

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 28 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2008～2013

課題番号：20241005

研究課題名(和文) 海洋有機物の統合的理解 - 有機物プールの消長と地球表層炭素循環へのインパクト -

研究課題名(英文) Integrated Understanding of Marine Organic Matter - Dynamics of organic reservoir and its impact on global carbon cycle -

研究代表者

田上 英一郎 (Tanoue, Eiichiro)

名古屋大学・地球水循環研究センター・教授

研究者番号：50133129

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 36,700,000円、(間接経費) 11,010,000円

研究成果の概要(和文)：海洋有機物プール消長がもたらす地球表層炭素循環へのインパクトを明らかにするために海洋有機物動態の総合的理解を目指した。ハイスループット分析法を用いて溶存有機物の分布を求め、その特徴から溶存有機物動態を明らかにし、分子レベルで有機物プールの詳細に把握することが主題である。本研究課題では、LC-MS/MSを用いたハイスループット分析法を開発し、観測海域から大量の基礎データを採取した。2次元多核種NMR法およびFACE法を用いて溶存および懸濁態有機物の高分子レベル分析法を用いて、海洋有機物の高次構造を明らかにすることで、海洋有機物の化学像を洗い出しを行った。

研究成果の概要(英文)：We aimed at the comprehensive understanding of oceanic dissolved and particulate organic matter to clarify an impact to the earth surface carbon cycle which the pool of marine organic matter ups and downs brought. We evaluated the distributions of the chemically-identifiable materials in dissolved and particulate organic matter using a high-throughput analyses using LC-MS/MS without any derivatization processes.

We constructed the knowledge-base of oceanic dissolved and particulate organic matter with polymer level analysis using the two dimensional NMR method and the FACE method.

研究分野：生物地球化学

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：海洋有機物 物質循環 懸濁態有機物 溶存有機物 有機地球化学

1. 研究開始当初の背景

地球環境の理解と予測を視野において、時間スケール $10 \sim 10^3$ 年の炭素循環を考える。無機炭素プールでは、大気中の二酸化炭素や海水中の無機炭素の動態と大気-海洋間のガス交換過程への理解が重要であり、観測的及びモデル的プロジェクト研究が推進されている。有機物プールでは、陸上植生や土壌有機物の動態は大気中の二酸化炭素プールと直接関連するために炭素循環モデルの重要パラメータとして研究が推進されている。

海洋溶存有機物は、地球表層に存在する3大有機物プールの1つであり、その存在量を炭素に換算すれば、大気圏の二酸化炭素全量に匹敵する。地球表層の炭素循環を理解する上で海洋有機物プールの動態解明は必須でありながら、以下を理由に唯一プールとしての総合的理解へ向けての研究が推進されていないのが現状である。

炭素循環の見地から溶存有機物プールの動態(起源、輸送、分解、変質、蓄積などの諸過程)の解明にむけて、元素レベルの研究(有機物を炭素・窒素などの組成や、それらの放射性・安定同位体で捉えるアプローチ)は推進されているが、炭素循環の見地から溶存有機物の分子レベルの研究(有機物の官能基、分子量、溶解度や反応性、ならびに水圏での生物学的・化学的分解性などへの理解を深めるアプローチ)も必須である。なぜならば、有機物の動態をつかさどる諸過程の大部分は、分子の性質によって決まっているからである。

しかし、有機分子の多様性や分析化学的・技術的困難等により、溶存有機物の動態に関する基礎的知見は不十分である。そのために溶存有機物全体を俯瞰的に見渡すタイプの研究は、欧米諸国でも行われておらず、個別のプロセス研究が中心となっている。日本は、研究者層が薄く、個別のプロセス研究においても、欧米諸国に大きな遅れをとっている。溶存有機物の動態を俯瞰的に見渡し、その結果として、海洋有機物プール消長の将来予測に必要な溶存有機物動態の総合理解とそのアプローチを世界へ向けて発信することである。

2. 研究の目的

本研究では、海洋有機物プール消長がもたらす地球表層炭素循環へのインパクトを明らかにするために海洋有機物動態の総合的理解を目指すことを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、海洋有機物プール消長がもたらす地球表層炭素循環へのインパクトを明らかにするために海洋有機物動態の総合的理解を目指す。2つのアプローチとそれぞれに課題を設け、研究を推進した。

アプローチ I:

溶存有機物全体を網羅的に把握し、海盆スケールの分布から各有機成分の動態を解明する観測的・現象論的アプローチ

課題 1: 化学的同定可能成分の全分析

課題 2: CDOM の光学的特性把握

アプローチ II:

生態系の変動に伴う非生物有機物生成の変化と海水中に存在する有機分子の残存現象を実験的・メカニズム面から解明するアプローチ

課題 3: プール中の生体分子の高分子レベルでの同定とその残存メカニズムの解明

課題 4: 微生物ループ駆動に伴いプールへ負荷される同定可能成分及び CDOM の化学的特性把握

4. 研究成果

研究成果について、本研究で掲げた4つの課題に対応させ述べる。

課題 1: 化学的同定可能成分の全分析

脂質分子(リン脂質、グリセリドなど)、糖、アミノ酸について、LC-MS/MSを用いた非誘導体分析法を応用し、溶存有機物のハイスループット分析を開発した。船上でのリアルタイム分析には至らなかったが、海洋の溶存ならびに懸濁態有機物中の同定可能成分について、分布特徴を明らかにできた。

