

(続紙 1)

京都大学	博 士（理 学）	氏名	陳 卓然
論文題目	亜寒帯北太平洋における微量金属 9 元素の生物地球化学研究		
（論文内容の要旨） 陳氏は、亜寒帯北太平洋における学術研究船白鳳丸KH-17-3航海でクリーン採水された420個の海水試料を分析し、アルミニウム、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、銅、亜鉛、カドミウム、鉛を定量した．未ろ過試料を用いて全可溶態濃度を、ろ過試料を用いて溶存態濃度を求め、それらの差として置換活性粒子態濃度を求めた．これら濃度の鉛直断面分布（北緯47度および西経145度）をあきらかにし、その制御機構を考察した． アルミニウム、マンガン、鉄、コバルト、鉛は、いずれも海水中から吸着除去（スキャベンジ）されやすいが、亜寒帯北太平洋における鉛直断面分布は大きく異なった．溶存態と粒子態のアルミニウム、マンガン、鉄、コバルトは、アラスカ近くで著しく高濃度で、沖合250 kmくらいまでに外洋水レベルに減少した．これは氷河を源流とする河川からの微量元素の供給、および氷河作用により生じた碎屑物粒子による大陸近海での強い吸着除去（バウンダリースキャベンジング）の結果と考えられた．このバウンダリースキャベンジングは、微量金属濃度の東西勾配を支配するおもな原因である．過去の観測結果をあわせてみると、亜寒帯北太平洋中央部では2005年から2017年に海洋上層の鉛濃度が約40 pmol/kg減少した．これは人為起源鉛供給の減少を反映している．一方、千島列島沖の測点では、2011年から2017年にアルミニウム、マンガン、鉄の鉛直分布が大きく変動した．これは東北地方太平洋沖地震によって引き起こされた津波と懸濁流による陸源物質の供給、海洋循環、およびその後のスキャベンジングによると考えられた． 溶存態ニッケル、銅、亜鉛、カドミウム、および鉄は、一般に海洋表層で低濃度、深層で高濃度である．これはリン酸イオンなどと同様に、微量金属が表層で植物プランクトンに摂取され、生物起源粒子として水柱を沈降し、深層で有機物の分解にともなって溶存態にもどるためである．亜寒帯北太平洋全域で、溶存態カドミウムはリン酸イオンと強い直線関係を示した．よって、溶存態カドミウムは、リン酸イオンと同じように生物地球化学循環に支配されている．しかし、その他の4元素は、リン酸イオンと有意に異なる分布を示した．陳氏は溶存態金属とリン酸イオンの濃度比（dM/PO_4）の分布を調べて、異なる分布の原因を河川供給、植物プランクトンによる選択的摂取、スキャベンジング、および海底堆積物からの供給で説明した．スキャベンジングの影響は、$Cd < Ni < Zn < Cu < Fe$の順に強くなった．特に表層のdZn/PO_4比は西から東に向けて大きく減少し、溶存態亜鉛が東部で相対的に枯渇していることを示した．溶存態カドミウムと鉄も東部で相対的に枯渇していた．これは亜寒帯北太平洋で観測されている生物活動東西勾配の一因であると考えられる． さらに、微量金属の人為起源汚染を評価するために、太平洋表面水における濃縮係数$EF = (dM/dAl)/(M/Al)_{crust}$の分布を調べた．その結果、多くの微量金属のEF値が亜寒帯北太平洋で有意に高いことを見いだした．これは東アジアとロシアで生じた人為起源エアロゾルが偏西風により亜寒帯北太平洋表層へ輸送され、微量金属を太平洋へ供給していることを示す．			

(論文審査の結果の要旨)

海水中微量元素は海洋生物にとって適当な濃度範囲では栄養となり、過剰な濃度では毒となる。よって海洋生物生産を考えるうえで海水中微量元素の動態は重要であるが、それはまだ十分に解明されていない。亜寒帯北太平洋は生物生産が海水中鉄の枯渇によって制限される高栄養塩低クロロフィル海域の一つと考えられている。陳氏はこの海域において、海水中微量元素9元素の全可溶態、溶存態、および置換活性粒子態の鉛直断面分布をあきらかにした。これら9元素は海洋学におけるキーパラメータであるが、同時観測の報告は限られている。得られたデータは過去の報告と調和的であり、高精度であり、海洋学にとって価値が高い。

陳氏はこのデータを解析して、いくつかの重要な知見を得た。第一に、沈降粒子による溶存態微量元素の吸着除去（スキャベンジング）が微量元素の動態を支配することである。特に、氷河を源流とする河川が流入するアラスカ湾では、他の海域に比べて大陸近海でのバウンダリースキャベンジングが強くはたらくことを見いだした。このバウンダリースキャベンジングは、微量元素の分布の東西勾配を支配し、さらに生物生産や生物酵素活性の東西勾配にまで影響をおよぼしていると考えられる。バウンダリースキャベンジングはもともと放射性鉛やトリウムなどの観測結果から導かれた概念であるが、吸着体の主体となる鉄、マンガン、アルミニウムなどとの関係はよくわかっていなかった。

陳氏は本研究のデータと過去のデータをあわせて、鉛、アルミニウム、鉄、マンガンの鉛直分布の時間変動をあきらかにした。これらのスキャベンジされやすい元素の海洋滞留時間は数十年から数百年であり、海水の海洋循環時間約2000年より短い。よってこれらの元素の鉛直分布が時間変化することは十分にありえる。しかし、これまでは高精度の時系列データが限られていたため、アプリアリに定常状態を仮定することがほとんどであった。陳氏は、亜寒帯北太平洋中央部での鉛の時間変化を人為起源エアロゾルの供給の変化によって、千島列島沖でのアルミニウム、鉄、マンガンの時間変化を東北地方太平洋沖地震によって引き起こされた津波と懸濁流、海洋循環、およびその後のスキャベンジングによって説明した。

さらに、陳氏は溶存態元素の濃縮係数を用いて、人為起源汚染の空間変動をあきらかにした。人為起源は、濃度そのものを観測するだけでは、自然起源と区別することが難しい。濃縮係数はもともとエアロゾル中元素の人為起源を評価するために導入された。本研究ではアルミニウムを含む9元素を同時観測したため、溶存態元素に濃縮係数を適用することができた。

本研究のデータは国際共同観測計画GEOTRACESのデータベースに収録され、今後、世界の研究者の研究に活用されると期待される。本研究で提案された説明の多くは今のところ作業仮説であるが、説得力、新規性、および独創性に富み、海洋学の発展に大きく貢献すると考えられる。

よって、本論文は博士（理学）の学位論文として価値あるものと認める。また、令和6年11月21日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。