

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 4 月 11 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (海外学術調査)

研究期間：2014～2016

課題番号：26302008

研究課題名(和文) タイ国産腕足動物化石の炭素・酸素同位体組成を用いた石炭紀～ペルム紀の古環境復元

研究課題名(英文) Carboniferous and Permian paleoceanographic condition reconstructed from carbon and oxygen isotope composition of brachiopod shells from Thailand

研究代表者

井龍 康文 (Yasufumi, Iryu)

東北大学・理学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：00250671

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,300,000円

研究成果の概要(和文)：タイ中央部に分布する石炭系～ペルム系産の腕足動物化石殻に対して、現生腕足動物殻の炭素・酸素同位体組成および化学組成の殻内変異に関する研究で確立された分析手法を応用し、化石殻を用いた古環境復元の手法を確立し、石炭紀およびペルム紀における低緯度域の古海洋環境を復元する研究を行った。その結果、生物学的同位体効果および続成作用の影響を被っていない部分を同定するプロトコルを確立することができた。そのような未変質部分の同位体組成から復元されるキャピタニアン期の熱帯域における海水温を復元したところ、現在の海洋における熱帯域の海水温と近い値が得られた。

研究成果の概要(英文)：There are significant intrashell variations in carbon and oxygen isotope composition ( $d_{13}C$  and  $d_{18}O$ , respectively) and trace element concentrations in modern brachiopod shells. This knowledge was applied to Carboniferous and Permian brachiopod shells collected from central Thailand, resulting in the establishment of a standard protocol to find shell portions, the original isotopic and chemical compositions of which were not affected by the vital effect and diagenetic alteration. Capitanian (Permian) seawater temperature estimated from the  $d_{18}O$  values of such shell portions was 28-35 °C. This value is very similar to that in the equatorial region.

研究分野：炭酸塩地球化学

キーワード：腕足動物 炭素同位体 酸素同位体 微量元素 古生代 古環境 タイ

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 腕足動物は顕生代の全期間において連続的で豊富な化石記録を有する海棲無脊椎動物である。腕足動物の中でも特に嘴殻亜門 (Rhynchonelliformea) に属するもの (以後、'腕足動物' と呼称する) の殻は、緻密な構造を有し、初生的に低マグネシウム方解石よりなることから続成作用を被りにくいとされている。また、1960年代初頭に、現生腕足動物の殻は酸素同位体に関して生息地の海水と同位体平衡下で形成されており、殻の  $\delta^{18}\text{O}$  は古水温指標として有用であるという報告がなされたことから、腕足動物が最も繁栄した古生代を中心として、それらの殻 (特に殻の大部分を占める二次層と呼ばれる部位) の  $\delta^{13}\text{C}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  に基づいた古環境復元が精力的に進められてきた。しかしながら、殻の  $\delta^{13}\text{C}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  が、初生的に海洋環境をどの程度正確に反映しているのか、その古環境指標としての有用性に関する厳密な評価は、Auclair *et al.* (2003, *Chemical Geology*, 202, 59–78) が行った研究が一例あるのみであった。