課題 2: CDOM の光学的特性把握

南極海~太平洋~アラスカ湾に至る海洋溶存有機物の3次元蛍光分析を行い、南極海表層で供給された溶存有機物が深層に輸送され、海洋深層を輸送され北上するうちに、腐植様物質へと変質するプロセスを解明した。

課題 3: プール中の生体分子の高分子レベル

での同定とその残存メカニズムの解明

懸濁態有機物中に含まれる結合型アミノ酸の化学型および溶存有機物中の複合糖質の化学型を明らかにする試みを行った。海洋全深度において、結合型アミノ酸は、尿素可溶、SDS可溶、SDS/尿素不溶、の3画分に分ける事ができた。結合型アミノ酸は、従来タンパク質と考えられていたが、SDS/尿素不溶画分に結合型アミノ酸が検出された。このことから、懸濁態有機物中の結合型アミノ酸には、タンパク質とは全く異なる化学型が存在することがわかった。溶存有機物中の複合糖質については、蛍光誘導体法と電気泳動法を組み合わせた分析法を開発した。溶存有機物中に2糖から23糖までの複合糖質が存在していることが分かった。これらの糖鎖は、従来海水に酸処理を行うことで検出可能となる単糖類の存在することから、海水には多糖類が存在することが指摘されていたが、具体的に糖鎖を構成する単糖の個数までは知

られていなかった。海洋の溶存有機物中の多糖類そのものを世界で初めて検出したことは、大きな成果である。

課題 4:微生物ループ駆動に伴いプールへ負荷される同定可能成分及び CDOM の化学的特性把握

海洋の有機物プールにおいて、有機物供給の出発点である植物プランクトンおよび分解者であるバクテリアを構成する有機物分子は化学的同定可能成分に占められている。一方で、溶存有機物は 90%以上が化学的「未同定」成分に占められている。本研究において、特に溶存脂質分子が、生物体を構成するにおいて主要でない炭素鎖長を持つ有機物分子に占められることを発見した。その炭素鎖長は物理化学特性から、生体構成成分に最も親和性の高い炭素鎖長であることが分かった。また、高分子画分および低分子画分に含まれる脂質は、同一分子により構成されていることがわかった。これは、溶存有機物中の脂質が、海水中において脂質分子が凝集-単分子分散平衡系に則した挙動をしていることを示唆している。

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 10 件)

Hara, S.: "Taxonomy, Ecology and Phylogeny of Choanoflagellates (Review)". Bulletin of the Plankton Society of Japan, 59: 35-47. (2012), 査読有
Mostofa, KMG; Wu, FC; Liu, CQ; Vione, D; Yoshioka, T; Sakugawa, H; Tanoue, E: "Photochemical, microbial and metal complexation behavior of fluorescent dissolved organic matter in the aquatic environments" GEOCHEMICAL JOURNAL, 45(3), 235-254, (2011), 査読
Tsukasaki, A., Tanoue, E.: "Chemical qualification of electrophoretically detectable peptides and sugar chains in oceanic surface particulate organic matter" Marine Chemistry 119. 33-43 (2010), 査読有
Youhei Yamashita, Rose M. Cory, Jun Nishioka, Kenshi Kuma, Eiichiro Tanoue, Rudolf Jaffe: "Fluorescence characteristics of dissolved organic matter in the deep waters of the Okhotsk Sea and the northwestern North Pacific Ocean" Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography 57. 1478-1485 (2010), 査読有
Yamada, N., E. Tanoue: "Similarity of dissolved protein spectra by electrophoresis from coastal to pelagic seawaters." J. Oceanogr 65. 223-233 (2009), 査読有
Tsukasaki, A., Tanoue, E.: "Chemical

characterization and dynamics of particulate combined amino acids in Pacific surface waters" Journal of Marine Systems 79. 173-184 (2009), 査読有
Yamashita, Y., E. Tanoue: "Basin scale distribution of chromophoric dissolved organic matter in the Pacific Ocean" Limnology and Oceanography 54. 598-609 (2009), 査読有
Youhei Yamashita, Eiichiro Tanoue: "Basin scale distribution of chromophoric dissolved organic matter in the Pacific Ocean" Limnol. Oceanogr. 54(2). 598-609 (2009), 査読有
Yamashita, Y, Tanoue, E.: "Production of bio-refractory fluorescent dissolved organic matter in the ocean interior." Nature Geosci. 1. 579-582 (2008), 査読有,
Youhei Yamashita, Rudolf Jaffe, Nagamitsu Maie, Eiichiro Tanoue: "Assessing the dynamics of dissolved organic matter (DOM) in coastal environments by excitation emission matrix fluorescence and parallel factor analysis (EEM-PARAFAC)" Limnol. Oceanogr 53(5). 1900-1908 (2008), 査読有

