

カスカディア縁辺域付加帯における有機物の起源と微生物バイオマーカー

Origin of organic matter and distribution of microbial biomarkers in the Cascadia margin accretionary prism

(提出先：九州大学理学府，2010年3月)

金子雅紀 (Masanori Kaneko)

所属：海洋研究開発機構

E-mail: m_kaneko@jamstec.go.jp

海洋のガスハイドレートの主要ガス成分であるメタンの生成にはメタン生成アーキアが大きく関与していることが、メタンの同位体組成などから示唆されている。このメタン生成の基質となる CO_2 は、微生物による有機物の分解によってもたらされるため、メタン生成アーキアのみならず、有機物の質や、分解に関与する微生物活動の解明がガスハイドレートの形成メカニズムを理解するのに重要である。しかしながら微生物の分布や活動についてはよくわかっていない。アーキアが特異的にもつ細胞膜脂質を用いれば、その分布からは生物量が、炭素同位体比からはアーキアの炭素源や代謝活動が考察できるため、微生物活動解明のよいツールになると考えられる。本研究ではIODPの第311次航海(2005年参加)によって掘削調査が行われた、カナダ・バンクーバー島沖のカスカディア縁辺域ガスハイドレート地域の試料を用いて、メタン生成に関与する微生物分布を明らかにし、メタン生成菌の活動を制限している要因を解明するための研究を4章に分けて詳記した。

1章は、カスカディア縁辺域ガスハイドレート地域の地質学的特徴を述べるとともに、坑内計測、間隙水の化学データおよびメタンの同位体組成をもとに、ガスハイドレートの分布とメタン生成に関与する有機物の続成作用およびメタンの起源に関する推察を述べた。カスカディア縁辺域のガスハイドレート濃集域はカナダ・バンクーバー島沖に位置し、掘削は付加帯を横断する形で、もっとも海側からU1326, U1325, U1327そして最も陸側のU1329の4地点で行われた。さらに冷湧水地点(U1328)でも掘削を行った。全体として堆積物は半外洋性の更新世以前の堆積物からなり、更新世のタービダイトによる砂層が堆積物中の各所に確認された。堆積速度はU1326地点からU1329地点に向かって263から89 Maに減少していることが、珪藻微化石の分析から明らかにされている。U1329掘削地点を除くすべての掘削地点でガスハイドレートの存在が確認され、特に、U1328掘削地点においては堆積物の最表層においてガスハイドレート層が発達していた。間隙水中のアンモニア濃度が硫酸還元領域(<11 mbsf)および100 mbsf以深で3 mMまで増加しており、同時にアルカリ度(23 to 42 mM)やリン酸塩濃度(81 to 135 μM)も上昇していることから、硫酸還元領域、堆積物深部で微生物による有機物の分解が活発になっていると考えられる。メタンおよび CO_2 の炭素同位体比からは、本研究地域のメタンは微生物によって生成されており、メタン生成菌の存在が示唆されている。

2章は、“堆積物中有機物の元素組成(TOC, TN, TS)と同

位体組成($\delta^{13}\text{C}_{\text{TOC}}$, $\delta^{15}\text{N}_{\text{TN}}$, $\delta^{34}\text{S}_{\text{TS}}$)”および“炭化水素バイオマーカーの分布と同位体比”を用いて堆積物中の有機物の起源と微生物による堆積後の続成変化について議論した。U1327およびU1328掘削地点の $\delta^{13}\text{C}_{\text{TOC}}$ 値(-26 to -22‰)と長鎖n-アルカンの $\delta^{13}\text{C}$ 値(C_{27} , C_{29} および C_{31} , $\delta^{13}\text{C} = -34$ to -29 ‰)は、有機物が陸上高等植物(C3植物)と海洋藻類由来の混合であることを示唆した。一方、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{TN}}$ 値(+4 to +8‰)は主に海洋起源の値を示すが、その値は堆積物下100 m以深で微生物による有機物の分解の間に変化を受けていることが示唆された。アーキアのバイオマーカーであるペンタメチルアイコサンと、バクテリア由来であるジプロペンとhop-21-eneの同位体組成($\delta^{13}\text{C} = -38.4$ ‰)は、起源生物が一部メタンを炭素源として取り込んでいるか、化学合成生物であることを示した。

