



硫化 Fe 鉱物上に固定化した Hg の存在形態把握

小山 恵史¹, 石井 駿², 所 千晴^{1,3}

¹ 早稲田大学理工学術院, ² 早稲田大学創造理工学研究科, ³ 東京大学

キーワード：水銀，黄鉄鉱，最終処分

1. 背景と研究目的

水銀 (Hg) はメチル化することで容易に生物濃縮されて健康被害を引き起こすことが知られており、その廃棄においては厳格な管理が求められている。また、地表で最も普遍的な硫化鉱物である黄鉄鉱は Hg に対し高い親和性を示すことから、Hg の不溶化剤としての利用が検討されている。しかし、吸着態 Hg の安定性は周辺環境の遷移に伴って変化すると考えられるものの、埋め立て処分後の黄鉄鉱の状態変化に起因する Hg の再溶出などの長期的リスクに関する知見は乏しい。そこで、本研究では様々な酸化還元および pH 条件において Hg 吸着黄鉄鉱の酸化実験を実施し、その実験後試料表面の吸着 Hg を XANES (BL11S2) で分析することで Hg の存在形態を把握した。

2. 実験内容

好気 (大気) 条件と嫌気 (DO < 0.1 mg/L) 条件下において pH 2、6、10 に調整したイオン強度 0.05 mol/L の NaCl 溶液 (200 mL) に対し 4 g の Hg 吸着黄鉄鉱 (1 mg-Hg/ 1 g-黄鉄鉱、粒径は 106-150 μm) を添加した。500 rpm で攪拌しながら溶液中で反応させ、168 時間経過後、黄鉄鉱は 0.45 μm メンブレンフィルターでろ過回収し、凍結乾燥機で乾燥させて XANES (BL11S2、Hg L-edge) 分析に供した。

3. 結果および考察

上記の実験後の吸着態 Hg のスペクトルを Fig. 1 に示す。標準試料として黄鉄鉱及び水酸化第二鉄への吸着直後の Hg を用意し、線形結合フィッティング (LCF) により、実験後吸着態 Hg の化学形態を推定した。その結果、好気条件下での実験後試料は pH が 2、6、10 と大きくなるにつれ、黄鉄鉱への吸着割合が 100 %、72 %、38 % と減少して水酸化第二鉄への吸着割合が増加した (R-factor < 1 %)。また、溶液中の Hg 濃度は高 pH ではほとんど変化しなかったが、低 pH では時間と共に増加した。これらより黄鉄鉱表面の Hg の再固定化機構は、黄鉄鉱の酸化溶解によって生じた水酸化第二鉄への吸着反応で説明され、黄鉄鉱の酸化速度が大きい高 pH で顕著であることがわかった。一方、嫌気条件の実験後試料への LCF では、いずれの pH 条件でも黄鉄鉱への吸着態 Hg が 100 % という結果が得られた (R-factor < 1 %)。また、溶液中の Hg 濃度は全 pH で好気条件に比べ 1/10 程度で、黄鉄鉱の酸化が吸着態 Hg の再溶出を進めることが示唆された。さらに、この条件では溶液中 Hg 濃度が pH 10 で最も高かった。これは、嫌気条件下では pH 10 でも酸化が進みにくく、水酸化第二鉄の生成量が少なかったために Hg 再固定が進まなかったとみられ、XANES 結果とも一致している。

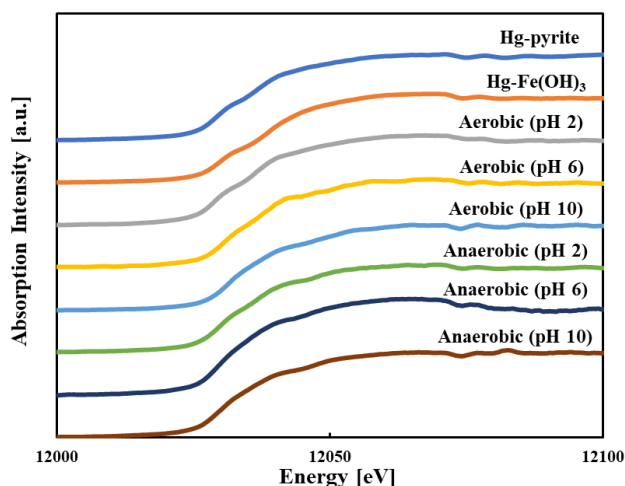


Fig.1 吸着態 Hg の XANES スペクトル

4. 参考文献

1. Bower et al., Environ. Pollut., **156**, 504-514 (2008)