

氏名(本籍)	たか や やす ひこ 高屋康彦(静岡県)
学位の種類	博士(理学)
学位記番号	博甲第3709号
学位授与年月日	平成17年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	生命環境科学研究科
学位論文題目	<b>Surface Alteration during the Early Stage of Weathering of Granite and Its Constituent Minerals under Acidic Conditions</b> (酸性条件下におけるかこう岩およびその構成鉱物の初期風化の間の表面変質)
主査	筑波大学教授 理学博士 松倉公憲
副査	筑波大学教授 理学博士 松岡憲知
副査	筑波大学教授 理学博士 田中正
副査	筑波大学助教授 理学博士 池田宏

### 論文の内容の要旨

酸性条件下におけるかこう岩およびその構成鉱物 (annite, albite, microcline および quartz) との初期風化の間の表面変質の特徴を明らかにするために、溶解実験を行い、得られた試料を表面分析した。溶解実験には、閉鎖・バッチシステムを採用し、溶液の攪拌を行わず静穏な環境を保った。また、反応特性に及ぼす pH の影響を調べるために系統的に pH を変えた酸性水溶液 (初期 pH=1, 3, 4, 5) を、岩石特有の反応を調べるために、同一形状に整形した鉱物単結晶と岩石を用いた。2 種の表面分析のうち AFM では結晶表面の観察を行い (かこう岩以外)、XPS では表面の化学組成・結合状態を求めた。

かこう岩構成鉱物の変質においては、Fe oxides, Al oxides, Si oxides および Si and Al oxides が形成された。弱酸性条件下の annite の変質では、板状の Fe oxides が沈殿した。Al oxides が沈殿しなかった原因は、水溶液中の他の陽イオンによる沈殿の抑制効果である。中性から弱酸性条件下の albite と microcline の変質では粒子状の Al oxides が沈殿した。それは albite で顕著であり、両者の間の差異は、化学組成および結晶構造に起因する溶解特性による。Si oxides は、幅広い pH 条件下で 3 種のメカニズムによって形成された。それらは溶解反応の進行度によって次のように順位づけられた；(c) 水和 < (a) 加水分解 - 再重合 < (b) 溶解 - 沈殿。中性から弱酸性条件下の quartz の変質において、(c) が認められた。酸性から強酸性条件下では、各試料で (a) が認められ、さらに annite および albite の変質においては (b) も認められた。その生成物は球に近い形態的特徴を有していた。Si and Al oxides は、albite の酸性条件下の変質において、(a) に続く (b) の反応で沈殿した。

かこう岩の表面変質では、Fe oxides と Si oxides が形成された。中性から弱酸性条件下では、plagioclase が溶解し、pH が増加した。それによって biotite から溶出した Fe が Fe oxides として速やかに沈殿した。酸性から強酸性条件下では、鉱物組成において量比の少ない biotite の溶解が卓越した。このようにかこう岩の溶解では、反応複数の構成鉱物の中で優勢な鉱物が pH によって変化した。

4 種のかこう岩構成鉱物において反応性が高い鉱物は annite と albite であり、低い鉱物は microcline と

quartzであった。両グループの間の反応性における差異は、溶解反応の進行度（すなわち主要元素であるSiの溶出）にあった。かこう岩中の鉱物においては、biotiteの反応性が非常に高かった。試料表面に露出したbiotite結晶粒は、その物理的性質（細かな鉱物粒径、ランダムな結晶面の方向性による縁部の露出、露出面における均一なbiotite結晶粒分布等）の影響を受けて、速やかに溶解が進行した。中性から弱酸性条件下におけるかこう岩中のbiotiteの変質とplagioclaseの変質の間には、次のような関係があった；(1) plagioclaseの溶解によるpH増が、biotiteの変質によるFe oxidesの沈殿を促進する、(2) biotiteの溶解による水溶液中の陽イオンが、plagioclaseの変質におけるAl oxidesの沈殿を抑制する。これら2つの関係は、結果として、中性から弱酸性下のかこう岩の初期風化におけるbiotiteの変質の反応性を高めると考えられる。

### 審 査 の 結 果 の 要 旨

岩石-水反応としてのかこう岩の風化メカニズムを明らかにするために、従来の溶液の水質分析からではなく、岩石・鉱物表面の固体側の変質を捉える、という立場からアプローチした意欲的な研究である。種々の酸性条件下での実験を行い、試料の分析にはAFMやXPSなどの最新の分析機器が使われた。ナノメータ・オーダーのミクロな解析がなされた結果、かこう岩の初期風化のプロセスが詳細に解明された。この研究は、地形学、とくに風化学の分野に新たな知見を加えたものとして、またこの分野の新しい研究法の方向性を示したものとして高く評価できる。

よって、著者は博士（理学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。