

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 19 日現在

機関番号：35302

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K21541

研究課題名(和文) 石英粒子を用いた化石標本の新たな産地同定法の開発

研究課題名(英文) Mineralogical fingerprinting as a tool for poached dinosaur skeletons from Djadokhta Formation in Gobi desert, Mongolia

研究代表者

実吉 玄貴 (Saneyoshi, Mototaka)

岡山理科大学・生物地球学部・講師

研究者番号：50522140

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,000,000円

研究成果の概要(和文)：モンゴルゴビ砂漠に分布する上部白亜系Djadokhta層産とされる盗掘恐竜化石標本の産地同定を試みた。4か所の化石産出地の現地調査により層序を確立した上で、地質図をほぼ完成させた。採取した地質サンプルと盗掘化石から得られた石英粒子にCL解析を実施し、定量解析した。その結果、盗掘化石がDjadokhta層産であることが示唆された。本手法は産地同定だけでなく、層序解析に応用できる可能性もある。

研究成果の概要(英文)：We explored quartz composed of sand particles from the upper Cretaceous Djadokhta Formation in Mongolia, and poached dinosaur skeletons from Gobi desert. During 2015-2018, four dinosaur localities of the formation were researched, the geological mapping of these area was almost completed, and stratigraphy too. We focus on the variation in cathodoluminescence (CL) features of quartz grains extensively collected from the formation and poached dinosaur specimens, which can characterize each unit of the sediments by a spectral deconvolution method. Poached dinosaur skeletons stored in Institute of Paleontology and Geology, Mongolian Academy of Science can be estimated to occur in the formation. Therefore, this method employed by CL spectral analysis of quartz grains is expected for the provenance study of the fossils as well as stratigraphic investigation.

研究分野：博物館学・古生物学

キーワード：石英粒子 カソードルミネッセンス 恐竜化石 上部白亜系 モンゴル国

1. 研究開始当初の背景

博物館教育において、恐竜化石を展示することは、来場者の科学的興味を刺激し、地球科学分野への『窓』として科学の普及活動へ貢献できる。よって、保存のよい化石の発見とそれに関わる研究はこれらの活動を支える柱である。特に1990年代以降、中国やモンゴル国を中心とした北東アジア地域は、羽毛恐竜やトリへの進化上重要な化石が多数発見される地域として知られ、多くの研究者にてよって発掘作業と研究が進められてきた。しかし近年、違法発掘による盗掘被害が拡大し、海外での摘発事例も増加傾向にある。盗掘された化石標本の多くは、モンゴル国の国宝である化石標本と同等かそれ以上の保存状態を示すものが含まれ、恐竜化石に代表されるモンゴルの化石遺産は危機的状況にある。盗掘された化石標本に対し、科学的論証に基づいた産地同定法が確立できれば、学術的価値の再生によって、広く教育と研究に資することが可能である。

研究対象とするゴビ砂漠の後期白亜紀の地層は、古い順に Bayn Shire 層・Djadokhta 層・Barun Goyot 層・Nemegt 層に区分される。特に Djadokhta 層は、過去の砂丘堆積物から保存状態の良好な化石が多数発見されており、盗掘被害が最も多い地層となっている。しかしこの地層には、化石産地や地層の特定の指標となる火山灰や微化石が含まれない。したがってこの研究では、砂丘堆積物の中に多く含まれる石英粒子を研究の対象とし、特にカソードルミネッセンスによる石英粒子の鉱物特性を用いる。

カソードルミネッセンス(以下 CL という)は、物質に電子線を照射した際に生じる発光現象で、物質中の構造欠陥や微量物質を鋭敏に検出できる分析法である。特に石英の CL 特性は、自然放射線により生成される構造欠陥と、ごく微量の格子間不純物質によって生じ、その生成環境や風化過程により異なったスペクトル特性を持つ(図 1-1)。その帰属や量比は、先行研究によって体系的にまとめられていることから、石英の CL 特性を指標に地層形成時、石英を供給した地域を大まかに区分できる。Djadokhta 層の予察的な CL 分析の結果、産地毎に異なるスペクトルを示し、かつ地域的特性を示すことが確認された(4 地点; 頁図左参照)。したがって、この分析をより広域に行い、かつ体系的にデータベース化することで、産地毎の石英粒子の CL 特性を指標に、化石産地の特定や対比が可能である。