3章では、U1327, U1328掘削地点から採取した堆積物コア試料を用いて、アーキア由来の膜脂質の分布と同位体比($\delta^{13}\text{C}$, δD)を明らかにした。アーキアの膜脂質であるアーキオールとテトラエテル脂質(GDGT)のエーテル結合の化学分解によって得られたピフィタンの濃度が、100 mbsf以深で増加($\sim 5 \mu\text{g/g}_{\text{sediment}}$)していることから、堆積物深部におけるアーキア生物量の増加が示唆された。GDGTから得られたピフィタンには構造中の五員環および六員環を0から3つ含むもの(BP[0]からBP[3])が確認され、このうち、BP[0]とBP[2]の $\delta^{13}\text{C}$ 値(-20.1 ‰ ± 0.32 , $n = 38$ and -19.7 ‰ ± 0.79 , $n = 38$)は、クレンアーキオタ由来のBP[3]の $\delta^{13}\text{C}$ 値(-19.8 ‰ ± 0.58 , $n = 38$)と近く、同一起源であると考えられる。特に、これらピフィタンの増加が、間隙水中の化学成分のうち有機物の分解により生ずるアンモニアやリン酸の濃度増加に付随することから、これらのピフィタンは堆積物中の有機物(-24.0 ‰ ± 1.35 , $n = 26$)を炭素源として用いている従属栄養クレンアーキオタ由来であることを示した。クレンアーキオタ由来ピフィタンは全ピフィタンの90%以上を占めることから、クレンアーキオタがアーキア生物量の大部分を占めると考えられる。クレンアーキオタの生物量は活発な有機物の発酵による分解が示唆された130~230 mbsfの範囲で顕著に増大しており、有機物の続成変化にクレンアーキオタが大きく関与していると考えられる。一方、BP[1]の $\delta^{13}\text{C}$ 値はU1328掘削地点において、いくつかの深度で最大で-43‰まで低くなっていた。同掘削地点142 mbsfの $\delta^{13}\text{C}_{\text{BP[1]}}$ 値(-43‰)と $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$ および $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 値から見積もられる CO_2 を用いたメタン生成および脂

質合成時の同位体分別の大きさが、メタン生成菌の培養時に見られるそれとよく一致することから、BP[1]がメタン生成菌由来である可能性が高いと考えられ、その他の深度では、クレンアーキオタ起源のBP[1]との混合によって $\delta^{13}\text{C}_{\text{BP[1]}}$ 値が変動していると考えられる。これらのことからメタン生成アーキアの分布は従属栄養アーキアの分布と活動に大きく影響をうけることを示した。

4章では、世界で初めてアーキア膜脂質の水素同位体比測定法を開発した。アーキア膜脂質の同位体測定法の主な手法としてGDGTを化学的に分解して、生じたヨウ化ビフィタンを水素化してビフィタンに還元後、ガスクロマトグラフ/同位体比質量分析計で分析するものがある。従来の水素化リチウムアルミニウムを用いた水素化法では、水素化による同位体分別を補正できず、水素同位体比を明らかにすることができなかった。本研究では、酸化白金触媒上での水素ガスとの接触還元法を用いてヨウ化ビフィタンの水素化を行うことにより、この問題を解決した。本手法を用いて、培養菌体 (*Sulfolobus*) のGDGTs中のビフィタンの水素同位体比を測定したところ、ビフィタン

中の5員環の数が増加するとともに水素同位体比が増加することがわかった。これにより、5員環形成時の同位体分別がおおよそ -213 から -161‰ であること、非環状ビフィタンを元に環状ビフィタンが形成されることがわかった。また、3章で用いた海洋堆積物中のビフィタンの水素同位体比は、BP[1]を除いて5員環の数が増加するとともに、水素同位体比が高くなる傾向があり、培養菌体を用いた結果と調和的である。BP[1]の水素同位体比は他のどのビフィタンよりも高い値を示したが、これはBP[1]だけはメタン生成菌のようにクレンアーキオタ由来以外の生物の寄与があるという3章での結論と調和的な結果である。

本研究の主な結論は、カスカディア縁辺域のガスハイドレート地域におけるアーキアの地下深部における分布および活動を評価したことである。特にメタン生成に関与するアーキアの堆積物深部での分布はこれまで明瞭な理解がなされていなかったが、メタン生成アーキアの分布を支配する環境要因として、有機物の分解とそれによってもたらされる栄養塩や、基質が重要であることを示した。