研究成果報告書 科学研究費助成事業

今和 4 年 6 月 2 2 日現在

機関番号: 82706

研究種目: 挑戦的研究(萌芽)

研究期間: 2019~2021

課題番号: 19K21908

研究課題名(和文)必須ミネラルの次世代型同位体による栄養段階の新指標

研究課題名(英文)A novel tool for the trophic level of bioessential metals by non-traditioanal

stable isotopes

研究代表者

吉村 寿紘 (Yoshimura, Toshihiro)

国立研究開発法人海洋研究開発機構・海洋機能利用部門(生物地球化学プログラム)・研究員

研究者番号:90710070

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 5.000.000円

研究成果の概要(和文):本研究では海洋生物試料に含まれる主要な必須金属のうち,安定同位体が存在するマグネシウムを主な研究対象とし,生体内と食物連鎖を通じた安定同位体比の変化を明らかにすると共に,食性解析ツールとしての評価を行った。試料は天然の海棲生物試料のバルク分析ならびに器官を分けた分析と,幼体から養殖されたマグロ試料と餌ならびに微生物の培養試料と培地のマグネシウム同位体比の差異を検証した。魚類の器官はそれぞれ固有の値を示し,いずれきかよりも低い値をもつ。マグロの筋肉は配うますがあるがあれて、金物海がによるなでも約0.4%のできる可能性が高います。 の器官はそれぞれ固有の値を示し、いずれも海水よりも低い値をもつ。マグロの筋肉は配合飼料とメタン菌と培地にはそれぞれ約-0.4‰の差が認められ、食物連鎖に伴う変化として海洋の生態系に広く適用できる可能性が高 110

研究成果の学術的意義や社会的意義同位体比を用いた精密食物網解析は,有機物に特化した食物網の解析ツールとして産地の同定や,自然界の捕食・被食関係を知るための化学ツールとして発展してきた。他方で,生体内の元素の元素の挙動は各論的に扱う必要があるが,金属元素の細胞レベルの動態解析には必ずしも自然界の解析に有用な手法が存在していない。また,マグネシウムなどの二族元素は骨や歯などの生体硬組織に多く存在するため,時間を遡った考古資料の解析にも応用できる。同位体比が元素移動の指標になればマイクログラム以下のMg量で利用可能な,元素解析の新規 ツールとして期待できる。

研究成果の概要(英文): Of the major bioessential metals in marine organism samples, this study focuses on magnesium, which has stable isotopes, to clarify changes in stable isotope ratios in different organs of individual specimen and through the food chain, and to eat habits. It was evaluated as an analysis tool. The bulk and organ-separated analysis of natural marine organism samples and differences in magnesium isotope ratios between tuna samples and feeds cultivated from juveniles and microbial culture samples and media were examined. Each fish organ shows a unique value, and all have lower values than seawater. Tuna muscle has a difference of about -0.4‰ between the compound feed, methane bacteria, and the medium. Therefore it is possible that Mg isotope offsets between redator-prey relationships can be widely applied to marine ecosystems as a change associated with the food chain.

研究分野: 地球科学

キーワード: マグネシウム 安定同位体 栄養段階 必須ミネラル

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1.研究開始当初の背景

生物の主要必須常量元素のうち,主に有機物に由来するのは酸素・水素・炭素・窒素・リン・硫黄である。さらにカルシウム,ナトリウム,カリウム,マグネシウム,塩素などの所謂,必須ミネラルと呼ばれる元素が存在し,哺乳類の場合はこれら 11 元素の合計で体重の 99%以上となる(図1)。必須ミネラルは細胞の浸透圧,膜電位の調節・維持・決定をはじめ多様な生化学プロセスに用いられる。また,生体酵素の中心金属としても働き,その代表例はクロロフィルの活性中心のマグネシウムで,光合成生物が太陽光をエネルギーに変換する際に根幹的な役割を担っている。

これまでに炭素・窒素同位体比は食物網の解析ツールとして大きな成果を挙げ(Chikaraishi et al., 2014 など),生態学や考古学など多様な分野で広く利用されている。一方で有機物の同位体指標は,有機物が分解される化石資料やそれを含まない歯のエナメル質などの硬組織には応用が難しい。これまでサバンナの生態系で食物連鎖に伴って Mg 安定同位体比

(δ²⁶Mg)が増加 することが報告 されており(図 1 , Martin et al., 2015), 筋肉 などに同化され る Mg と排出さ れる Mg の間に 同位体分別が生 じることで, 26Mgが選択的に 濃縮することが 提唱された。し かし,生体内で 器官毎の元素分 配に伴う分別 や 捕食・被食関 係が明らかな試 料を用いた検証 は行われていな ll.

