

令和 6 年 4 月 16 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2023

課題番号：20K06226

研究課題名(和文) 海洋珪藻の新生理作用:珪藻はケイ酸塩粒子を摂取する

研究課題名(英文) Novel physiology of oceanic diatoms: they incorporate silicate minerals

研究代表者

赤木 右 (Akagi, Tasuku)

九州大学・理学研究院・教授

研究者番号：80184076

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、珪藻が分泌する光透過性細胞外ポリマー粒子(TEP)に注目し、珪藻がケイ酸塩鉱物のケイ酸を吸収している可能性を探った。その結果、珪藻の培養時、共存ケイ酸塩鉱物の表面に特有の溶解痕が観察されること、珪藻の培養時にケイ酸塩鉱物粒子の存在により珪藻からのTEPの分泌が誘起されること、ケイ酸塩鉱物粒子とTEPの高い親和性があり、速やかにケイ酸塩鉱物は透明細胞外ポリマー粒子に捕捉されること、珪藻コロニーは強く酸性化されること、を明らかにした。この結果は、鉱物からケイ酸イオンを得るために、TEPを分泌し、ケイ酸塩鉱物を捕捉・溶解する一連の生理過程の存在を強く示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

成果は海洋の物質循環に大きな影響を与える。海洋への物質の供給は、主に河川を経由すると考えられてきたが、珪藻を経由した新たなルートの存在が明らかになった。また、珪藻は生態系を支える重要な植物プランクトンであり、栄養元素の循環の議論にも影響する。さらに、堆積物中のオパールが珪藻の指標物質であったが、オパール以外のケイ酸塩成分にも珪藻に由来するものがある可能性がある。海洋学、水産学、古海洋学などの学問に貢献する。さらに、陸源物質が溶解することによるアルカリ度の供給は二酸化炭素を保持する重要な過程であるが、その過程に珪藻が関与している可能性が高く、社会的な課題である炭素循環の議論にも影響を与える。

研究成果の概要(英文)：This study focused on transparent extracellular polymer particles (TEP) secreted by diatoms, and explored the possibility that diatoms dissolve silicate minerals and utilize silicic acid in silicate minerals, as nutrients. In this study, 1) unique dissolution marks were observed on the surface of silicate minerals in diatom cultivation; and 2) TEP secretion from diatoms was induced by the presence of silicate mineral particles in diatom cultivation. 3) A high affinity between silicate mineral particles and TEP was observed, and silicate minerals were quickly captured by TEP. 4) Diatom colonies were strongly acidified by diatom proton pump, identified using by fluorescence microscopy with a pH indicator. The results strongly suggest a series of physiological processes of diatoms that secrete TEP and capture and dissolve silicate minerals to absorb silicic acids from minerals.

研究分野：地球化学

キーワード：珪藻 光透過性細胞外ポリマー粒子 ケイ酸塩鉱物 溶解 培養

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

## 1. 研究開始当初の背景

珪藻のケイ酸質の殻の成分については、以前からオパールからなるとされ、それ以上の化学的な知見はほとんどない。これは、珪藻の量を把握するために確立された分析法(Mortlock and Froelich, 1989)が、珪藻に特徴的な biogenic silica (オパール)のみを分析するためのものであったこと、また培養した珪藻殻中の微量元素の濃度が低いにもかかわらず、天然珪藻殻の微量元素組成が陸源物質の組成によく似ていた (Van Bennekom, 1981 他)ため、陸源物質のコンタミの可能性を排除できなかったことが原因になっている。2000年以降になると、分光学的な方法により、珪藻ケイ酸殻に固有の化学状態を持つ成分も報告(Gehlen et al., 2002; Machill et al., 2013)されるが、これらの成分については不純物以上の見方は提案されなかった。そのような背景のもと、申請者は珪藻ケイ酸殻中の希土類元素の濃度を推定する方法を考案し、それに基づいて海洋の希土類元素の循環に新しい見方を提案した(Akagi et al., 2011; Akagi 2013)。さらに、推定した希土類元素の濃度から珪藻ケイ酸殻中に 1%程度 of Al の存在を予言し、分析電験でほぼ一致する濃度の Al の存在を確認した (Akagi et al., 2013; Emoto et al., 2019) (図 1)。この濃度は、珪藻の殻を形成するケイ酸の 1割がケイ酸塩粒子に由来するという、常識を覆すような考察を導く。

一方、近年フランスの研究グループにより、珪藻を包んでいる光透過性細胞外粒子 (Transparent Exopolymeric Particles, TEP) (図 2) について興味深い性質が報告された(Toullec et al., 2018)。TEP は栄養条件が悪化した際に分泌量が増加するが、その分泌体である珪藻自身への目的は依然不明であった(Passow, 2011)。彼らは、TEP は珪藻土 (珪藻の殻が Al などを吸着して、アルミノケイ酸塩に変質したもの) の溶解速度を高めることを報告した。珪藻土の Al を TEP が攻撃して溶解したのではないかと考察している。Al は陸に起源を持つケイ酸塩鉱物に典型的な元素である。そして、海洋表面においてはほぼ常にケイ酸は枯渇している。もし珪藻が、栄養条件の悪化時に、ケイ酸塩鉱物粒子にケイ酸などの栄養を求めて TEP を分泌したのであれば、TEP は極めて理にかなった物質といえる。

