

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 23 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2014

課題番号：23540544

研究課題名(和文)バイオマーカーによって明らかにするイノセラムスの古生態

研究課題名(英文)Palaeo-ecology of Inoceramus solved by biomarker

研究代表者

荻原 成騎(Ogihara, Shigenori)

東京大学・理学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：50214044

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：保存が良好な天塩中川産イノセラムス化石のバイオマーカー組成は、炭化水素画分において、n-アルカンの分布が特徴的である。n-C16とn-C17に頂点を持ち、n-C13からn-C21までのユニモーダルな分布である。CPI(C13-21)は0.79であった。n-アルカンの個別炭素同位体組成は、-30パーミルを下回らない。PMIやクロセタンは検出されなかった。脂肪酸は卓越するC16脂肪酸と-30パーミルを下回らない炭素同位体組成で特徴付けられる。芳香族画分ではペリレンが卓越した。化学合成群集との共生を直接的に示すバイオマーカーは検出されていないが、化学合成群集の可能性が示された。

研究成果の概要(英文)：The result of biomarker analysis has distribution of n-alkane was from n-C13 to n-C21, bimodal peak in n-C16 and n-C17, and CPI (C13-21) value indicated the price of 0.79. The distribution of n-alkane is characteristic in the Inoceramus samples from Teshio Nakagawa Tanno-sawa which preservation was good. Individual carbon isotope compositions of each n-alkane were not felled below -30 per mill. The results of biomarker analysis of other Inoceramus samples consisted of the mixture of low carbon numbered (n-C13 to n-C21) alkane and n-C29 and n-C31 alkane. PMI and crocetane, were not detected. The fatty acid composition was characterized by excel C16 fatty acid and its carbon isotope composition higher than-30 per mill. Perylene was a dominant compound in the PAH fraction extracted from Inoceramus samples. Thus the special biomarker which determines chemosynthetic community was not detected, but a possibility was indicated focusing on a result of the biomarker analysis.

研究分野：有機地球化学

キーワード：イノセラムス 化学合成生物群集 バイオマーカー 個別炭素同位体 炭酸塩ノジュール

1. 研究開始当初の背景

(1) イノセラムス類は中生代後期を代表する化石二枚貝の一群で、時代ごとの形態変化が著しく、その産出頻度も高いため化石層序及び記載分類学的研究も盛んに行われてきた。イノセラムス類の多くは足糸付着型の表在底生動物であるので自生の状態では残りにくく、その古生態学的研究は層序学、分類学的研究と比べてはるかに少ない。Sageman (1989) は、生息環境とイノセラムスの産出の関係について議論した。この論文では海底面における酸素濃度を岩相から推定した。これが一般的層序学/古生物学的手法を用いた酸化還元古環境推定の限界なのかもしれない。早川ら (1994) の研究では、北海道遠別地域における安川層群では、イノセラムスなど化石の多産する平行葉理の発達した凝灰岩の風化した部分の観察から、強い硫黄臭と割れ目に硫黄の濃集が認められるのが特徴の一つとされている。Kaffman et al.(1990)では、大型のイノセラムス類が、パイライトと有機物を多く含み、かつ他の生物多様性の小さい層準に産することから、化学合成群集である可能性が高いとした。これらの研究は、状況証拠からの推定であり、化学合成を示す直接的な証拠にかける。

2. 研究の目的

(1) イノセラムス類が化学合成菌と共生していた可能性の検証は、通常古生物学的手法では解明することに困難をともなう。本研究では、バイオマーカー分析を中心とした化学分析手法を用いることにより、共生細菌の膜脂質を検出し、イノセラムスと共生細菌の関係を明らかにする。

イノセラムス類が化学合成群集であった場合には、イノセラムス類の進化(時代変遷)とともに共生細菌との共生関係の変化について明らかにする。すなわち、白亜紀無酸素事変に伴って拡散した可能性が指摘されている数種の嫌気性古細菌の進化と拡散について、イノセラムス類の進化、古生態の変遷との関係を明らかにする。

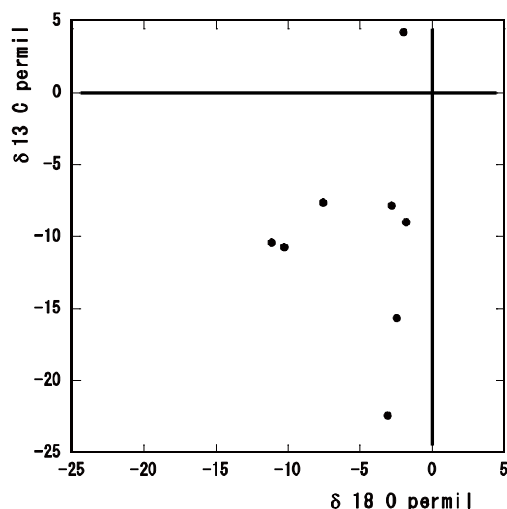
3. 研究の方法

(1) 続成作用を出来る限り被っていないイノセラムス化石を採取、収集し、バイオマーカー分析によって共生細菌の膜脂質の検出とその個別炭素同位体組成の測定に努める。化学合成生物群集であるイノセラムスの最初の記載を行なうことを目的とする。

