

氏名	ABDELRAHMAN MOHAMED ABDELGAWAD
博士の専攻分野の名称	博士 (学術)
学位記号番号	博理工甲第 709 号
学位授与年月日	平成 21 年 3 月 24 日
学位授与の条件	学位規則第 4 条第 1 項該当
学位論文題目	A Synthesis of Hydrogeochemical Studies on the Fluoride-rich Groundwater in Mizunami Area, Japan (瑞浪地域における、フッ素の多い地下水の地球化学的研究)
論文審査委員	委員長 教授 渡邊 邦夫 委員 教授 桑野 二郎 委員 教授 小松登志子 委員 准教授 小口 千明 委員 准教授 長田 昌彦

論文の内容の要旨

Fluoride-rich groundwater exceeding the Japanese environmental standard level (0.8 mg/l) was observed in the groundwater of Mizunami area, Japan. Previous research in Mizunami area suggested that the occurrence of fluoride in the groundwater is mainly due to the interaction between fluoride-rich minerals in granitic rock and groundwater. In this study the existence of fluoride in rock forming minerals was investigated by performing mineralogical analysis, water-rock interaction test and numerical modeling.

In Mizunami area the basement is mainly granite, and it is overlain by sedimentary rock. The upper thin layer of granite is weathered; however other parts of granite are more or less altered and the deepest part of granite is extremely altered.

At first, the fluoride contents in granitic rock were measured by collecting several granitic specimens from a boring core of a deep inclined borehole drilled at Mizunami Underground Research laboratory construction site (MIU-site) named MIZ -1 borehole. Results showed that the fluoride content varied even among specimens collected from almost the same depth. The range of the fluoride content measured at different depths is 200-1300 mg/kg in granitic rock.

Nine granitic specimens were collected from different depths of the core MIZ-1 borehole. Microscopic observation was performed for thin sections made from some of the collected specimens using optical microscopy. These observations show the mineral conditions and its textures. The major observed minerals by optical microscopy are quartz, plagioclase, K-feldspar and biotite. However the sections show the condition of minerals suffered by water-rock interaction and/or the past hydrothermal alteration. The original mineralogical compositions of these hydrothermal altered Toki granites are approximately similar to that of non-altered granite. It is also observed that, the mineral crystals in the extremely altered granite were destroyed and cholritized, then the colour of these specimens changed into green in colour. In addition the highly and extremely altered granite contains small amount of sericite, clays and iron oxides.

Water-rock interaction tests were performed to investigate the factors affecting the fluoride concentration. The maximum reaction times for the experiments continued for 80 days. For all experiments, the amount of the fluoride ion was roughly measured using the ion selective method (Pack test), and pH and Eh values were measured using a pH meter (Eutech pH 510). Chemical analysis for cations and anions were performed at an interval time 3, 8, 12, 20, 30, 40, 60, and 80 days using Inductively-Coupled Plasma optical-emission spectrometry (ICP-OES; Varian VISTA-MPX) and Ion Chromatography (IC; Dionex DX-120), respectively. The increase of fluoride concentration versus reaction time is displayed in Figure 1(b).

論文の審査結果の要旨

環境基準を超える高フッ素イオン濃度の地下水は、花崗岩質岩石の分布地域を中心に世界各地で報告されている。瑞浪地域においても、現在建設中の瑞浪深地層研究所の立坑掘削時に高フッ素イオン濃度を持つ地下水が大量に湧出し、フッ素の処理施設が準備できるまで掘削が中断した。本研究は、高フッ素イオン地下水の形成過程を、瑞浪地域に分布する花崗岩試料を用いて長期の水・岩石相互作用実験により研究した結果を取りまとめたものである。

本論文では、研究成果を8章に分けて記述している。

第1章は、論文の導入であり、本研究の動機、背景などが取りまとめられており、地下水中のフッ素起源の研究が大事であることが記述されている。

第2章では、従来の研究のレビューが記述されている。その中で地下水質、とくに地下水中のフッ素に関する従来の研究がまとめられている。

第3章では、研究に用いた地域である瑞浪深地層研究所周辺地域の説明がされている。まず、同研究所の目的などの記述に続いて、その周辺の地形・地質、地下水流動、地下水質、花崗岩の鉱物学的特性などが説明されている。

