

論文審査の結果の要旨

氏名 小泉 早苗

本論文は6章からなる。第1章はイントロダクションであり、地球での希ガス元素及びその同位体比の分布の総括から始まり、希ガス元素の挙動を理解するためには、固体地球内での希ガス元素の分配や拡散の知識が欠かせないが、分配や溶解度のデータに比べて拡散係数のデータは少なく、単結晶を用いた研究しかないことを強調している。固体地球は多結晶質の岩石から構成されており、結晶内拡散と粒界拡散の2種類の拡散が起きているので、本研究の目的は希ガス元素について両者の拡散過程を評価し、地球規模の現象の理解を深めることであると述べている。

第2章では、これまで測定されていなかった希ガス元素の粒界拡散係数を求めるために使う高密度・極細粒フォルステライト多結晶体の合成について述べている。フォルステライト (Mg_2SiO_4) はマントル中に多く存在する鉱物であるカンラン石の端成分で、固体地球物質の代表として実験に使用した。原料であるナノサイズの SiO_2 粒子と $Mg(OH)_2$ 粒子の粉末を混合し、仮焼き、加圧成形、焼結する方法でフォルステライト多結晶体の合成を行った。仮焼温度や焼結温度の最適化に工夫を凝らした結果、これまでで最高の品質である粒径 $0.4 \mu m$ 、空孔率 0.06% 以下の高密度、極細粒多結晶体の合成に成功した。

第3章では、拡散実験の解析方法について、基礎的な原理の説明から始めて、多結晶体の場合の結晶内拡散と粒界拡散の関係の定式化、さらには実際の段階加熱実験から拡散係数を求めるデータ解析方法と、順を追って述べている。

第4章では、天然単結晶と合成多結晶のフォルステライトを Ar の入った電気炉の中で加熱し、結晶表面から拡散して取り込まれる量を測定して拡散係数を求めた実験が述べられている。しかし、この方法では試料を 133 時間 $1280^\circ C$ の Ar 中に置いても拡散距離は $50nm$ 程度であり、拡散係数を測るには適していないことが示された。

第5章では、試料内部に均一に希ガス元素を分布させ、段階加熱で抽出して拡散定数を測定する実験が述べられている。この方法は希ガス元素の拡散定数

を求める方法としては過去に例のない斬新な実験方法であり、高い評価に値する。希ガス元素が均一に分布している鉱物試料は、試料を原子炉内で中性子照射し、そこで起きる核反応で希ガス元素の同位体が生成することで実現した。わずかな Ca や Cl が均質に分布しているフォルステライト試料を中性子で照射すると、 $^{24}\text{Mg}(n, \alpha)^{21}\text{Ne}$ 、 $^{40}\text{Ca}(n, \alpha)^{37}\text{Ar}$ 、 $^{37}\text{Cl}(n, \gamma)^{38}\text{Cl}(\beta^-)^{38}\text{Ar}$ などの核反応が起き、試料内部に均一に Ne や Ar の同位体が生成する。これらの核反応では α 粒子も放出されるので、 ^4He も試料内に均一に分布する。これらの希ガス元素同位体は 400°C から 1900°C まで段階加熱法により温度成分ごとに抽出され、質量分析装置で定量し、拡散定数を求めた。その結果、900–1300°C では ^4He 、 ^{21}Ne 、 ^{37}Ar ともおおむねアレニウスの関係が成り立ち、この温度範囲の拡散定数と活性化エネルギー値を求めることが出来た。カンラン石中の He の拡散定数を測定した例が過去に 2 例あるが、本研究の測定値はその 2 例の中間的な値であった。カンラン石中の Ne、Ar の拡散係数は本研究で始めて測定され、He より 1–2 桁低い値であった。本研究の結果で特筆すべきは、測定誤差を考慮すると天然単結晶のフォルステライトと合成多結晶のフォルステライトとでは ^4He 、 ^{21}Ne 、 ^{37}Ar とも拡散定数に系統的な差が見られないことであり、希ガス元素については粒界拡散の寄与が無視できると結論づけた。

第 6 章では第 5 章の実験結果をもとに希ガス元素の地球化学への展開が述べられており、これまでの研究で粒界拡散の寄与が大きいことが示されている金属元素とは異なり、希ガス元素ではマントル鉱物中での粒界拡散の寄与が無視できることを強調している。このように、本研究では、斬新な実験方法によって希ガス元素の拡散定数を求め、マントル内の物質循環の議論に制約を与えるデータを提供することが出来、地球化学に大きな貢献をすることができた。

なお、本論文の第 2 章の主要部分は平賀岳彦、橘ちひろ、田阪美樹、宮崎智詞、小林民夫、賞雅朝子、大橋直樹、佐野聡との、第 4 章と第 5 章の主要部分は角野浩史、平賀岳彦、長尾敬介、野津憲治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。