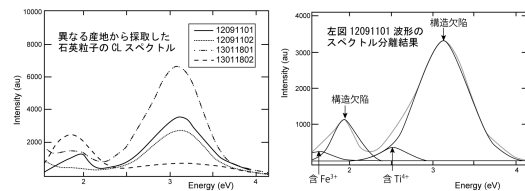


図 1-1: 石英粒子の CL スペクトル

2. 研究の目的

前述した背景およびこれまでの成果をもとに、この研究では Djadokhta 層の分布する代表的な化石産地 4 地点(Tugrikin Shireh, Alag Teg, Bayn Dzak, Udyn Sayr; 右図参照)について石英粒子の CL 特性を明らかにし、化石標本の基質部から採取する石英の CL 特性を比較することで、産地同定法の確立を目指す。研究期間中、以下のことを明らかにする。

(1) ゴビ砂漠の 4 地点に分布する砂丘堆積物から石英粒子を採取する。採取した石英粒子の CL を測定し、統計学的分類(主にクラスター分析と主成分分析)から、各地点の CL 特性を明らかにする。

(2) 化石標本(合法・違法標本の双方を含む)の基質部から石英粒子を採取し、標本毎に CL 特性を明らかにする。

(3) 両者を比較することで、化石標本の産地を推定する。結果を MPC と共有データベースとして保存し、今後の化石保護活動に利用する。

3. 研究の方法

(1) 文献を用いて関連研究や先行研究について予備調査を実施し、採取する化石産地の地質情報を予め検討する。

(2) モンゴル国ゴビ砂漠に分布する化石産地 4 地点において、地層および層序の記載、地質図の作成、石英粒子の採取を行う。

(3) IPG に保管された化石標本(違法発掘された標本群)から石英粒子を採取する。

(4) 岡山理科大学にて、石英粒子の CL 特性を測定する。測定された CL スペクトルを波形分離し、分離した波形のピーク面積を比例定量化する(図 3-1)。これを基に、クラスター分析によって、似た特徴を持つ石英粒子を区分する。また主成分分析により、多変数から少数の総合的指標を構築して、情報の要素化・簡素化を行う。

(5) 結果を、化石標本から採取した石英粒子の CL 特性と比較し、化石産地の直接同定を試みる。

(5) 学会へ出席し、主に恐竜化石について専門家らと議論し、アドバイス等を受ける。

(6) 結果をデータベース化し、IPG と共有する。

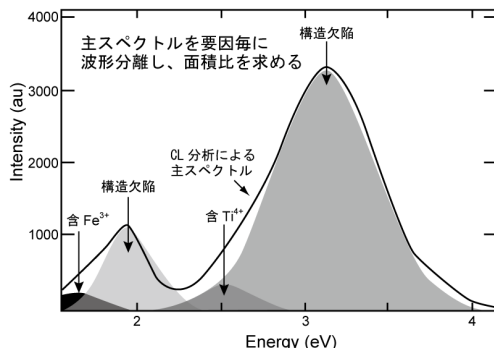


図 3-1：波形分離されたスペクトル

4. 研究成果

(1) 盗掘化石研究を進めるにあたり、比較対象となる産地を絞るため、文献調査および現地調査を実施した。その結果、当初予定していた 4 化石産地 (Tugrikin-Shireh; TS、Alag Teg; AT、Bayn Dzag; BD、Udyn Sayr; US) の 4 化石産地を盗掘化石との対象地域と設定した。これは、地層分布が広い、層厚が厚い、地層が風成層から構成される、といった複数の理由による。

(2) 上記 4 化石産地の内、地質情報として層序と地質図の作成されていない Udyn Sayr を中心に地質調査を実施し、層序を明らかにした上で地質図を作成した。また、石英粒子を含む砂岩サンプルを採取した。さらに、他地域についても砂岩サンプルを採取した。

(3) カソードルミネッセンス(CL)は、通常の光学顕微鏡観察では困難である、鉱物中の微量不純物や構造欠陥を鋭敏に検出できる。これに基づいて、ゴビ砂漠上部白亜系を構成する石英粒子の CL 発光中心を特定し、それらを指標として用いる。

(4) 採取した堆積物を超音波洗浄し、表面の汚れを除く。その後、250-180 μm の篩にて粒径を揃え、エポキシ樹脂により薄片へ固定した。堆積物を固定した薄片は表面をコランダム研磨剤にて 40-35 μm の厚さに研削し、粒径 1 μm のダイヤモンドペーストを用い、鏡面研磨し測定用薄片とした。