生物の必須ミネラル

Mg: エネルギー代謝, リボソームの 構造維持, タンパク質の合成

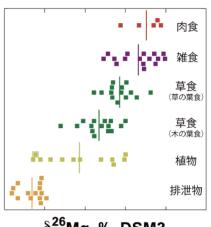
Ca: 歯や骨,細胞膜・細胞壁の安定化

K:浸透圧調整,神経伝達,筋肉収縮

CI:浸透圧調整,消化



安定同位体をもつ4つの必須元素から, 食性や代謝の情報を読み取る



 δ^{26} Mg, ‰ DSM3

図1. 生体内の各種元素の役割(左)と Mg 同位体の食物連鎖研究 (Martin et al., 2015 を改変)。食物連鎖に伴って, Mg 同位体比が低下する。

2.研究の目的

本研究では海洋生物試料に含まれる主要な必須金属のうち,安定同位体が存在するマグネシウムを主な研究対象とし,生体内と食物連鎖を通じた安定同位体比の変化を明らかにし,食性解析ツールの新規確立を目的とする。同位体比を用いた精密食物網解析は,有機物に特化した食物網の解析ツールとして発展してきた。一方で生体内の金属元素の反応系は多様であり,元素の挙動は各論的に扱う必要がある。マグネシウムやカルシウムなどの二族元素は骨や歯などの生体硬組織に多く存在するため,時間を遡った元素同位体の解析に応用できる。

生体中の元素は貯蓄と利用を繰り返される動的平衝状態にある。人間を含む脊椎動物の Mg を例にすると含有量は 0.4g/kg で $,60\sim65\%$ は骨 ,約35%が臓器などの組織 $,1\sim2\%$ が細胞外液に存在し ,血中濃度はほぼ一定に保たれている。これに対して金属の代謝については器官毎に大きな差があり ,心臓や腎臓の Mg 代謝は数時間以内と非常に早いが , 脳や骨格筋では貯蔵される割合が 7 割 ~9 割以上と多く , 交換可能な Mg も平衡に 16 時間以上を要する $(Maguire\ and\ Cowan, 2002)。このような細胞レベルの動態解析には標識試薬などが用いられるが <math>,$ ごく低濃度で有用な試薬は必ずしも存在しておらず , 同位体比が元素移動の指標になればマイクログラム以下の Mg 量で利用可能な , 元素解析の新規ツールとして期待できる。

3.研究の方法

本研究は生体金属による食物網解析ツールの確立するために,主に海棲生物試料を用いて,(1)生体の器官毎の同位体分別の把握,(2)幼体から養殖されたマグロ試料と餌ならびに微生物の培養試料と培地の同位体比の差異を検証した。また過去の生態情報の記録媒体として,を対象として,同位体組成と生物グループや生息条件との比較を行った。マグネシウム同位体比についてはタラをはじめとした魚類をはじめとして,イソギンチャク,カニ,ナマコ,ヒトデ,またサンゴや二枚貝などの炭酸カルシウム骨格や殻など多様な生物種を測定対象として用いた。

4.研究成果

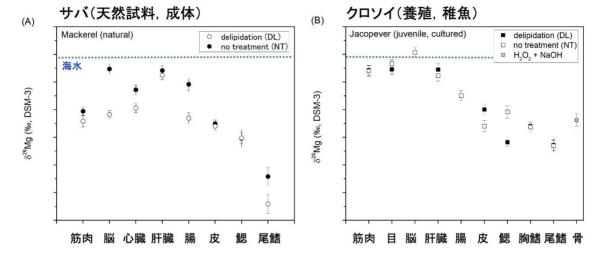


図2. サバとクロソイの器官別のマグネシウム同位体組成。試料はフリーズドライした後, 濃硝酸で直接分解したものと,脱脂処理を行った後に濃硝酸で分解した値を比較し,脂質や 残留する液体等が助教でいる脱脂処理が有効であることがわかった。分解溶液はイオンクロ マトグラフを用いてマグネシウムを単離精製し(Yoshimura et al., 2018), MC-ICP-MS で 同位体比測定をおこなった。