(2) そこで、申請者は平成 21 年度より科学研究補助金基盤研究(B)の交付を受け (平成 23 年度まで)、岩手県大槌湾 (冷水帯域) の水深 70 m に生息する *Terebratulina crossei* および *Terebratalia coreanica*、神奈川県相模湾 (温帯域) の水深 85 m に生息する *Laqueus rubellus*、鹿児島県奄美大島沖 (亜熱帯域) の水深 180 m ~ 200 m に生息する *Kikaithyris hanzawai* および *Basiliola lucida*、沖縄本島西方の陸棚斜面 (水深 600 m) より採取された *Campages japonica* の 6 属 6 種の殻の  $\delta^{13}\text{C}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  に関する研究を行った。同研究では、腹殻 (今後、特に断らない限り、殻とは腹殻を指すこととする) の二次層の 3 次元的な微小サンプリングにより、同一殻内および種間での  $\delta^{13}\text{C}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  の差異を明らかにし、生息地近傍の海水と同位体平衡下で形成された方解石 (以後、平衡方解石と呼称する) の  $\delta^{13}\text{C}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  を求め、殻の  $\delta^{13}\text{C}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  との比較を行った。その結果、腕足動物殻の  $\delta^{13}\text{C}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  には、平衡方解石の  $\delta^{13}\text{C}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  の範囲内に収まる部分と外れる部分の両方が認められ、そのずれの有無や程度は、種、殻の部位、成長段階により異なることが示された。また、これまでに未解明であった腕足動物の  $\delta^{13}\text{C}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  の個体差に関する研究を行い、単一試料で行った研究結果の普遍性の有無と殻の  $\delta^{13}\text{C}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  を用いた古環境復元を行う際の信頼性を明らかにした。以上の研究によって、腕足動物を用いた古環境解析に最適な種と殻の部位、すなわち、海洋環境 (溶存無機炭素の  $\delta^{13}\text{C}$  および海水温ならびに海水の  $\delta^{18}\text{O}$ ) をよく反映した部位を特定することができたことは、今後の腕足動物化石を用いた古海洋研究に大きく貢献すると期待できる。このような一連の現生腕足動物殻の  $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$  に関する研究は、その成果を化石に応用し、顕生代の海洋環境を明らかにするための基礎研究

であり、次のステップとして、これまでの研究成果を、腕足動物化石殻の  $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$  に応用するケーススタディを開始する必要がある。

## 2. 研究の目的

(1) 熱帯~亜熱帯域の海洋環境の変動は、大洋全域の海水温分布を変化させ、これに伴った気圧配置などの変化により、汎世界的な気候に影響を及ぼすことが知られている。よって、過去において熱帯~亜熱帯域に位置していた海域の動態を知ることは、当時の地球全体の (グローバルな) 気候変動を解明する上で重要である。古生代を通じて主に熱帯浅海域に広く生息していた腕足動物の同位体組成は、低緯度域の海洋環境を復元する上で有用であるとされてきた。しかし、腕足動物化石を用いた従来の研究では、上述の部位の違いによる同位体組成のばらつきを考慮に入れてこなかったため、当時の気候変動シグナルを精度よく、かつ高い再現性で復元できていないのが現状である。

(2) そこで、本研究では、タイ中央部に分布する石炭系~ペルム系産の腕足動物化石殻を用い、現生腕足動物の知見より確立された分析手法を同化石に応用し、腕足動物化石を用いた古環境復元の手法を確立するとともに、石炭紀~ペルム紀を通じた低緯度域の古海洋環境を再現性高く詳細に描き出すことを目的とする。

(3) さらに、腕足動物殻の骨格記録と比較・検討するために、造礁サンゴ骨格やシャコガイ殻の記録の研究も行った。

## 3. 研究の方法

(1) タイ中央部に分布する石炭系~ペルム系は、当時、熱帯赤道域の超海洋パンサラッサ沖で堆積した堆積岩 (頁岩~砂岩、石灰岩) であり、保存のよい腕足動物化石を多数産出することが知られている。よって、現タイ中央部より産出する腕足動物化石は、石炭紀~ペルム紀の時期に半閉鎖的な古テチス海に生息していた腕足動物と比較して、当時の熱帯域の海洋環境をよりよく記録していると考えられる。また、アクセスのよさ、ならびに古生物学的・地質学的データが蓄積されている等の条件も整っている。以上を踏まえて、本研究ではタイ中央部を研究調査候補地域とした。

(2) タイ国インドシナ地塊から採取されたペルム系下部~中部のプロダクタス科腕足動物化石のうち、保存のよい個体が多く偉た 2 種 (*Tyloplecta yangtzeensis* ならびに *Liraplecta* sp.) の炭素・酸素同位体組成を検討した。また、従来用いられてきた続成判定法 (薄片観察、走査電子顕微鏡 (SEM) 像観察、カソードルミネッセンス (CL) 像観察、微量金属元素濃度測定) に基づいて続成作用の影響の有無を評価し、その妥当性を検証した。具体的には、*T. yangtzeensis*