そのような背景の中で、『珪藻がケイ酸塩鉱物粒子をアクティブに溶解し、その中の元素を栄養として吸収するか』を判断する必要があると考えた。アクティブであれば、もはや陸源粒子は単なる粒子ではなく栄養として捉えなければならないだけでなく、その作用は珪藻の成長戦略の一環として進化を通じて獲得した能力であり、珪藻の繁栄に何らかの寄与してきたと考えられるし、また珪藻は海洋での陸源元素の物質循環に強く干渉していることが予想されると考えた。

## 2. 研究の目的

以下の三点を研究の目的とした。

- 1) 珪藻が珪酸塩鉱物中の成分を吸収していることを培養実験により示す。
- 2) その吸収が養分吸収の戦略の一環として能動的に行われているか、それとも受動的に溶解したものを吸収しているか、を明らかにする。

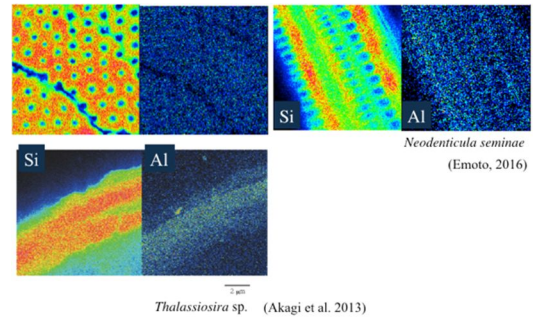


図 1 太平洋で採取した珪藻 (*Thalassiosira* sp.と *Neodenticula seminae*) 殻内部に Al の存在を示す分析電子顕微鏡像 予想した強度とほぼ一致した。

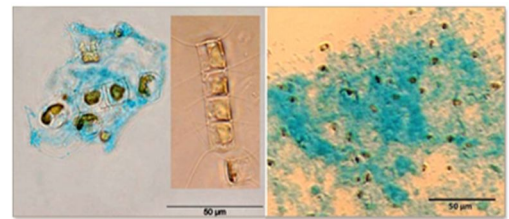


図 2 珪藻を取り囲む光透過性細胞外粒子 (略称 TEP) アルシアンブルーによって青く染色

3) ケイ酸塩鉱物に由来する元素を吸収することが、珪藻にどのような利点をもたらすのか、明らかにする。

### 3. 研究の方法

目的 1 珪藻が珪酸塩鉱物中の成分を吸収していることを珪藻の培養により示す。

羽状目(*Achnanthes Kuwaitensis* Hendey)及び中心目(*Eucampia* sp.)の珪藻各一種ずつの培養を、二種類の斜長石粉末(Albite と Anorthite)を添加した時としない時で、行い、珪藻を重液(ポリタングステン酸ナトリウム溶液)を用いて分離する。分離した珪藻を樹脂に固め、切り出し、ケイ酸殻の切断面を EPMA ないし SEM-EDS を用いて、多試料を長時間積算し高精度の元素マッピングを行った。Si の分布に対応して Al の分布が見られるかどうかで、鉱物からの元素吸収を判断した。

目的 2 その吸収が養分吸収の戦略の一環として能動的に行われているか、それとも受動的に溶解したものを吸収したか、を明らかにする。

i)Albite と Anorthite 系の比較、ii)TEP 観察により行った。

Albite と Anorthite では中間段階でケイ酸( $H_4SiO_4$ )の放出があるかないかが決定的に異なる点、中間段階に至る分解反応の速度は Anorthite の方が約 1000 倍 Albite より大きい(Lasaga et al., 1994)

表 1 添加するケイ酸塩鉱物種の特徴

鉱物	中間段階迄の無機的分解速度	ケイ酸の放出	珪藻による吸収
Albite	小さい	中間段階で有り	能動的
Anorthite	大きい	中間段階で無し	受動的

点、に注目した(表 1)。

Oregon Green 514 蛍光指示薬を用いて、蛍光顕微鏡で珪藻コロニー周辺の pH の測定を行った。

目的 3 ケイ酸塩鉱物中の元素を吸収することが、珪藻にどのような利点をもたらすのか、明らかにする。 培養珪藻の個体数を鉱物の添加の有無で比較した。

### 4. 研究成果

EPMA による珪藻ケイ酸殻の Al/Si 比

小型の *Achnanthes Kuwaitensis* Hendey や *Eucampia* sp. の場合、珪藻のケイ酸殻と有機物の分離が困難であったため、EPMA で精度良く測定できなかった。ハンドピックにより分離できる大型の珪藻(*Coscinodiscus* sp.)を米国 National Center for Marine Algae and Microbiota より入手し、同様に比較培養後、断面を丁寧に電顕分析したところ、系統的に外側のガードルの部分にのみ有意に Al/Si が高くなっていることが確認された。

