塚市新町831-1 〔平塚市長瀬2-14〕

○社名変更

LUCKY METALS CORPORATION
〔KOREA MINING & SMELTING CO., LTD〕
(株)トーケムプロダクツ 〔東北化学(株)〕
(株)シーコーレンス 〔(株)シーコーレンス商会〕
エヌ・イー・ケムキャット(株) 〔日本エンゲルハルド(株)〕