(PHE-1~PHE-5) 5 個体と *Liraplecta* sp. (LOP-1~LOP-4) 4 個体を最大成長軸に沿って切断し、その切断面における腹殻内側から炭素・酸素同位体比分析用ならびに微量金属元素分析(化学分析)用の粉末試料を採取した。さらに、*T. yangtzeensis* については、腹殻内側の殻頂から約 23~30 mm の部位において、腹殻内側表面から腹殻外側表面に向かって、約 0.3~0.5 mm 間隔で粉末試料を採取した。全ての殻について、SEM 観察および CL 像観察を行った。また、粉末試料について、粉末 X 線回折(XRD)分析、炭素・酸素同位体比測定、微量金属元素(Na, Mg, Ca, Mn, Fe, Sr)濃度測定を行った。

(3) 上記のデータを用いて、続成作用の影響を被っていないと判断され、個体差ならびに殻内差が最も小さい種・部位の炭素・酸素同位体組成を従来の研究により得られている同時期のデータと比較し、その古海洋環境の復元の再現性を議論した。

#### 4. 研究成果

以下は、本科研費で採取した腕足動物殻を検討した滝澤(2016; 滝澤 護, 2016, タイ国のインドシナ地塊から産するペルム系プロダクタス科腕足動物殻化石の地球化学・東北大学大学院理学研究科地学専攻修士論文)の成果をまとめたものである。

##### (1) 続成作用の影響の評価

*T. yangtzeensis* の最大成長軸に沿って切断された腹殻断面の殻構造は、その微細構造と炭素同位体組成の変動傾向の違いから、5 つの区間(Interval 1~5)に区分された。同殻の内側表面ならびに外側表面の一部には、ラミナ状 2 次層の破壊と炭素同位体組成の有意な減少が確認された。これは、陸水続成作用の影響によるものと考えられる。また、*T. yangtzeensis* の腹殻の内側表面における殻頂部(Interval 1)ならびに殻端部(Interval 4 と Interval 5)では、Mn/Ca 比および Fe/Ca 比の増加ならびに酸素同位体組成の減少が認められ、埋没続成作用による殻の化学組成の改変が示唆された。一方、*T. yangtzeensis* のプリズム状 3 次層から得られた Mn/Ca 比および Fe/Ca 比はいずれもラミナ状 2 次層から得られた試料の値より、系統的に値が小さく、酸素同位体組成の値は大きかった。これは、プリズム状 3 次層が、ラミナ状 2 次層と比べて、続成作用を被りにくいことを示している。さらに、腹殻内側の Interval 3 と Depth series のプリズム状 3 次層とでは、前者の方がより値の収束がよい。したがって、*T. yangtzeensis* の酸素同位体組成を用いた古水温復元を行う場合には、腹殻内側の Interval 3 より得られた試料を用いるべきである。一方、炭素同位体組成は、本試料が被った続成作用が主に埋没続成作用であり、陸水続成作用の影響が限定的であることを考慮すると、個体間ならびに殻内における値のばらつきが小さい、殻

端部(Interval 4)の炭素同位体組成を古環境復元のプロキシとして用いることが望ましいと考えられる。

*Liraplecta* sp. の最大成長軸に対する腹殻断面の殻構造は、一部の個体を除いて、ラミナ状 2 次層のみからなる。SEM を用いて観察した *Liraplecta* sp. のラミナ状 2 次層は、その大部分が細粒化し、初生的な構造を保持していないと判断された。微細構造を観察した部位における酸素同位体組成には有意な値の差がみられたが、その微細構造の保存状態との関係は不明確であった。また、腹殻内側における金属元素濃度と炭素・酸素同位体組成にもその変動に関係性を見いだすことはできなかった。しかし、*Liraplecta* sp. から得られた酸素同位体組成と先行研究から予想されるペルム紀の  $\delta^{18}\text{OSW}$  から計算された水温が、40 °C を大きく超える値であったことや同殻のストロンチウム同位体比がコノドント化石層序から予想される地質時代の値よりも小さかったことから、*Liraplecta* sp. は、島弧火山活動による熱水続成作用を被った可能性が高いことが判明した。また、*Liraplecta* sp. の腹殻内側表面から炭素・酸素同位体組成には、値が収束する部位がみられなかった。これは、初生的に個体間における同位体組成の収束が悪いタクサであったか、続成作用の影響で同位体組成が不均質になってしまったと考えられる。したがって、本研究で用いた *Liraplecta* sp. の炭素・酸素同位体組成を古環境復元のプロキシに用いることは、不適切であると考えられる。