[学会発表](計 16 件)

西田民人、塚崎あゆみ、加古正代、田上英一郎: "海洋の溶存脂質に関する研究 IV-海水中での存在状態と蓄積メカニズム-" 第 30 回有機地球化学会。(20130818). 岡山県倉敷芸文会館(岡山県倉敷市)
原成光、小池勲夫、福田秀樹: "SYBR-Green positive 粒子" 日本海洋学会春季大会(20130321) 東京海洋大学(東京都品川区)
西田民人、塚崎あゆみ、加古正代、田上英一郎: "海洋の溶存脂質に関する研究 III-海水中での脂質分子の挙動-" 日本海洋学会秋季大会.(20120822). 北海道大学(北海道札幌市)
西田民人、塚崎あゆみ、加古正代、田上英一郎: "海洋の溶存脂質に関する研究 III-海水中での分子量分布と動的挙動-" 第 30 回有機地球化学シンポジウム。(20120822). 東北大学(宮城県仙台市)
原成光: "改良 Gause 競争モデルによる食物連鎖系" 日本海洋学会春季大会。(20110908). 東京大学(千葉県柏市)
塚崎あゆみ、西田民人、田上英一郎: "海洋懸濁態有機物における糖鎖分析法の検討" 第 28 回有機地球化学シンポジウム。(20100805). 石油資源開発株式会社長岡鉱業所(新潟県長岡市)
西田民人、塚崎あゆみ、加古正代、田上英一郎: "海洋の溶存脂質に関する研究 II-海水中での分子量分布-" 第 28 回有機地球化学シンポジウム。(20100805). 石油資源開発株式会社長岡鉱業所(新潟県

長岡市)
塚崎あゆみ、西田民人、田上英一郎: "電
気泳動による糖鎖分析法の確立と海洋表
層懸濁態有機物への適用" 日本海洋学会
秋季大会. (20100908). 東京農業大学生
物産業学部(北海道網走市)

西田民人、塚崎あゆみ、加古正代、田上
英一郎: "海洋の脂質の化学特性に関する
研究 海水中での脂質分子の挙動" 日本
海洋学会秋季大会. (20100908). 東京農
業大学生物産業学部(北海道網走市)

原成光: "Gause 競争モデルの再考" 日
本海洋学会秋季大会. (20100908). 東京
農業大学生物産業学部(北海道網走市)

塚崎あゆみ、西田民人、田上英一郎:
"Chemical characterization of detrital
combined amino acids in oceanic
surface particulate organic matter"
Ocean Sciences Meeting. (20100215).
Portland, Oregon, USA

西田民人、塚崎あゆみ、鈴木麻彩実、加
古正代、田上英一郎: "海水中の脂質の化
学特性 2 ~ 低分子量溶存有機物中の脂質
分子の化学特性 ~" 日本地球化学会第 56
回年会. (20090915). 広島大学東広島キ
ャンパス

塚崎あゆみ、西田民人、田上英一郎: "海
洋表層懸濁態有機物に対する生物体アミ
ノ酸の貢献について" 日本地球化学会第
56 回年会. (20090915). 広島大学東広島
キャンパス

塚崎あゆみ、西田民人、田上英一郎: "海
洋表層懸濁態有機物に対する非生物態ア
ミノ酸の貢献について" 日本有機地球化
学会. (20090807). 松江市くにびきメッセ

塚崎あゆみ、西田民人、田上英一郎: "海
洋表層懸濁態有機物の化学的特性に関す
る研究-中性糖、アミノ糖、アミノ酸につ
いて-" 日本海洋学会春季大会.

(20090405). 東京大学本郷キャンパス

西田民人、谷沙夜香、塚崎あゆみ、松崎
浩之、北川浩之、田上英一郎: "海水中
の脂質の化学特性 2 ~ 溶存脂質の化学特
性とその ¹⁴C 年齢 ~" 日本有機地球化学
シンポジウム. (20080723). 名古屋大学

〔図書〕(計 1 件)

蒲生俊敬、田上英一郎ほか、講談社、海
洋有機化学、2013、320

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

アウトリーチ活動

西田 民人:「練習船の教育関係共同利用
に関するシンポジウム ~ 練習船の共同利
用の現状と展望 ~」(20120203)鹿児島大
学(鹿児島県鹿児島市)

西田 民人:三重大学教育関係共同利

用拠点シンポジウム「練習船「勢水丸」
教育関係共同利用と食文化教育のひろが
り」(20121213)三重大学(三重県津市)

6. 研究組織

(1)研究代表者

田上 英一郎 (TANOUE, Eiichiro)

名古屋大学・地球水循環センター・特任教授
研究者番号: 50133129

(2)研究分担者

原 成光 (HARA Seiko)

宮崎国際大学・比較文化学部・教授

研究者番号: 50261243

西田 民人 (NISHIDA Tamihito)

名古屋大学・大学院・環境学研究科・助教

研究者番号: 50261243