



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Enhanced cementation for heavy metal removal and recovery using aluminum as electron donor and electro-conductive particles as electron mediator [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	Choi, Sanghyeon
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第14684号
Issue Date	2021-09-24
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/83266
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Choi_Sanghyeon_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 Choi Sanghyeon

審査担当者 主 査 教 授 廣吉 直樹
 副 査 教 授 五十嵐 敏文
 副 査 准教授 坂入 正敏

学位論文題名

Enhanced cementation for heavy metal removal and recovery using aluminum as electron donor and
electro-conductive particles as electron mediator

(電子供与体アルミニウムと電子媒介粒子を用いた重金属回収・除去のための高効率セメンテーション)

セメンテーションは、溶液中の金属イオンを、電子供与体として働く別の 0 価金属の表面に還元析出させて除去回収する方法であり、金属製錬や環境修復 (汚染水等からの有害金属イオンの除去) に用いられている。アルミニウムは熱力学的に他のほとんどの金属イオンを還元除去できる能力があり、毒性が低くて 2 次汚染を引き起こさないことから、環境修復を目的としたセメンテーションにおいて理想的な電子供与体である。しかし、表面に電子移動を阻害する絶縁性の酸化物薄膜が存在し、これがアルミニウムを用いたセメンテーションを実用化する際に制約となっていた。強酸性、強アルカリ性、高温などの条件下では絶縁性の表面薄膜が溶解除去され、アルミニウムをセメンテーションに利用できるようになる。しかし、このような極端な処理条件を汚染環境の現地修復に適用することは難しい。最近、金製錬へのセメンテーションの応用に関する研究の中で、活性炭をアルミニウムと併用すると、アルミニウム表面に酸化物薄膜が存在する条件でも、活性炭粒子がアルミニウムから金イオンへの電子移動を媒介する役割を果たして高効率に金の還元析出が進行することが報告された。本論文は、この先行研究を発展させて、重金属汚染環境の現地修復などに利用可能な新たなセメンテーション技術を開発することを目的としたものである。

第 1 章では、本研究の背景や目的、先行研究についてまとめている。

第 2 章では、アルミニウムと活性炭を用いたセメンテーション実験を行い、硫酸イオンを含む弱酸性の溶液から重金属イオン (カドミウム、コバルト、ニッケルおよび亜鉛イオン) を除去・回収することを検討している。溶液分析、固形産物の表面分析および電気化学実験の結果から、(1) アルミニウム表面に絶縁性の酸化物薄膜が存在する場合でも、活性炭を併用すると溶液から重金属イオンを除去できること、(2) 活性炭粒子はアルミニウム表面に付着して重金属イオンへの電子移動を媒介し、重金属イオンを還元析出させることを確認している。この結果は、活性炭を併用すると、アルミニウム表面の酸化物薄膜を除去するこなく、重金属イオンを除去できることを示すものである。

第 3 章では、塩化物イオンを含む弱酸性溶液からの重金属イオンの除去について検討している。塩化物イオンはアルミニウムイオンと可溶性の錯体を形成するので、塩化物イオンを含む溶液中では電子移動を阻害するアルミニウム表面の酸化物薄膜が溶解する。このため塩化物溶液中では、活性炭がなくても、鉛イオンやカドミウムイオンはほぼ全量がアルミニウム上に還元析出して除去された。一方、コバルト、ニッケル、亜鉛イオンは水素イオン還元反応との競合や金属イオン自体の還

元反応速度の遅さから、除去率が低かった。活性炭をアルミニウムと併用するとコバルト、ニッケル、亜鉛の除去率は増大したが、鉛やカドミウムイオンの除去率は低下した。これらのメカニズムについて電気化学実験や産物の表面分析の結果に基づいて議論している。

第4章は、活性炭に代わる電子媒介粒子を検討している。活性炭に替えて、ルチル(酸化チタン)や石英をアルミニウムと併用してセメンテーション実験を行い、重金属イオン(コバルトおよびニッケルイオン)の除去・回収に及ぼす効果を調べている。溶液分析や産物の表面分析により、(1) 重金属のセメンテーションは絶縁性の石英粒子を併用した場合には起こらないが、半導体性のルチルを用いると著しく促進されること、(2) コバルトやニッケルはアルミニウム表面に付着したルチルの上に還元析出していた。これらの結果は、活性炭に限らず、各種の電気伝導性の粒子が電子媒介粒子として利用可能なことを示唆している。

第5章では、新たな電子媒介粒子としてマグネタイトを用いてセメンテーション実験や電気化学実験を行い、硫酸イオン溶液からのカドミウムと亜鉛イオンの除去・回収を検討している。これらの重金属イオンがアルミニウム表面に付着したマグネタイト上に還元析出することや、アルミニウム電極の表面に付着したマグネタイト粒子は電子媒介粒子として機能し、電荷移動抵抗を著しく減少させることを明らかにしている。また、セメンテーション産物を磁力選別すると、析出した重金属の大半はマグネタイトとともに磁着物側に回収され、非磁性のアルミニウムから選別できることも確かめている。

第6章は、結論であり、本論文で得られた主要な成果を総括している。

以上を要するに、著者は、電子移動を阻害する酸化物薄膜を除去するための特殊な処理を施すことなく、アルミニウムを電子供与体として利用して水溶液中の重金属イオンを除去・回収する新たな技術を提案し、その有効性とメカニズムを実験で確かめており、資源環境工学、金属製錬工学の発展に寄与するところ大である。よって、著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与されるにふさわしい資格があるものと認める。