##### (2) 続成判定法の妥当性

本研究では、SEM による微細構造の観察を化学組成の分析を行った部位のごく近傍で行うことにより、個体間における化学組成のばらつきを無視して、ラミナ状 2 次層における続成作用に伴う炭素・酸素同位体組成の改変と微細構造の破壊の関係を定量的に明らかにすることができた。しかし、微細構造の観察では、構造の変化に乏しいプリズム状 3 次層の続成作用の判定を行うことは不向きであると考えられる。

本研究で用いた腕足動物殻とその母岩ならびに方解石セメントの Mn, Fe 濃度を従来の CL 発光強度の解釈(Machel et al., 1991)と比較した。その結果、検討した試料の CL 発光の程度と Mn ならびに Fe 濃度の分布が従来の解釈と必ずしも一致しないことが明らかとなった。これは、研究者間の手法の違いによる CL 発光強度の変化や Mn と Fe の量比と CL 発光強度の関係性の解釈が不適切であることに起因すると考えられる。CL 像観察を信頼性の高い続成判定法として利用するためには、今後、炭酸塩生物化石を用いた CL 発光強度と Mn, Fe 濃度に関する基礎的研究が不可欠であると考えられる。

従来の研究では、現生腕足動物殻の微量金属元素濃度や他の研究によって定められた“保存の良い”腕足動物殻化石の微量金属元素濃

度の範囲を閾値とし、その値以上（または以下）であるかが基準となってきた。本研究で用いた *T. yangtzeensis* は、従来の基準を適用した場合には、例外的な値を除いて“保存がよい”と判断された。しかし、*T. yangtzeensis* の腹殻内側における酸素同位体組成と Mn/Ca 比ならびに Fe/Ca 比の変動プロファイルを詳細に比較することで続成作用を被った部位を特定することができた。したがって、殻内における値のばらつきが比較的小さく、かつ続成作用に伴ってその値が大きく変化する Mn や Fe の濃度を、殻内・個体間で比較することで続成作用の影響を正確に評価することができる。

### (3) 化学組成の変化と代謝効果の関係

本研究で検討した *T. yangtzeensis* と *Liraplecta* sp. には、いずれも殻中央部に 2 つの炭素同位体組成の極小値が認められた。これは、筋肉痕における代謝効果に伴う炭素同位体組成の減少が原因であると考えられる。また、殻中央部には Mg/Ca 比の極大値が認められた。この部位における炭酸マグネシウム含有量の増加がみられなかったことから、Mg/Ca 比の増加は、殻中の有機物由来の Mg の濃集によるものと考えられる。これらの代謝効果による炭素同位体組成の減少や殻中の有機物含有量の増加は、殻形成時における局所的な呼吸起源の炭素同位体組成の寄与率の増加と pH の低下を示唆するものである。

### (4) 殻成長と化学組成の変化

*T. yangtzeensis* の最大成長軸における殻断面の観察から、*T. yangtzeensis* の腹殻は異なる 3 つの成長段階（Stage 1～Stage 3）を経て、殻を成熟させることが明らかとなった。この 3 つの成長段階の変化は、炭素同位体組成の変化とよく一致した。もし、この殻成長が他のプロダクタス目腕足動物でも同様にみられる場合、*T. yangtzeensis* の炭素同位体組成の変動パターンと共通する可能性がある。したがって、プロダクタス目の腕足動物化石において、*T. yangtzeensis* の腹殻内側の Interval 4 ならびに Interval 3 に対応する部位の炭素・酸素同位体組成が、*T. yangtzeensis* と同様に有用な古環境プロキシとして利用できる可能性がある。