(2) 各時代(特に海洋無酸素事変を挟んだ時代)による共生関係、共生細菌種の変化をバイオマーカー分析によって検出することを目的とする。ここでバイオマーカーは、そもそも堆積環境指標である。イノセラムスが細菌との共生関係を見出せなかった場合には、分析結果を元にイノセラムスの生息環境を推定し、形態、生態と関連付けて議論を行なうことを目的とする。

4. 研究成果

(1) 国立科学博物館、天塩中川町博物館などの協力によって収集した合弁イノセラムス試料と、北海道白亜系の踏査により採取したイノセラムス試料についてバイオマーカー分析を行い、化学合成群集としての評価を試みた。バイオマーカー分析に先立ち、続成作用を評価するために、粉末X線回折分析、炭酸塩炭素同位体分析、硫黄同位体分析、微量組成分析(XRF)を行い、被った続成を評価した。XRF分析から、天塩中川地域の複数試料のイノセラムス殻は、アラゴナイトのまま保存されていた。殻以外に、アラゴナイトは検出されなかった。下図にアラゴナイト殻およびイノセラムス化石内部のカルサイト沈殿についての炭酸塩炭素同位体組成分析の結果である。第一象限にプロットされた分析値がアラゴナイト殻である。ノジュールを形成しているカルサイトの炭酸塩炭素同位体組成は、 -10 per mil 前後が多く、最低でも -25 per mil を下回ることはない。一般に冷湧水炭酸塩岩の認定には -30 per mil 以下なる基準を用いるが、絶対的な基準ではなく、本研究で示した -23 per mil は、冷湧水の可能性を示している。

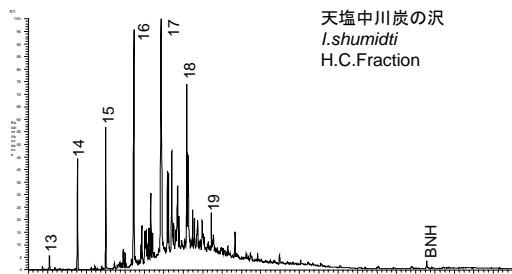


下表にイノセラムスノジュールの全硫黄量と同位体組成を示した。硫黄同位体組成は、被続成作用の評価指標として用いられたことが、ほとんどないである。この値は海水の値(20 permil)に近いほど、続成初期に形成されたノジュールであると推定される。

	産地	bulk-S%	δ34S permil
<i>I. bulticus</i>	遠別	0.09	-14.9
<i>I. orientalis</i>	オソウシナイ	0.40	1.2
<i>I. schmidtii</i>	貫別	0.55	5.2
<i>I. bulticus</i>	稚内	0.32	-7.2
<i>I. bulticus</i>	穂別	0.04	12.3
<i>I. bulticus</i>	遠別	0.21	8.2

このように、硫黄同位体組成は、ノジュール形成のタイミングを知る有効な指標として利用できる可能性がある。

(2) バイオマーカー分析には、保存が良好な（アラゴナイト殻が残っているなど、続成作用を比較的被っていない）天塩中川炭の沢産イノセラムス化石を中心に行った。バイオマーカー組成の特徴は、炭化水素画分において、n-アルカンの分布が特徴的である。すなわち、n-C16 と n-C17 に頂点を持ち、n-C13 から n-C21 までのユニモーダルな分布を示した。ここで CPI(C13-21) 値は 0.79 と 1 以下の値を示した。各 n-アルカンの個別炭素同位体組成は、-30 パーミルを下回らない。他試料の分析結果についてはこのような n-アルカンのユニモーダルな分布と n-C29 と n-C31 に頂点を持つ陸源高等植物を起源とする n-アルカンの混合で形成されている。下図に、典型的な例として、天塩中川炭の沢産出の *I.shmidit* の炭化水素画分の分析結果を示した。炭素数 C14 から C18 が卓越し、偶数炭素数 (C14,C16,C18) が前後の奇数炭素数と比較して優位である。この区間での CPI>1.0 である。この試料では、高等植物起源の高炭素数アルカンが欠如し、環状化合物としては、Bisnorhopane が僅かに検出された。



(上図：保存の良好なイノセラム化石より抽出した炭化水素画分の TIC)

下表に代表的試料の分析結果、n-アルカン個別炭素同位体組成、CPI 値を示した。分析した全ての試料について、C13 から C21 の範囲に置いて、CPI<1.0 であった。個別炭素組成は、個々の試料において揃っており、C16 から C21 までの n-アルカンの起源が同一であることを示している。