サバ,クロソイの軟組織はそれぞれ海水に対してそれぞれ 0.4%, 0.1%低い値を示し,硬組織はさらに 0.4%程度低かった (図 2)、養殖マグロの成体 5 試料について,筋肉,肝臓,心臓,ヒレを分析を行ったところ,筋肉が最も個体差が小さかった。そこで配合飼料と養殖マグロの筋肉の δ^{26} Mg を測定したところ,餌に対して-0.4%の差が認められた。血液は海水ではなく食餌の同位体比を反映することがわかった(図 3)、採餌を通じた同位体比の変化方向は,陸域の食物網(Martin et al., 2015)とは逆の変化方向であった。合わせてメタン菌と培地の同位体分別も検討し,ほぼ同じ結果が得られたため,海洋の生態系に広く適用できる傾向である可能性が高い。

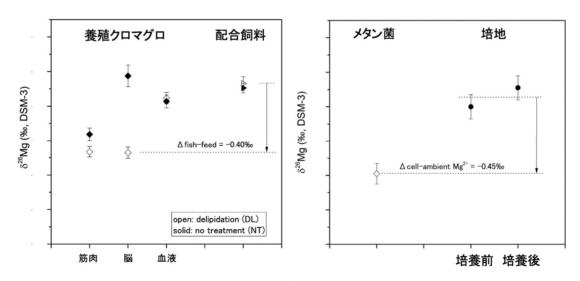


図3. 養殖クロマグロと配合飼料(左)およびメタン菌と培地(右)Mg 同位体分別(左)。 海水は全ての海域で均質な同位体組成をもつことが知られているがクロマグロの血液とは異なり,配合試料を全分解した値とよく一致した。配合試料と筋肉の間には約0.4 パーミルの差が認められた。

天然の海洋生物試料のマグネシウム同位体比は-0.68から-2.67パーミルの非常に広い範囲をとり,生物種毎に特有の同位体比を示した。魚類の全長と筋肉のマグネシウム同位体比に高い正相関が認められた。これらの試料において過去に測定された化合物レベル炭素・窒素同位体比によって,有機物を対象とした食性解析の基礎情報が得られているが,今回のマグネシウム同位体比とトレーサー間の相互比較を行ったところアミノ酸の窒素同位体比では同様のトレンドは

なく,窒素源からみた採餌行動は変化しなかったため,成長に伴うマグネシウムのターンオーバーの影響を受ける可能性がある。最も低い同位体比を示したヒトデは体内に微少な骨片(炭酸塩鉱物)を有しており,これらの無機鉱物は周辺の組織液よりも1から2パーミル程度は低い同位体組成を示した。このような試料では酢酸などを用いた炭酸塩の溶解処理が必要である。

サンゴ骨格に関してはカリウム同位体比も合わせて測定を行い,温度と共に値が低下した。 生体有機物に由来するカリウムが骨格中で増加しているため,骨格のカリウム同位体比が成長 量の指標となることがわかった。

同位体比を用いた精密食物網解析は,有機物に特化した食物網の解析ツールとして発展してきたが,生体内の金属元素の反応系は多様であり,元素の挙動は各論的に扱う必要がある。物質の起源を示す指標としては放射壊変起源の炭素同位体比(1⁴C)や Sr 同位体比(8⁷Sr/8⁶Sr)が広く用いられてきたが,これらは摂取した物質の起源を明瞭に反映するものの,生体内で起こる消化・吸収・貯蔵・代謝といった生化学反応を伴うプロセスを知ることができなかった。化学反応に伴って分別する金属の安定同位体比では,採餌に伴って一定の同位体比の差が生じ,さらに器官毎に異なる同位体比をもつマグネシウムが同化される。さらに生物種毎に約2パーミルの大きな差異も認められるため,採餌の指標になる可能性がある。他方で,成長に伴う変化も生じることが示唆されたため,今後は特定の個体の成長に伴う変化について検証する必要がある。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件(うち査読付論文 5件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 2件)

