



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Behavior of Fe colloids in mine drainages of circumneutral and acidic pH : Implications from geochemical trends and Fe isotopes [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	Chikanda, Frances Semida
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第14683号
Issue Date	2021-09-24
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/83265
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Frances_Semida_Chikanda_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 Frances Semida Chikanda

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

学位論文題名

Behavior of Fe colloids in mine drainages of circumneutral and acidic pH: Implications from geochemical trends and Fe isotopes

(酸性および中性 pH の鉱山廃水における鉄コロイドの挙動: 地球化学的傾向と Fe 同位体からの示唆)

鉱山廃水は河川への重大な汚染源となりうる。鉄はほとんどの鉱山廃水に豊富に含まれており、廃水中においてもしくは河川と合流した際に鉄鉱物として沈殿するため、鉄の挙動を理解することは汚染水の水質浄化にとって重要である。特に鉄鉱物は天然環境においてナノ粒子を形成することが知られており、その表面積の大きさと移動性の高さから多くの研究が行われてきた。鉄のナノ粒子 (鉄コロイド) は鉱山廃水中で有害元素を除去するとともに下流へ移動し、地球表層での様々な元素循環に影響を与えることが報告されている。しかしながら、鉱山廃水中での鉄コロイドの詳細な挙動について着目した研究例は少なく、様々な地球化学条件下における鉱山廃水において鉄コロイドの形成と他の元素への影響を明らかにすることが必要である。本研究は相内鉱山跡地、精進川鉱山跡地という二つの異なる地球化学条件下にある鉱山廃水において調査を行った。採取した水試料を溶存態、コロイド態に分離するとともに、鉄同位体の測定や地球化学モデリングの適用によって、鉄コロイドの形成、移動を理解することを目的とした。

相内鉱山廃水は、pH がほぼ中性 (平均 7.1) であり、1 km ほどの自然流下水路において曝気により鉄、ヒ素、亜鉛濃度を低減させたのち、河川に放出している。廃水は溶存二価鉄に富んでおり、曝気後、速やかに三価鉄に酸化され、フェリハイドライトとして沈殿していた。生成したフェリハイドライトのコロイドは下流にて 300 nm 以上に凝集することで沈殿池にて堆積していた。ヒ素もコロイド態に分配されており、鉄鉱物との共沈によって廃水から除去されていると考えられる。また、雨量の多い梅雨時期においては、コロイドは比較的速やかに凝集しており、水量がコロイドの凝集速度に影響を与えていることも明らかとなった。

その一方で、精進川には酸性の鉱山廃水 (平均 3.1) が流入しており、廃水から溶存三価鉄、ヒ素、鉛などの有害元素が供給されている。河川水による希釈によって有害元素濃度が低減されている一方で、非汚染地域の精進川の pH は 6.9 と中性であり、廃水は精進川に流入することで pH がわずかに上昇する。pH 上昇による加水分解と廃水中の硫酸イオンの存在によって、河川流入後にシュベルトマナイトのコロイドが生成しており、ヒ素はシュベルトマナイト中に取り込まれていた。相内鉱山廃水とは異なり、精進川では鉄コロイドが中流域で一部溶解していることも確認された。しかしながら、下流域においては再びコロイド生成が顕著となり、凝集・沈降を通して有害元素濃度を

低減させていた。これらの鉄コロイド生成・凝集挙動の定量的な見積もりにより、精進川では相内鉱廃水よりも pH が低いことで、比較的ゆっくりとした反応速度で鉄コロイドの生成・凝集が起こっていることが明らかとなった。

本研究で行った新しい試みとして廃水および汚染河川中の鉄コロイドの鉄安定同位体比測定が挙げられる。相内鉱廃水では酸化沈殿により鉄コロイドが生成しており、溶存態とコロイド態で大きな同位体分別が確認され、溶存態はコロイド態と比較して軽い鉄同位体比を示した。溶存二価鉄の酸化沈殿時に通常考慮されるレイリー分別モデルによる同位体比変動と比較すると、測定されたコロイド態の鉄同位体比はモデルによる予測値から外れており、上流からのコロイド輸送によるためと考えられる。また、この差異を見積もることでコロイド輸送も定量的に理解できることを見出した。一方で、精進川では大きな鉄同位体分別は見られず、酸化還元反応を伴っていないことが要因と考えられる。

本研究で得られた鉱山廃水における鉄コロイドの地球化学的挙動の理解は、効率的な鉱山廃水処理法の設計に資すると考える。鉄コロイドは中性領域においては化学的には安定である一方で、酸性領域では一部溶解する可能性がある。また、本研究では地球化学モデリングや鉄同位体比測定を用いることで、鉄コロイドによる下流への元素輸送を定量的に見積もることに成功した。

以上を要するに、筆者は異なる地球化学条件にある鉱山廃水での鉄コロイドの挙動を、地球化学的および鉱物学的手法を用いて明らかにした。これらの成果は、効率的な鉱山廃水処理法の設計や海水への鉄の流入フラックスにおける人為的影響の見積もりを可能とするものである。したがって筆者の研究は環境地質学や環境資源工学の発展に寄与するところが大きなものがあり、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。