薄片を偏光顕微鏡観察し、固定した堆積物中から石英粒子を確認した後、室温下でルミノスコープ(冷陰極型 CL 装置)を用いてカラー CL 像を撮影した。これらの観察結果を基に、石英粒子をラベル化した。そして、Excel のランダム関数を用いてラベル化した番号を無作為に抽出することにより、分析対象試料を各 50 粒子選定した。次に、薄片表面に

炭素を蒸着し(厚さ約 20 nm)、SEM-CL(熱陰極型 CL 装置)にて、分析試料の CL スペクトル測定を行った。スペクトル測定はすべての試料において加速電圧 15 kV、照射電流 2.0 nA、倍率 2000 倍の条件下で行った。

本研究では、ルミノスコープ(冷陰極型 CL 装置)を用いて石英粒子の CL 発光色を観察し、SEM-CL(熱陰極型 CL 装置)を用いて石英粒子の CL スペクトルを測定した。

(5) 試料とした石英粒子は、ルミノスコープ観察より、鈍い青色の CL 発光を発現した。これら石英粒子を対象に、SEM-CL による CL スペクトル測定を行った。得られたスペクトルデータは、分光器および光電子増倍管 (Hamamatsu R2228) の感度曲線を決定し、すべてについて感度補正を行った。その結果、全試料から 400nm 付近の青色領域および 600-650nm の赤色領域にブロードなバンドスペクトルが得られた(図 4-1)。

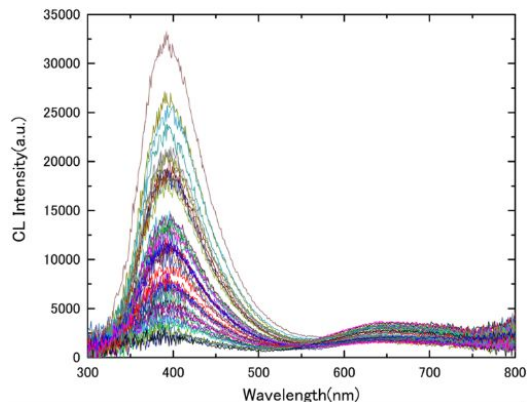


図 4-1：CL スペクトル

(6) 発光中心を帰属するため、波形分離を行った。一般に、エネルギー単位で示された発光スペクトルにおいて、一つの発光中心は一つのガウス関数により表される (Yacobi and Holt, 1990)。まず、全ての CL スペクトルデータをエネルギー単位に変換し、データ解析ソフトウェア (Origin Pro.) を用いガウス関数により近似し、発光成分を特定した。その際、Stevens-Kalceff (2009) が決定した石英の構造欠陥に起因する発光中心のピーク位置および半値幅を初期値として参考にした。CL スペクトルの波形分離より、石英の発光中心を帰属した結果、 Fe^{3+} (1.65 eV)、 Ti^{4+} (2.6-2.8 eV)、 Al^{3+} (3.3 eV) イオンに起因する構造欠陥および NBOHC (1.9 eV) が検出された。 Fe^{3+} 、NBOHC、 Ti^{4+} および Al^{3+} 構造欠陥の発光成分の各面積率は、石英粒子ごとに Al^{3+} の値が大きく NBOHC の値が小さい試料やその割合が逆な試料がみられた(図 4-2)。この石英粒子ごとの CL 特性の違いは、晶出した起源地の違いを示す。母岩を同じくする石英は、晶出時の環境すなわち条件が等しいために結晶中の不純物や構造欠陥の入る程度は同じになると考えられる。したがって、堆積する石英粒子には複数の起源地が存在することを示す。

