

論文審査の結果の要旨

氏名 サカンバリ パディ

フッ化物による地下水汚染は、飲用水としての利用に対する問題や生態系に対する影響等が懸念される重要な環境問題の一つである。この汚染は、自然由来のものと人為由来のものがあるとされているが、前者については、一般にフッ素を含む鉱物と地下水との岩石・水反応が主要な過程とされている。一方、条件によっては、土壤中に保持されている溶脱可能なフッ化物も、地下水汚染の原因となりうることが示唆されており、土壤中のフッ化物の輸送過程並びに吸脱着プロセスについて、定量的な理解を深めるとともに、その過程の説明が可能なモデルを提示することが重要な課題となっている。

本論文は、土壤中のフッ化物の挙動について、その定量的な理解に必要なデータを取得するとともに、表面錯体モデルを適用することにより、実験室スケールでの現象を精緻に表現することを試みたものであり、6章からなる。

第1章では、研究の背景、目的、論文の構成を述べている。ここでは、フッ化物による地下水汚染が世界的な問題となっていることを述べるとともに、実際に、インド並びに日本国内での現地調査に基づく地下水汚染の実態と土壌の特性、降水量等について比較検討を行っている。既存研究成果の整理並びに現地調査の結果に基づき、土壌から溶脱されるフッ化物による地下水汚染が、条件によっては十分に想定されることが述べられるとともに、その過程を適切に評価し、モデル化することの重要性が述べられている。また、本論文の構成について述べられている。

第2章では、本論文で用いられている研究の手法並びに化学分析法について記述がなされている。

第3章では、土壌を構成する主要鉱物のひとつである方解石を用いたフッ化物の吸着試験について、その結果が述べられている。フッ化物の吸着量は、pHの増加に従い減少すること、また、イオン強度が吸着量に影響を与えることが示されている。また、表面錯体モデルの一種である一定表面電荷モデルを用いることにより、フッ化物の液相からの除去過程を表現することに成功しており、表面錯体定数を得ている。さらに、熱力学的アプローチに基づき、フッ化物表面錯体の化学形態の検討を行っている。

第4章では、実土壌によるフッ化物吸着過程に関して検討を行っている。土壌試料として、花崗岩質土壌を筑波山麓の露頭から採取し、その詳細な土壌特

性評価を行っている。その後、バッチ試験を実施し、吸着速度の評価とともに、平衡条件での結果の評価を行っている。フッ化物の吸着量は、pH に強く依存し、また、固液比にも強く依存することが示されている。さらに、アルミニウムが、フッ化物の吸着に伴い液相に移行することも認められている。この現象は、溶液のイオン強度に関係していることも示されている。吸着速度に関しては、擬二次反応モデルにより、良く説明されることが示され、その速度定数からは、吸着過程が速いことも示されている。さらに、包括的表面サイトへの吸着を考慮し、一定表面電荷モデルを用いた検討を行っている。ここでは、溶液中の化学形態の検討から、アルミニウム-フッ素錯体が AlF_2^+ 並びに AlF_3 として存在すると予測されることから、 AlF_2^+ を吸着モデルに導入している。その結果、実験結果は、イオン交換、表面吸着、 AlF_2^+ としての吸着によって非常によく説明されることが示されている。

第 5 章では、室内カラム実験により、土壌中のフッ化物の挙動について検討がなされている。試料に用いた土壌は、第 4 章で用いたものと同じ筑波山麓から採取した花崗岩質土壌である。吸着過程では、フッ化物イオンの破過に 17 間隙体積分の溶液の流入が必要であり、脱離過程では、極めて長いテーリングが認められている。この現象は、一般によく用いられている線形吸着モデルでは全く説明することができないが、第 4 章で得られた表面錯体モデルを用い、固液比に関する補正項を導入することにより、少なくとも脱離過程に関しては結果の再現が可能であることを示している。また、間隙中を流動領域と不動領域とに分けるアプローチは、本研究で実施された実験条件の再現に関しては有意義ではないことも示されている。

第 6 章では、本論文の内容を総括している。

なお、本論文第 3 章は、徳永朋祥との共著論文として公表しているが、論文提出者が主体となって実験・解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

以上要するに、本論文では、フッ化物の土壌中挙動に関して、室内実験に基づき、表面錯体モデルの適用性を明らかにするとともに、フッ化物による汚染が顕著にみられることが多い花崗岩質土壌を対象として表面錯体定数を求めている。また、その結果を流動と吸着・脱離が進行する過程に応用し、室内実験で得られた結果をよく説明するモデルの提示に成功している。これらの結果は、世界の多くの地域で問題となっている地下水のフッ化物汚染に関して、土壌起源のフッ化物の寄与に関する定量的な評価を可能にしたものであり、地圏環境学の観点から、その意義が大きいものと認められる。よって、本論文は博士（環境学）の学位請求論文として合格と認められる。

以上 2,093 字