

## **Abstract of Doctoral Dissertation**

### **Title: Heavy Metal Removal from Mine Drainage by Using Pilot- and Lab-Scale Constructed Wetlands**

Doctoral Program in Advanced  
Architectural, Environmental and Civil Engineering  
Graduate School of Science and Engineering  
Ritsumeikan University

グエン ティ トウオン  
NGUYEN Thi THUONG

This research aimed to investigate the applicability of constructed wetlands (CWs) to treatment of mine drainage containing heavy metals. This has been completed with 6 chapters. The main content of each chapter was presented as follows:

Chapter 1 described the research background, identifies research objectives, research scope, main tasks, and research significance. Mine drainage containing toxic metals is generally treated by physicochemical processes such as neutralization and coagulation. As a low-cost alternative process, constructed wetlands (CWs) are promising technology for mine drainage treatment.

Chapter 2 reviewed characteristics of mine drainage, discharging regulations, and treatment technologies for heavy metals. Mechanisms for metal removal in CWs and the importance of selecting substrates and plants were summarized.

Chapter 3 described the heavy metal removal from neutral mine drainage in Kyoto Prefecture of a closed mine in pilot-scale CWs planted with and without cattail. The CWs were operated for 3.5 months with hydraulic retention time (HRT) at 3.8-1.2 days. Results showed that the short HRT of 1.2 days was sufficient to achieve the effluent standard for Cd (0.03 mg/L) in the CWs. The planted CW showed higher metal removal efficiency than the unplanted CW. Heavy metals were removed mainly by adsorption to the soil in both CWs. The biological concentration factors in cattails were over 2 for Cd, Zn, and Cu. The translocation factors of cattails for all metals were 0.5–0.81. Sulfate-reducing bacteria (SRB) belonging to Deltaproteobacteria were detected only from soil in the planted-CW, and its population increased in the warm weather. Although cattails were a minor sink, the plants contributed to metal removal by rhizofiltration and incubation of SRB producing sulfide precipitates in the rhizosphere. These results encourage the spreading of CWs for mine drainage treatment in Japan.

Chapter 4 studied lab-scale CWs filled with clamshells for heavy metal removal from simulated acid mine drainage (AMD) of a mine in Tohoku region. Results demonstrated that CWs had high capability for heavy metal removal from synthetic acid mine drainage. Zn, Cd, Pb and Fe were almost completely (> 93%) removed by clamshell-based CWs. Accumulation in the substrates was a main pathway for heavy metal removal, contributing 49.7–82.5%, followed by plant uptake (16.1–39.0%), and other processes (0.6–3.2%). Higher metal removal in the clamshell-based CWs than in the gravel-based CWs demonstrated clamshells as a potential substrate for removal of heavy metals from AMD. This encourages recycling seashells for wastewater decontamination. By that way, it contributes to reducing solid waste in a simple, cheap, and eco-friendly way.

Chapter 5 clarified the applicability of CWs filled with oyster shells (OS) for heavy metal removal from AMD. This was operated under a HRT of 7 days in a sequencing batch mode. The effluent pH values of the CWs reached 6.9–8.3. OS with high content of CaCO<sub>3</sub> had higher neutralizing ability for AMD than limestone. During the 7 months of operation, all CWs were highly effective for removing Zn (88.6–99.2 %), Fe (98.7–99.7 %), and other metals such as Cd, Cu, Pb, As, and Mn (48.2–98.9 %) from both the actual and synthetic AMD. The mass balance study indicated that accumulation in substrates was a main pathway in removing heavy metals, representing 44.8–99.3% in all metals, followed by the biomass (8.8–29.9%) in the planted CWs. Other processes only played a minor role in removing heavy metals in this study. The higher metal removal in the OS-based CWs showed the valuable potential of this aquaculture byproduct as a filter medium. Additionally these experiments demonstrated that the lab-scale CW is a useful tool for feasibility studies on installing CWs for mine drainage treatment.

Chapter 6 summarized the main findings of this research, limitations, and recommendation for further studies. In this study, pilot- and lab-scale CWs were investigated for heavy metal removal from different mine drainages. All CWs showed high metal removal performance during the experiment period. To avoid clogging in CWs, the particle size of substrates should be selected carefully. The life span of CWs should also be estimated. The small-scale and lab-scale experiments are crucial steps for scaling up and designing practical CWs for heavy metal removal from mine drainages. Further studies should be investigated in the practical condition based on the valuable information obtained from this study.