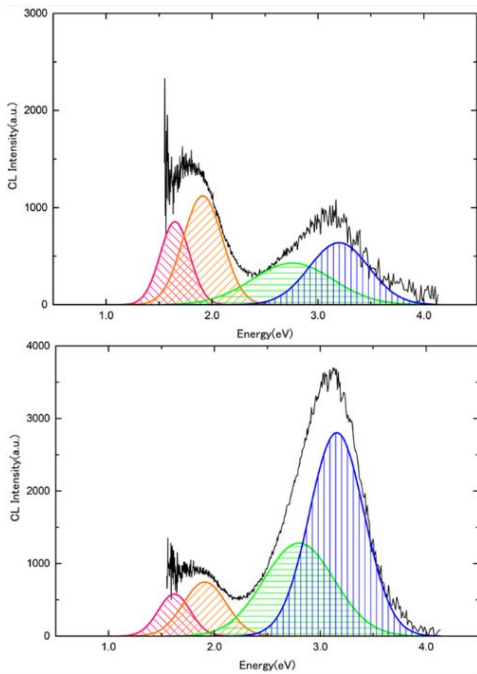


図 4-2：異なるピークを示す石英粒子

(7) TS 産、AT 産、BD 産の計 260 粒の石英粒子について、各発光成分の量比の違いによる特徴を統計的手法により解析した。各発光中心の積分強度を用い、Ward 法によるクラスター分析を適応した。解析の結果、各化石産地において石英粒子が有する発光成分の違いに基づく複数のクラスター群を識別することができた(図 4-3)。

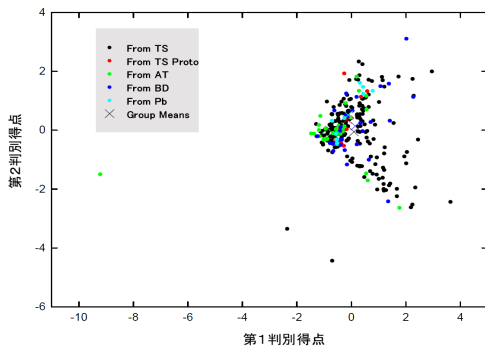


図 4-3：クラスター解析結果

また、グループごとの石英粒子の相違による CL 特性が産地または地層の特徴を示しているか検討した。データ数の違いを考慮しながら、判別分析法により解析を行った。利用するデータはクラスター分析と同じく、各発光中心の積分強度を用いた。解析結果から、ほぼすべてのサンプルが TS 産石英粒子のグループとして分類できた(図 4-4)。これが Djadokhta 層に共通する特徴を示していると示唆される。

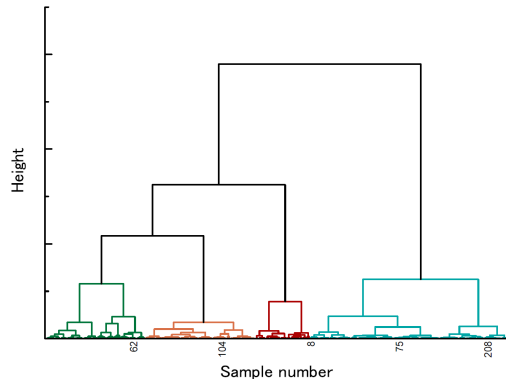


図 4-4：判別法による解析結果

Protoceratops 幼体集合化石に随伴する石英粒子各 10 粒子について、同様に判別分析を行った(図 4-4)。解析結果によれば、TS 産化石および盗掘化石は TS 産石英粒子のグループとして分類された。また、TS 産化石の石英粒子がすべて TS 産に分類された。この結果から、盗掘化石については Djadokhta 層から産出したものと推察される。本方法は化石の産出層推定にも有効である可能性が示唆された。

主成分分析は、多次元のデータを最大限に取り込みながら、総合指標となる一次元の変数である「主成分」を作り、データ間の差異を明らかにすることができる。したがって、石英粒子ごとの発光成分の Fe^{3+} 、NBOHC、 Ti^{4+} および Al^{3+} 構造欠陥の各面積率に、化石産地ごとの差異が明確に存在する場合、主成分分析により堆積する石英粒子の産地間の違いを明らかにできる。

データ間の関係性を明確にする主成分は、多次元の中でデータの分散が最も大きくなる方向に「第一主成分」、その次に第一主成分に直交する方向の中で分散が大きくなる方向に「第二主成分」などというように順次、変数(本研究では発光成分 Fe^{3+} 、NBOHC、 Ti^{4+} および Al^{3+} の積分強度の各面積率)の軸を作る。全データの全情報量に対して、各主成分が何%説明することができるかを表した値を「寄与率」という。一般的に、第一主成分から順に寄与率を合計し、累積寄与率が 8 割程度の場合にデータの特徴を表すことができるとする。主成分分析により、

Paralligator gradilifrons と *Oviraptorosauria* 付着石英粒子各 50 粒子と、Djadokhta 層産石英粒子 320 粒子の合計 420 粒子について、発光成分の Fe^{3+} 、NBOHC、 Ti^{4+} および Al^{3+} 構造欠陥の各面積率のデータ間に差異が存在する可能性を統計的に分析した。分析の結果、PC1 において、Djadokhta 層と *Paralligator gradilifrons* および *Oviraptorosauria* のデータの分布に有意な差は見られなかった。しかし、PC2 においては、Djadokhta 層西部(US, DK)、*Paralligator gradilifrons*、*Oviraptorosauria* のデータが狭い範囲で分布しているのに対し、Djadokhta 層東部(TS, AT, BD)は広く分布し

