

論文審査の結果の要旨

氏名 田副博文

海水中の希土類元素濃度パターンは、海洋の循環や物質フラックスの解明に多くの有用な情報を与える。特にセリウム (Ce) やネオジム (Nd) は、それぞれ他の希土類元素から放射壊変によって生成した娘核種を同位体にもつことから、これらの同位体比から各元素の供給源を推定することもできる。しかし Ce の場合、海水 1kg 中に数 pmol レベルというごく低濃度でしか存在しないために、正確な同位体比を測定するにはこれまで多くの困難があった。本研究は、海水中の Ce 同位体比 ($^{138}\text{Ce}/^{142}\text{Ce}$) を精度よく分析する手法を開発し、その技術を海洋観測に応用して多くのデータを取得し、海洋学的意義のある議論を進めることに世界で初めて成功したものである。

本論文は 7 章からなる。第 1 章は序論として本研究の目的、第 2 章は海水試料の採取と Ce の分離・分析方法の詳細、3 章は本研究で達成された Ce 同位体比が従来研究に比べて格段に高い分析精度を持つことの検証が示されている。4 章以降は、実際に海洋で得られた Ce 同位体比データとそれらの解析結果であり、4 章では表層水中の水平分布、5 章では海洋表層から深海底に至る鉛直分布、さらに 6 章では Nd 同位体比データも組み合わせての総合的なデータ解析の結果について考察がなされている。7 章は全体の結論である。

本研究にとって、大量の海水試料から極微量 Ce の回収、および高精度分析法の確立が大きな位置を占めている。第 2 章に詳述されているように、論文提出者はマンガン酸化物を被覆したカートリッジ型ポリプロピレンファイバー (Mn ファイバー) を用い、数百リットルに及ぶ大量の海水から Ce を濃縮する方法を開発した。また表面電離型質量分析計を用いて Ce 同位体比を測定する際、妨害となる他の希土類元素同重体の影響を除くために、臭素酸カリウムによって Ce のみ 4 価に酸化し、Ln resin を用いて Ce を単離する手法を新たに開発した。これらを効果的に組み合わせて、Ce 同位体比の高精度分析法として完成させたことは、従来にはない独創的な手法として高く評価される。次いで第 3 章に述べられているように、本研究による Ce 同位体比の ϵ 値 ($\epsilon_{\text{Ce}} =$

$(^{138}\text{Ce}/^{142}\text{Ce})_x / (^{138}\text{Ce}/^{142}\text{Ce})_{\text{std}} - 1) \times 10^4$ の分析精度 ($\pm 2\sigma$) が $\pm 0.2 \sim 0.7$ と、過去の測定例の精度 ($\pm 1.2 \sim 6.2$) を遥かに凌ぐ高精度を達成している。海水中の地殻起源 Ce ($\epsilon_{\text{Ce}}: +1.3$) とマントル起源 Ce ($\epsilon_{\text{Ce}}: -1.4$) を、同位体比を用いて識別することを初めて可能にしたことの意義は極めて高いと評価される。

第 4~6 章では、上記の手法を実際の海洋観測に応用し、西太平洋表層水の Ce 同位体比分布 ($\epsilon_{\text{Ce}}: -0.4 \sim +1.8$) と、相模湾及び南極ロス海における Ce 同位体比鉛直分布を初めて明らかにするとともに、海洋学的な観点から濃度・同位体比分布の特徴と Ce の起源について考察を進めている。表面海水中には赤道域から供給される島弧火山起源 Ce の低い ϵ_{Ce} 値と、ユーラシア大陸起源 Ce の高い ϵ_{Ce} 値が相対していることを、西太平洋の広範な海域にわたる海水の実測データから詳述している。このような分布パターンは Nd 同位体比データにも共通して観測されるが、Ce の方が Nd に比べ海洋における平均滞留時間が短い (海水から除去されやすい) ことから、よりローカルな現象を鋭敏に反映することを明確に示している。また、Ce の濃度・同位体比の鉛直分布が、海水の循環、陸からの物質供給、および海水・海底堆積物間の物質交換によって規制されていることを、緻密なデータ解析から明らかにしている。高精度 Ce 同位体比データに基づくこれらの海洋地球化学的議論は、論文提出者の高度な海洋観測・分析化学的技術と優れた海洋学的洞察力との組み合わせで初めて可能となったもので、国際的にも十分通用する高度な内容と評価される。

なお、本論文の第 2 章以降は、小畑元、天川裕史、野崎義行 (故人)、および蒲生俊敬との共同研究であるが、論文提出者が主体となって試料採取、化学分析、およびデータ解析・考察を進めたもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士 (理学) の学位を授与できると認める。