第4章では、本研究で行われた実験について記述されている。まず、水-岩石相互作用に用いた岩石試料が、瑞浪超深地層研究所内のボーリングコアから深度を変えて採取されたことが述べられ、それら試料について本研究で行われた鉱物学的な検討結果がまとめられている。ついで、実験の方法、例えば、試料を粉末にして特定の粒度のものを実験に用いたことや、実験時の温度などの条件、水質分析に用いた機材（ICP-OESなど）が説明されている。

第5章では得られた実験結果について述べている。実験中のPH, Ehなどの状況が説明され、フッ素イオン濃度の変化が実験開始後80日まで示されている。これによれば、全体としてフッ素イオン濃度は時間と共に上昇するものの、上昇の大きさは試料によって大きなバラつきがあった。このバラつきについて、フッ素の主要な起源となる蛍石の存在量が試料によって大きな差があったことによるものであることを示した。さらに、フッ素と共存するイオン濃度の経時変化を記述している。また、実験前と、実験開始80日後の試料の鉱物分析を行い、蛍石を含め、鉱物組成には変化が無い事を示した。つまり、この実験によって溶解した鉱物量は極めて微量である。本章では加えて、実験結果と、対象地域にあるいくつかのボーリング孔で得られた水質との比較を行なっている。その結果から、本実験結果が、降雨の浸透地域の地下水質をうまく表現している事を明らかにした。一方、地下水の流出域では、実際のフッ素濃度は実験値に比べて大きく、これは長期の地下水流動によるものと結論付けた。

第6章では、実験及び実際の現場のフッ素濃度が、飽和、つまり平衡状態に達しているかどうかを検討している。検討では、近似的に蛍石の溶解のみを考えた。その結果、野外で測定された多くの水質がフッ素に関してほぼ飽和状態に近いことに対し、実験では不飽和である事を示した。

第7章では、フッ素濃度の変化を解析している。まず、フッ素イオン濃度変化が、反応時間の関数と共存イオン濃度の関数との線形和で表現した。ここで、共存イオン濃度は、岩石に含まれる蛍石の量、石英や長石など他の鉱物量、PHなどの化学的条件を表すものと考えた。また、共存イオン濃度の影響が、近似的に一定の重みを乗じた線形和で表しうるものと近似した。この仮定に基づき、実験結果から、各共存イオン濃度の重みを算定した。この算定に当たっては遺伝的アルゴリズムを用いた。この式が、実験結果を良く表現しうる事を確認した上で、野外のフッ素イオン濃度と共存イオン濃度から反応時間、つまり、地下水の滞留

時間を推定した。その結果、滞留時間は、深度や降雨浸透地域と地下水流出地域によっても異なるが、地下 200 から 300m の深部であっても、滞留時間は数十年以下となった。この滞留時間は深度が小さいほど、また降雨浸透地域ほど小さい。この結果を検証するため、地下水流動の数値シミュレーションを行ない、水質が測定されている深部まで、どの程度の時間で到達するかを計算し、フッ素濃度から推定された滞留時間と比較した。その結果ほぼ一致しており、本研究で提案した定式化が妥当であることが明らかとなった。

第 8 章は、本論文のまとめであり、今後の研究の発展方向が示唆されている。

本研究は、岐阜県瑞浪地域に分布する花崗岩の鉱物学的性質を明らかにした上で、採取深度の異なる花崗岩試料と水との長期反応実験を行い、フッ素イオン濃度の変化を明らかにした上で、その変化の定式化を行ったものである。定式化の妥当性は、地下水シミュレーションにより検証した。地下水質分析と地下水流動解析の総合化を行うなど、手法の新規性は高い。また、地下水滞留時間などに関して多くの新知見を得た。

以上から、本論文は博士学位論文として十分と判断して合格とした。