ていることから、今回分析した2つの盗掘化石標本は、Djadokhta層西部、またはその他の地層から産出したと推測される。なお今回得られた結果は、データベース化しIPGと共有した。

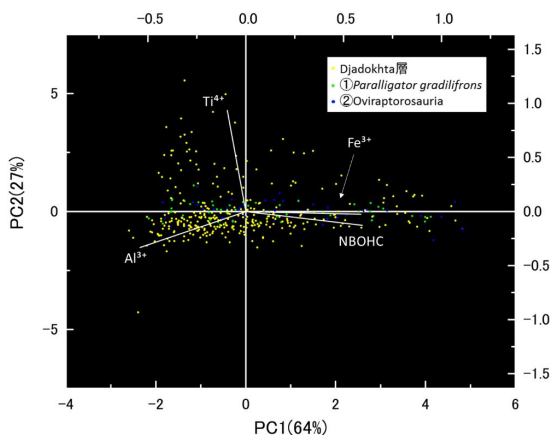


図 4-5 : 判別法による盗掘化石との比較

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計6件)

H. Asai, M. Saneyoshi, Kh. Tsogtbaatar, B. Mainbayar, C. Henmi (2018) The relationships between dinosaur remains and their burial environment. The Journal of the Geological Society of Japan (accepted). (査読有)

実吉玄貴・山口大貴・杉原友樹・松野哲郎 (2017) 博物館ワークショップに使用する模造基質の製作法. Naturalistae. 22: 31-37. (査読有)

実吉玄貴・三嶋晋平・ヒシグジャウ ツオクトバトル・ブーベイ マインバヤル (2017) 成長に伴う Protoceratops andrewsi 頭蓋骨の形態変化. Naturalistae. 21: 1-6. (査読有)

S. Ishigaki, Kh. Tsogtbaatar, M. Saneyoshi, B. Mainbayar, K. Aoki, S. Ulziitseren, T. Imayama, A. Takahashi, S. Toyoda, B. Chagnaa, B. Buyantegsh, J. Batsukh, B. Purevsuren, H. Asai, S. Tsutanaga, K. Fujii (2016) Report of the Okayama University of Science - Mongolian Institute of Paleontology and Geology Joint Expedition in 2016. Bull. Natural Research Center of Okayama University of Science. 42: 1-14. (査読無)

M. Takeuchi, M. Saneyoshi, Kh. Tsogtbaatar, B. Mainbayar, Sa. Ulziitseren (2016). Trace fossils on dinosaur skeletons

from the Upper Cretaceous of Gobi desert, Mongolia. Bull. Natural Research Center of Okayama University of Science. 42: 47-52. (査読無)

M. Saneyoshi, S. ISHIGAKI, Kh. TSOGTBAATAR, B. Mainbayar, S. ULZIITSEREN, B. Otgonbat, H. ASAI, and T. TANABE (2015). Report of the OUS-IPG Joint Paleontological - Geological Expedition in 2015. Bull. Natural Research Center of Okayama University of Science. 41: 43-52. (査読無)

〔学会発表〕(計14件)

吉越洸太郎・高橋亮雄・Khishigjav Tsogtbaatar・Sanjaadash Ulziitseren・実吉玄貴 (2018) モンゴル国ゴビ砂漠上部白亜系 Nemegt 層産ワニ類化石の分類学的研究. 日本地質学会西日本支部平成 29 年度総会・第 169 回例会, 広島大学.

山本雄大・Khishigjav Tsogtbaatar・Sanjaadash Ulziitseren・Purevdorg Khatanbaatar・実吉玄貴 (2018) モンゴル産 Protoceratops の成長過程とフリル形態の変化. 日本古生物学会第 167 回例会, 愛媛大学.

H. Asai, M. Saneyoshi, H. Nishido, S. Toyoda, Kh. Tsogtbaatar (2017) Stratigraphic assignment of eolian and fluvial sediments in Udyn Sayr, Gobi desert, Mongolia using an indicator of defect centers in quartz composed of sand particle, Geological Society of America annual meeting 2017, Seattle, USA.