### (5) 古海洋環境の復元と先行研究との比較

グアダルピアン世における腕足動物殻化石を用いた先行研究と *T. yangtzeensis* の炭素・酸素同位体組成ならびに酸素同位体組成から計算された海水温の緯度変化と時代変化を検討した。その結果、*T. yangtzeensis* の酸素同位体組成から得られたグアダルピアン世キャピタニアン期の熱帯域における海水温は、27.7～34.6 °C であり、現在の海洋における熱帯域の海水温と近い値であった。グアダルピアン世の緯度間の水温勾配は、現在の海洋と比べて緩やかであり、現在より温暖の傾向を示した。*T. yangtzeensis* の炭素同位体組成は、先行研究の値と比べて、小さい値をとったが、これは、リンコネラ綱とストロフォメ

ナ綱腕足動物殻における種間差によるものであると考えられる。これは、異なる地域ならびに地質時代の炭素同位体組成を比較する際には、同位体組成の種間差および殻内差を十分に検討する必要があることを示唆している。

以上の結果は、*T. yangtzeensis* の殻の中でも、適切な部位の炭素・酸素同位体組成を用いることで、従来よりも極めて高精度でペルム紀の海洋環境を復元できることを示している。

## 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 4 件）

Andrews, A. H., Asami, R., Iryu, Y., Kobayashi, D. R. and Camacho, F. (2016) Bomb-produced radiocarbon in the western tropical Pacific Ocean-Guam coral reveals operation-specific signals from the Pacific Proving Grounds. *Journal of Geophysical Research (Oceans)* 121, 6351–6366, doi: 10.1002/2016JC012043.

Yamanashi, J., Takayanagi, H., Isaji, A., Asami, R. and Iryu, Y. (2016) Carbon and Oxygen Isotope Records from *Tridacna derasa* Shells: Toward Establishing a Reliable Proxy for Sea Surface Environments. *PLoS ONE* 11(6): e0157659. doi: 10.1371/journal.pone.0157659

滝澤 護・高柳栄子・山本鋼志・佐々木圭一・井龍康文 (2016) 続成作用による腕足動物殻の初生的化学組成の保持・変化の判定基準の見直し. 号外海洋 56, 27–35.

Takayanagi, H., Asami, R., Otake, T., Abe, O., Miyajima, T., Kitagawae, H. and Iryu, Y. (2015) Quantitative analysis of intraspecific variations in the carbon and oxygen isotope compositions of the modern cool-temperate brachiopod *Terebratulina crossei*. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 170, 301–320. doi: 10.1016/j.gca.2015.08.006.

〔学会発表〕（計 11 件）

滝澤 護・佐藤晋佑・Lapone Techapinyawat・高柳栄子・Thasinee Charoentitirat・浅海竜司・阿部 理・原英俊・曾根正敏・山本鋼志・井龍康文 (2016) タイ国のペルム系より採取された腕足動物化石 *Tyloplecta yangtzeensis* の地球化学. 第 10 回東北大学大学院理学研究科 6 専攻合同シンポジウム, ポスター, 2017 年 2 月 17 日, 仙台 (東北大学理学部).

滝澤 護・佐藤晋佑・Lapone Techapinyawat・高柳栄子・Thasinee Charoentitirat・浅海竜司・阿部 理・原英俊・曾根正敏・山本鋼志・井龍康文 (2016) 腕足動物化石の炭素・酸素同位

体組成と殻の微細構造は続成作用の進行によってどのように変化するか。日本地質学会第123年学術大会(桜上水大会), ポスター, 2016年9月10~12日, 東京(日本大学桜上水キャンパス)。

滝澤 護・高柳栄子・山本鋼志・阿部理・佐々木圭一・井龍康文(2016)最終氷期の腕足動物殻化石を用いた中琉球の古環境復元。日本古生物学会2016年年会・総会, 口頭, 2016年6月24~26日, 福井(福井県立大学・福井県立恐竜博物館)。

Andrews, A. H., Asami, R., Iryu, Y., Kobayashi, D., Fučkar, N. S. and Camacho, F (2015) Bomb-produced radiocarbon in the western tropical Pacific Ocean—Guam coral reveals operation-specific signals from the Pacific Proving Grounds. 13th International Coral Reef Symposium, oral, June 19–24, 2016, Honolulu (USA).