# 博士論文要旨

## 論文題名: パイロットおよびラボスケールの人工湿地を使用した坑廃水からの重金属の除去

立命館大学大学院理工学研究科  
環境都市専攻博士課程後期課程

グエン ティ トゥオン

NGUYEN Thi THUONG

本研究は、重金属を含む坑廃水の処理への人工湿地の適用性の評価を目的としている。六章から構成されており、各章の内容は以下の通りである。

第1章では、鉱山から発生する坑廃水には、毒性を有する金属類が含まれており、一般的には中和と凝集沈殿による処理が施されているが、低コストの代替方法が必要とされている研究背景が述べられた。人工湿地がその方法として有望であり、坑廃水処理への適用性を評価する本研究の目的が述べられた。

第2章では、坑廃水の特徴、排水基準、および重金属に関する処理技術をレビューした。人工湿地による重金属除去メカニズム、適した基質と植物を選択する重要性も議論された。

第3章では、パイロットスケールの人工湿地を用い、京都府内のある鉱山の中性坑廃水からの重金属除去を試みた結果をまとめた。3.5カ月の実験期間において、水理的滞留時間(HRT)は3.8~1.2日に設定された。1.2日の短いHRTにおいても、人工湿地による処理は、Cdの排水基準(0.03 mg/L)を達成するのに十分であった。ガマを植栽した人工湿地は、植栽しなかった人工湿地よりも高い金属除去率を示した。重金属は、主に人工湿地の土壌への吸着によって除去された。ガマの生物濃縮係数は、Cd、Zn、およびCuで2を超え、根から葉への金属の移動係数は0.5~0.81であった。Deltaproteobacteriaに属する硫酸塩還元細菌(SRB)は、ガマを植栽された人工湿地の土壌からのみ検出された。ガマによる金属吸収は少量であったが、根圏による濾過と金属硫化物を形成するSRBを育成することで金属除去に貢献した。これらの結果は、坑廃水処理のための人工湿地の普及を促進するものである。

第4章では、東北地方のある鉱山の酸性坑廃水から重金属を除去するためのラボスケールの人工湿地を研究した。砂利を充填した従来型の人工湿地よりも、ミスハマグリの貝殻を充填した人工湿地は、模擬坑廃水から重金属を除去する高い能力を示した。Zn、Cd、Pb、およびFeは、人工湿地によってほぼ完全に除去された。重金属除去の経路は、基質への蓄積が49.7~82.5%、植物の取り込みが16.1~39.0%、その他が0.6~3.2%を占めた。これらの結果から、廃棄される貝殻を坑廃水処理に有効利用できる可能性が示された。

第5章では、牡蠣殻を充填したラボスケールの人工湿地を用い、酸性坑廃水からの重金属除去を試みた結果をまとめた。京都府のある鉱山の酸性坑廃水を対象とし、HRT 7日のシーケンシングバッチ方式で運転した人工湿地の処理水のpH値は6.9~8.3に達した。炭酸カルシウム

を主成分とする牡蠣殻は、石灰石よりも酸性坑廃水の中和能が高かった。実坑廃水と模擬坑廃水を用いた7カ月間の実験において、人工湿地は、Zn (88.6~99.2%)、Fe (98.7~99.7%)、およびCd、Cu、Pb、As、Mn (48.2~98.9%)の除去に効果的であった。重金属除去の主経路は、すべての金属で44.8~99.3%が基質への蓄積であり、ガマによる吸収が8.8~29.9%であった。牡蠣殻を充填した人工湿地による高い金属除去率は、水産養殖の副産物の有効利用の可能性を示した。これらの実験は、ラボスケールの人工湿地が、その実現可能性調査に役立つツールであることも示した。

第6章では、本研究の主な結果と今後の課題を要約した。パイロットおよびラボスケールの人工湿地によって、異なる化学組成の坑廃水から、高い重金属除去性能が示された。課題として、フルスケールの水理学的特性を考慮した上で、人工湿地の目詰まりを防ぐために、基質の種類や粒径は慎重に選択する必要があり、人工湿地の寿命も見積もる必要がある。以上のように、実規模での人工湿地の導入に向けて、ラボスケール、パイロットスケールにおける重要な成果を得ることができた。