S. Toyoda, H. Asai, Y. Nitta, M. Saneyoshi, H. Nishido, K. Aoki, T. Imayama, S. Ishigaki, K. Tsogtbaatar, B. Mainbayar (2017) Comparison and correlation of upper Cretaceous sedimentary sequence in Southern Mongolia with ESR and luminescence, 15th International Conference on Luminescence and Electron Spin Resonance Dating, Cape Town, South Africa.

T. Chinzorig, Y. Kobayashi, M. Saneyoshi, K. Tsogtbaatar, Z. Badamkhatan, T. Ryuji (2017) Multitaxic Bonebed of Two New ORNITHOMIMIDS (THEROPODA, ORNITHOMIMOSAURIA) From The Upper Cretaceous BAYANSHIREE Formation of Southeastern Gobi Desert, MONGOLIA. Society of Vertebrate Paleontology 77th annual meeting, Calgary Telus Convention Center, Canada.

薦永早也香・実吉玄貴・B. Mainbayar・A. Batswkj・B. Batsaikhan・浅井瞳(2017) モンゴル国ゴビ砂漠南東部 Bayshin Tsav に分布する上部白亜系の岩相層序と古環境, 日本古生物学会 2017 年年会, 北九州市立自然史・歴史博物館.

H. ASAI, M. SANEYOSHI, Hirotsugu NISHIDO, Shin TOYODA, Khishigjav TSOGTBAATAR, Buurei MAINBAYAR (2016) Stratigraphic assignment of eolian sediments in the Central Gobi Desert, Mongolia using an indicator of defect centers in quartz composed of sand particles. The International symposium "The 70th anniversary of Mongolian Paleontological Expedition of Academy of Science, USSR", Ulaanbaatar, Mongolia.

S. ISHIGAKI, B. MAINBAYAR, Kh. TSOGTBAATAR, T. TANABE, Mototaka SANEYOSHI (2016) Dinosaur Ichnology of Mongolia. The International symposium "The 70th anniversary of Mongolian Paleontological Expedition of Academy of Science, USSR", Ulaanbaatar, Mongolia.

浅井瞳・実吉玄貴・豊田新・Khishigjav Tsogtbaatar・Buurei Maibayar (2016) モンゴル上部白亜系 Djadokhta 層の ESR 特性, 2016 年日本古生物学会年会 福井県立大学.

西戸裕嗣・増田理沙・実吉玄貴(2016) 風成堆積物を構成する石英に見られる CL 発光中心について 第 33 回 ESR 応用計測研究会, しいのき迎賓館, 金沢.

西戸裕嗣・増田理沙・実吉玄貴(2016) 風成堆積物中の石英に認められるカソードルミネッセンス発光成分. 日本地質学会西日本支部平成 27 年度総会・第 167 回例会, 熊本大学.

R. Masuda, M. Sane Yoshi, S. Ishigaki, H. Nishido, Kh. Tsogtbaatar. (2015) Stratigraphic correlation with dinosaur bearing Upper Cretaceous eolian sediments of Gobi desert, Mongolia; and It's implication for dinosaur fossil protection from illegal activity, Society of Vertebrate Paleontology 75th annual meeting, Dallas, USA.

増田理沙・西戸裕嗣・実吉玄貴・Kh. Tsogtbaatar・Ts. Chinzorig・B. Mainbayar. カソードルミネッセンスによる風成層構成石英の特徴化. 日本鉱物科学会 2015 年年会. 東京大学.

増田理沙, 実吉玄貴, 西戸裕嗣, Kh.

Tsogtbaatar, Ts. Chinzorig, B. Mainbayar. 石英のカソードルミネッセンスを用いたゴビ砂漠上部白亜系風成層の特徴化. 日本堆積学会 2015 年つくば大会. 筑波大学

〔図書〕(計 2 件)

実吉玄貴(2017) 恐竜化石 - 発掘と展示. 驚異の博物標本, 挿花 5 月号, 20-21.

実吉玄貴(2016) 恐竜化石の発掘から展示まで. 見る目が変わる博物館の楽しみ方, 矢野興一(編), ベレ出版, 131-147.

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

取得状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

実吉 玄貴 (SANEYOSHI, Mototaka)
岡山理科大・生物地球学部・生物地球学科
研究者番号: 50522140

(2) 研究分担者

なし()

研究者番号:

(3) 連携研究者

なし()

研究者番号:

(4) 研究協力者

なし()