〔雑誌論文〕 計5件(うち査読付論文 5件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 2件)	
1.著者名	4.巻
Li Wenshuai、Liu Xiao-Ming、Wang Kun、Hu Yongfeng、Suzuki Atsushi、Yoshimura Toshihiro	581
2.論文標題	5 . 発行年
Potassium incorporation and isotope fractionation in cultured scleractinian corals	2022年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Earth and Planetary Science Letters	-
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1016/j.epsl.2022.117393	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	該当する
1.著者名	4.巻
Yoshimura Toshihiro、Araoka Daisuke、Kawahata Hodaka、Hossain H. M. Zakir、Ohkouchi Naohiko	9
2. 論文標題 The Influence of Weathering, Water Sources, and Hydrological Cycles on Lithium Isotopic Compositions in River Water and Groundwater of the Ganges?Brahmaputra?Meghna River System in Bangladesh	5 . 発行年 2021年
3.雑誌名 Frontiers in Earth Science	6.最初と最後の頁 668757
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.3389/feart.2021.668757	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスとしている(また、その予定である)	該当する
1.著者名 Yoshimura, T., Wakaki, S., Kawahata, H., Hossain, Z., Manaka, T., Suzuki, A., Ishikawa, T. and Ohkouchi, N.	4.巻 g
2.論文標題 Stable strontium isotopic compositions of river water, groundwater, and sediments from the Ganges, Brahmaputra and Meghna river system in Bangladesh	5 . 発行年 2021年
3.雑誌名 Frontiers in Earth Science,	6.最初と最後の頁 1-17
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.3389/feart.2021.592062	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスとしている (また、その予定である)	該当する
1.著者名	4 . 巻
Isaji, Y., Yoshimura, T., Araoka, D., Kuroda, J., Ogawa, N.O., Kawahata, H. and Ohkouchi, N.	3
2 . 論文標題 Magnesium isotope fractionation during synthesis of chlorophyll a and bacteriochlorophyll a of benthic phototrophs in hypersaline environments	5 . 発行年 2019年
3 . 雑誌名 ACS Earth and Space Chemistry	6.最初と最後の頁 1073-1079
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1021/acsearthspacechem.9b00013	有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著

1.著者名	4 . 巻
Maeda, A., Yoshimura, T., Araoka, D., Suzuki, A., Tamenori, Y., Fujita, K., Toyofuku, T.,	20
Ohkouchi, N. and Kawahata, H.	
2.論文標題	5 . 発行年
Magnesium isotopic composition of tests of large benthic foraminifers: implications for	2019年
biomineralization	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Geochemistry Geophysics Geosystems	4046-4058
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1029/2019GC008314	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	-

〔学会発表〕 計4件(うち招待講演 0件/うち国際学会 0件)

1.発表者名

吉村 寿紘、若木 重行、鈴木 淳、石川 剛志、大河内 直彦

2 . 発表標題

温度制御下で飼育したサンゴ骨格中のストロンチウム安定同位体組成

3 . 学会等名

日本地球化学会年会

4.発表年

2021年

1.発表者名

吉村 寿紘、Li Wenshuai、鈴木 淳、Liu Xiao-Ming

2 . 発表標題

温度制御下で飼育した塊状サンゴPoritesの骨格におけるLi同位体分別

3 . 学会等名

第6回地球環境史学会年会

4.発表年

2020年

1.発表者名

吉村 寿紘・日下 宗一郎・為則 雄祐・荒岡 大輔・川幡 穂高・大河内 直彦

2 . 発表標題

縄文時代晩期の愛知県稲荷山貝塚より出土した人骨の歯資料における軽元素の微小領域分布と化学形態

3.学会等名

日本地球化学会年会

4.発表年

2019年

1	発 表名
	. #121

吉村 寿紘・石川 尚人・小川 奈々子・日下 宗一郎・若木 重行・石川 剛志・力石 嘉人・大河内 直彦

2 . 発表標題 食物連鎖に伴う必須金属の動態解析と化石・考古生態への応用に向けた魚類の器官におけるマグネシウム同位体比の差異と栄養段階指標の

3 . 学会等名

地球環境史学会年会

4.発表年

2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

研究組織

_ 6	. 研究組織		
	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
	日下 宗一郎	東海大学・海洋学部・特任講師	
研究分担者			
	(70721330)	(32644)	
	石川 尚人	国立研究開発法人海洋研究開発機構・海洋機能利用部門(生物 地球化学プログラム)・副主任研究員	
研究分担者	(Ishikawa Naoto)		
	(80609389)	(82706)	

7.科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------