



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Transformation of iron oxide and hydroxide phases and its effects on contaminant mobility [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	Francisco, Paul Clarence Magdael
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第12468号
Issue Date	2016-09-26
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/63420
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/
Type	doctoral thesis
File Information	Paul_Clarence_Magdael_Francisco_review.pdf, 審査の要旨



学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称 博士 (工学) 氏名 Paul Clarence Magdael Francisco

審査担当者 主 査 教 授 佐藤 努
 副 査 教 授 五十嵐 敏文
 副 査 教 授 廣吉 直樹
 副 査 准教授 東條 安匡
 副 査 准教授 大竹 翼

学位論文題名

Transformation of iron oxide and hydroxide phases and its effects on contaminant mobility

(鉄酸化物および水酸化物の相変換と汚染物質の移行に対する影響)

鉄酸化物および鉄水酸化物鉱物は、地殻の中でも最も普遍的に存在する鉱物の一つである。しかもそれらの鉄鉱物は、多くの研究者によって有害元素の濃度や挙動を決める重要な物質として認識されてきた。また、合成するのが比較的容易なため、水処理や汚染浄化などの工学的な応用分野でも注目されてきた物質である。しかし、それらの多くが準安定な相であって、有害元素の長期のシンクとなりうるか否かは、安定相に変化する際の挙動の理解が必要不可欠である。しかし、その相変化挙動に溶存シリカ等のオキシ陰イオンの配位子が影響することは知られてきたが、その定量的な理解までには至っていなかった。放射性廃棄物処分や鉱山廃水におけるコロイド物質による有害元素の運搬など、鉄鉱物が重要な役割を期待されている工学分野において、有害元素の挙動予測には大きな不確実性が残っていた。そこで本研究では、溶存シリカや4価のセレンを例として、鉄鉱物の相変化挙動や収着有害元素の挙動へのオキシ陰イオンの影響を定量的に理解することを目的とした。

第1章では、鉄鉱物の相変化に対する現在の理解についてまとめるとともに、その一般的な性質や分布、工学的な応用例についてレビューした。

第2章では、天然環境で最も普遍的に存在する配位子の一つであるシリカが、非晶質鉄鉱物であるフェリハイドライトの相変化速度にどのような影響を与えるのかに焦点を当てて調べた結果を述べている。非常にわずかな溶存シリカが吸着しただけでも、準安定のフェリハイドライトが針鉄鉱や赤鉄鉱へ相変化を遅延し、その相変化の速度や活性化エネルギーなど、挙動予測に必要となる定量的なデータが新しく示されている。これらのデータは、高レベル放射性廃棄物処分場での鉄容器の腐食生成物の結晶化挙動を予測するのに非常に有用である。

第3章では、フェリハイドライトに収着した4価のセレンが、その結晶化の過程でどのように振る舞うのかを明らかにすることに焦点が当てられた。吸着・収着実験の結果、フェリハイドライトの相変化の過程で、共沈したセレンの一部は溶出されるものの、残りは結晶内に強く固定化されることが明らかとなった。その固定化メカニズムは、抽出実験やX線吸収分光分析などの結果により、結晶化の過程で集合した結晶粒子間にセレンが取り込まれることによることが明らかとなっている。これらのデータは、高レベル放射性廃棄物処分場での鉄容器の腐食生成物の結晶化に伴い収着したセレンの移行挙動を予測するのに非常に有用である。

第4章では、2・3章で明らかになったことを踏まえ、セレンを取り込んだフェリハイドライトの相変化に対する溶存シリカの影響を定量的に明らかにしている。溶存シリカは、吸着過程ではフェリハイドライトの吸着サイトをセレンと奪い合うことになり、セレンの吸着容量を下げる効果がある。しかし、溶存シリカによるフェリハイドライトの相変化の遅延は、結果として取り込まれたセレンの溶出遅延を導き、より長期間セレンを固相内に固定化することが可能であることも示唆している。

第5章では、準安定相鉄鉱物であるフェリハイドライトの安定性や有害元素取り込み能に対するシリカやセレンの影響についてまとめ、得られた定量的なデータを用いることにより、放射性廃棄物処分の安全評価、土壌中の有害元素の挙動予測、河川や鉱山廃水中における準安定相鉄コロイドによる有害元素の運搬等の工学的課題を解決することの可能性について言及されている。

以上を要するに、筆者は、放射性廃棄物処分場や鉱山廃水中で生成する準安定鉄鉱物の相変化や有害元素の吸着挙動を予測するために必要な定量的なデータを取得し、それらで主たる問題となっている有害元素の挙動予測を可能にする等、環境鉱物学や環境資源工学の発展に寄与するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格があるものと認める。