TEP の分泌量および添加鉱物表面の電子顕微鏡観察

培養実験では、三種の珪藻とも、Albite>Anorthite>鉱物なしの順で TEP の分泌量が変化した。珪藻の培養時にのみ、鉱物の表面に明瞭な溶解痕が観察され、鉱物上の溶解痕では C/Si 比が高かった。C/Si は Albite の表面の方が Anorthite の表面より有意に高く、珪藻のない系では C/Si はゼロであった。以上の結果は、珪藻からの TEP の分泌が共存鉱物の存在に依存すること、珪藻はケイ酸を摂取することを目的として、Albite に対し、Anorthite よりもより多くの TEP を分泌したと考えられた。

### 珪藻コロニーの pH 測定

鋳物の溶解は pH の低下により促進される。Oregon Green 514 蛍光指示薬を用いて、蛍光顕微鏡で珪藻コロニー周辺の pH の測定を行った結果、コロニー周辺は pH がおよそ 3 程度と低いこと、さらに塩化水銀を加え、珪藻の水の動きを止めるとコロニー周辺の pH は直ちに上昇し、その 30 分後にはまた低い pH に戻ることがわかった。このことより、珪藻がプロトンポンプによりコロニー内部の pH を積極的に下げていることが分かった。

### 個体数の観察

培養珪藻の個体数を鋳物の添加の有無で比較した。しかし、鋳物の共存時に個体数の有意な増加は確認されなかった。その原因として、コロニーの中に死亡した珪藻（中に何も入っていないケイ酸殻）が多数確認されることから、殻の溶解によりコロニー内にケイ酸が供給されるために、鋳物の添加のメリットが薄れているのではないかと考えられた。培養系では、自然の系とは異なり培養系に古いコロニーがどうしても残ってしまうために、培養実験の根本的な見直しが必要である。

### 珪藻によるケイ酸塩粒子溶解のメカニズム

以上の研究より、珪藻によるケイ酸溶解について次のような一連のプロセスが提示できた。

珪藻が成長するにつれ、溶存ケイ酸が枯渇すると、珪藻は TEP を分泌する。TEP は糖からできているため、珪藻はこれを光があるかぎり合成できると考えられる。TEP はケイ酸塩粒子との親和性が高く、周辺のケイ酸塩鋳物を捕捉する。珪藻はプロトンポンプにより TEP 内の pH を酸性にし、効率よくケイ酸塩鋳物を溶解する。ケイ酸塩鋳物中の金属元素はケイ酸と共に吸収され、ケイ酸殻に取り込まれる。これらの一連の過程は、珪藻の生理作用であることを強く示している。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Nishino H., K. Fujimori, T. Akagi	4. 巻 56
2. 論文標題 A new experimental method to determine partitioning coefficients of rare earth elements on carbonate (calcite and aragonite) in seawater: identification of two major factors causing variation: Fe hydroxide adsorption and growth/dissolution inhibition of carbonate.	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Geochemical Journal	6. 最初と最後の頁 112-128
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2343/geochemj.GJ22009	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Akagi, T. H., Nishino	4. 巻 235
2. 論文標題 Unified modelling of contrasting basin-scale dissolved Al distributions using dissolution kinetics of diatom aggregates.: implication for upwelling intensity as a primary factor to control opal burial rate.	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Marine Chemistry	6. 最初と最後の頁 1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.marchem.2021.104009	査読の有無 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 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 赤木右
2. 発表標題 希土類元素から開いた氷期-間氷期サイクル解明への扉
3. 学会等名 2021年度日本地球化学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Welti Sophia Elisa・赤木 右
2. 発表標題 Incorporation of terrigenous materials into diatom frustules
3. 学会等名 2021年度日本地球化学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 赤木 右, 伊藤倫, 石原健
2. 発表標題 海洋珪藻光透過性細胞外ポリマー粒子(TEP)のpH測定 強酸性とその意義
3. 学会等名 JpGU-AGU2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Kana Fujimori, Hirotaka Nishino and Tasuku Akagi
2. 発表標題 Identification of factors affecting partitioning of rare earth elements between calcite and seawater
3. 学会等名 JpGU-AGU2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 赤木 右
2. 発表標題 氷期サイクルの開始と維持のための 新しいメカニズム
3. 学会等名 質量分析学会、同位体比部会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 赤木 右
2. 発表標題 希土類元素研究から始まった生物化学風化研究:氷期-間氷期サイクルにおける炭素循環
3. 学会等名 2022年度日本地球化学会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 赤木 右
2. 発表標題 生物による風化と新しい炭素循環
3. 学会等名 2023年度日本地球化学会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 赤木右・田尻礼・島田和彦
2. 発表標題 珪藻がケイ酸塩鉱物を溶解するメカニズム
3. 学会等名 2023年度日本地球化学会
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 赤木 右	4. 発行年 2023年
2. 出版社 共立出版	5. 総ページ数 189
3. 書名 生物による風化が地球の環境を変えた	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------