

論文審査の結果の要旨

氏名 池端 慶

本論文は4章からなる。

第1章は序論であり、この論文の目的と研究背景が述べられている。まず銅の化学的、物理的性質、隕石中、地球内での濃度について、次に隕石、地球物質についての同位体比データがレビューされている。後半部分では銅の同位体比測定の分析法がレビューされている。試料の化学的分解と銅の化学的精製を必要とする溶液試料を用いた同位体比測定に比べ、局所分析が可能なレーザーアブレーションによる試料導入により、二次的に生成した鉍物の影響を排除した一次的な同位体比の情報が得られる可能性が指摘されている。しかし従来のナノ秒パルスレーザーでは、金属などの良熱伝導試料のアブレーションが難しく、同位体比の高精度化のためにはフェムト秒レーザーによる分析が必要であることが強調されている。申請者は本研究の目的を、フェムト秒レーザーを用いたレーザーアブレーション試料導入法を開発し、銅の正確で高精度の同位体比測定法を開発し、その方法を地球化学試料に適用し、地球内での銅の同位体比の変動とそれをひきおこすメカニズムを調べると述べている。

第2章はフェムト秒レーザーによるレーザーアブレーション導入システムを用いたICP質量分析計での銅同位体比分析法の開発について述べられている。まず、分析に用いた試料と同位体比の標準物質、分析装置、測定装置内で起こる質量分別効果の補正などの同位体比測定法の詳細について記述している。質量分別効果の補正は、同位体比既知の同位体比標準を測定試料の前後に分析し、質量分別が標準と未知試料の間で等しいと仮定して行われている。

申請者はレーザーアブレーション分析により得られた種々の地球化学的試料の銅の同位体比を、より正確な溶液法により分析して得た値と比較する実験をしている。金属銅試料を同位体比標準として用いた場合、試料が硫化鉍物や炭酸塩鉍物など主成分元素組成が異なる場合、レーザーアブレーション時の同位体分別の程度が異なり、正確な同位体比が得られないことが明らかになった。分析する試料と似た化学組成を持つ同位体比標準を作成し、それを用いて、アブレーションの際におこる同位体比分別を補正することが必要であることが明らかになった。以上の実験の結果から、

$\delta^{65}\text{Cu} = [((^{65}\text{Cu}/^{63}\text{Cu})_{\text{sample}} / (^{65}\text{Cu}/^{63}\text{Cu})_{\text{standard}} - 1) \times 1000]$ で定義される $^{65}\text{Cu}/^{63}\text{Cu}$ の標準物質との千分の一偏差 $\delta^{65}\text{Cu}$ で示すと、本論文で開発した測定法により 0.1% の正確さで測定可能になったことが述べられている。この章の結果は国際的な分析化学誌に発表されている。

第3章では、第2章で開発された方法と溶液試料の方法を併用して、多くの地球化学的試料の分析を行った結果がまとめられている。捕獲岩試料、別子型銅鉍床、黒鉍型銅鉍床についてはレーザーアブレーション試料導入法を用いた同位体比分析が行われ、中央海嶺玄武岩、伊豆諸島の火山岩、火山昇華物については溶液法による分析が行われている。捕獲岩試料、別子型銅鉍床、黒鉍型銅鉍床からの試料の中の高温で生成した一次的な銅鉍

物の同位体比は $\delta^{65}\text{Cu}$ が -0.18 から 0.49‰ の範囲に集中している。中央海嶺玄武岩、伊豆諸島の火山岩の銅も同じ領域の同位体組成を持っていることが示された。これから申請者は上部マントルの銅同位体比は均質な組成を持つと結論している。島弧地域の火山岩が中央海嶺玄武岩と同じ銅同位体比を持つことが示されたのは初めてのことである。一方、低温で二次的に生成した銅鉱物は、 $\delta^{65}\text{Cu}$ が -0.62 から 2.93‰ の広い変動を示している。申請者は低温での風化や変質現象のさいに銅の酸化状態が変化することにより大きな同位体比分別がおけると結論している。

第4章では、本研究で得られた成果をまとめ結論を示している。

以上のように、申請者はフェムト秒レーザーをアブレーションに適用することにより、レーザーアブレーションによる局所銅同位体比測定の高精度化に成功した。開発した方法を種々の地球化学試料に適用し、地球の上部マントルの中で銅同位体比が均質であることなどを明らかにした。これらの成果は同位体地球化学への大きな貢献と評価することができ、学位授与にふさわしいと判断できる。

なお本論文の第2, 3章は、野津憲治、平田岳史らとの共同研究であるが、論文提出者が主体となって分析及び検証を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。