直鎖アルカンの特徴 個別炭素同位体組成とCPI値				
試料名	産地	n-alkane 炭素数	炭素同位体組成 (per mil)	CPI
<i>I.bulticus</i>	遠別	16	-29.1	0.83
		17	-29	
		18	-29.1	
		19	-29.1	
		20	-29.2	
<i>I.schmidti</i>	炭の沢	14	-26.4	0.86
		15	-27.4	
		16	-27.3	
		17	-27.4	
		18	-26.7	
<i>I.schmidti</i>	オソウシナイ	16	-27.4	0.96
		17	-27.3	
		18	-26.5	
		19	-26.7	
		20	-25.8	

(3) これに対して、PMI やクロセタンのようなメタン酸化古細菌を起源とするイソプレノイド炭化水素は検出されなかった。また、脂肪酸は卓越する C16 脂肪酸と -30 パーミルを下回らない炭素同位体組成で特徴付けられる。芳香族画分ではペリレンが卓越した。

(4) 偶数優位性 n-アルカンの議論の歴史は古く（たとえば、Clark and Blumer,1967）、現在受け入れられている偶数炭素数優位性を持つ n-アルカンの起源は、a 人間の活動によって地下から組み上げられた原油による汚染、b 高アルカリ環境（アルカリ塩湖など）において沈殿した炭酸塩、c 強還元化での続成作用、d ある種のバクテリア（たとえば Shen et al., 1980）。本研究で用いた試料について、人為起源有機物、高塩濃度環境などの影響は排除することができ、バクテリア起源である可能性が高い。ただし、個別炭素同位体組成が、-30permil を下回らなかったことから、メタン酸化古細菌である可能性は低い。

(5) 以上のように保存が良好なイノセラムス化石のバイオマーカー分析から、イノセラムスと化学合成群集との共生を決定付ける特殊なバイオマーカーは検出されていないが、特徴的な n-アルカン組成などから化学合成群集の可能性が示された。

(6) 今後の課題として、保存が良好な、化石を含まないノジュールの持つバイオマーカーのバックグラウンドを評価することである。ノジュールその物を起源とするバイオマーカーを特定し、化石起源のバイオマーカーと明確な区別を行うことが不可欠である。計画当初に、この問題の認識がなかったこと、試料採取時に、無化石ノジュールの採取について顧慮すべきであった。引き続き、この点を考慮し、本研究を継続する。

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)

[その他]
ホームページ等

[雑誌論文] (計3件)

- ① Shigenori Ogiwara, Is the lycopene /n-C31 ratio an effective proxy of palaeoacidity of bottom water for the Japan Sea? -Unusual distribution of lycopane in the shallow sediment from the Japan Sea collected by the MD179 Cruise, Journal of Asian Earth Science, 査読有, 90 巻, 2014, 250-253, DOI:1367-9120
- ② 荻原 成騎, 戸丸 仁, 松本 良, 日本海東縁 MD179 コア表層堆積物中の硫黄同位体組成, 石油技術協会誌, 査読有, 77 巻, 2012, 365-369, DOI: なし
- ③ 荻原 成騎, 層状チャート中に挟在する黒色頁岩中のダイヤモンドの GC/MS による解析, Researches in Organic Geochemistry, 査読有, 27 巻, 2011, 149-154, DOI: なし

6. 研究組織

- (1) 研究代表者
荻原 成騎 (OGIHARA, Shigenori)
東京大学・大学院理学系研究科・助教
研究者番号: 50214044
- (2) 研究分担者
なし
- (3) 連携研究者
重田 康成 (SHIGETA, Yasunari)
国立科学博物館・地学研究部・研究主幹
研究者番号: 30270408

[学会発表] (計5件)

- ① 荻原 成騎, バイオマーカーによって明かにする日本海の環境変動, 日本地球惑星連合大会, 2014 年 4 月 29 日, パシフィコ横浜 (神奈川県横浜市)
- ② 荻原 成騎, 重田 康成, バイオマーカーが明かにするイノセラムスの古生態, 日本有機地球化学会, 2013 年 8 月 20 日, 倉敷市文芸館 (岡山県倉敷市)
- ③ 荻原 成騎, MD179 航海にて採取された日本海表層堆積物中の異常なリコパン分布, 日本地球惑星連合大会, 2013 年 5 月 22 日, 幕張メッセ (千葉県千葉市)
- ④ 荻原 成騎, 松本 良, なつしま NT-06-19 によって採取された日本海メタン湧出海域の堆積物柱状試料を用いた有機無機地球化学研究, 日本地球化学会第 59 回年会, 2012 年 9 月 11 日, 九州大学箱崎地区キャンパス (福岡県福岡市)
- ⑤ 荻原 成騎, 松本 良, Geochemical Investigation of long core collected by MD179 Cruise, 日本地球惑星連合大会, 2011 年 5 月 22 日, 幕張メッセ (千葉県千葉市)

[図書] (計1件)

荻原 成騎, 他、第一学習社、スクエア最新図説生物、2013, 71

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)