滝澤 護, Lapone Techapinawat, 高柳栄子, Thasinee Charoentitirat, 浅海竜司, 阿部理, 原 英俊, 曾根正敏, 山本鋼志, 井龍康文(2015)タイ国インドシナ地塊(ペルム系)より産出した腕足動物殻化石における炭素・酸素同位体組成の殻内変化および個体差。日本地質学会第122年学術大会(長野大会), ポスター, 2015年9月11~13日, 長野(信州大学工学部) Takizawa, M., Takayanagi, H., Yamamoto, K., Sasaki, K. and Iryu, Y. (2015) Intraspecific variation in isotopic composition and trace element concentrations of Pleistocene brachiopods. 日本地球惑星連合大会2015年大会, ポスター, 2015年5月24~28日, 千葉(幕張メッセ)。

Takayanagi, H., Asami, R., Otake, T., Abe, O., Miyajima, T., Sasaki, K., Kitagawa, H., and Iryu, Y. (2015) Within- and inter-shell variations in carbon and oxygen isotope composition of modern brachiopods. 7th International Brachiopod Congress, oral, May 22–25, 2015, Nanjing (China). 5月24日発表

滝澤 護・高柳栄子・山本鋼志・佐々木圭一・井龍康文(2015)喜界島湾産の *Kikaithyris hanzawai* (約70 ka) の炭素・酸素同位体組成による古海洋環境復元。日本地質学会東北支部2014年度総会, 口頭, 2015年3月7~8日, 盛岡(岩手大学)。

福留綾里紗・浅海竜司・阿部理・高柳栄子・平井 彰・井龍康文(2015)石垣島の現生サンゴ骨格から復元された過去約500年間の海洋環境変動。日本古生物学会第164回例会, ポスター, 2015年1月30日~2月1日, 豊橋(豊橋自然史博物館)。

高柳栄子・浅海竜司・大竹二雄・阿部理・宮島利宏・北川浩之・井龍康文(2015)

腕足動物の同位体記録を歪める原因。日本古生物学会第164回例会, ポスター, 2015年1月30日~2月1日, 豊橋(豊橋自然史博物館)。

田中啓・安田友紀・鈴木和博・久保貴志・申 基澈・高柳栄子・井龍康文・浅原良浩(2014)鉄同位体を利用した古海洋環境復元の試み。第4回同位体環境学シンポジウム, 口頭, 2014年12月22日, 京都(総合地球環境研究所)。

〔図書〕(計0件)

〔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

5. 古環境指標としての腕足動物殻の炭素・酸素同位体組成の有用性の検討

<http://dges.es.tohoku.ac.jp/iryulab/research5.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者

井龍 康文(IRYU, Yasufumi)  
東北大学・大学院理学研究科・教授  
研究者番号: 00250671

(2)連携研究者

山本鋼志(YAMAMOTO, Koshi)  
名古屋大学・環境学研究科・教授  
研究者番号: 70183689

(3)連携研究者

原 英俊(HARA, Hidetoshi)  
独立行政法人産業技術総合研究所・地質情報研究部門・主任研究員  
研究者番号: 60357811

(4)研究協力者

浅海竜司 (ASAMI, Ryuji)  
い琉球大学・理学部・准教授  
研究者番号：00400242

(5)連携研究者

阿部 理 (ABE, Osamu)  
名古屋大学・環境学研究科・助教  
研究者番号：00293720

(6)連携研究者

高柳栄子 (TAKAYANAGI, Hideko)  
東北大学・大学院理学研究科・助教  
研究者番号：40729208