

# 研究成果報告書（第28回学術研究助成）

2021年8月31日

公益財団法人 藤原ナチュラヒストリー振興財団  
理事長 野村茂樹 殿

所属機関名 東北大学大学院理学研究科地学専攻  
職 名 博士課程後期3年の課程 3年  
氏 名 藤岡大

## 1. 研究課題

腕足動物殻に記録された古環境記録は埋没続成作用によってどう改変されるか？

## 2. 共同研究者

なし

## 3. 研究報告

### I. 研究の目的

顕生代（過去約 5 億 4500 万年間）を通じて主に海洋表層～大陸棚に生息していたとされる腕足動物の化石の化学組成（同位体組成，金属元素濃度）は，超長期スケールの古海洋環境変動を理解する上で重要な古環境指標である．しかし，古い時代の化石になればなる程，埋没後の続成作用により殻の化学組成が改変している可能性が高くなる．よって，化石試料の化学組成が続成作用によってどの程度改変されているかを確認することは，より信頼性の高い古環境復元をおこなっていく上で必要不可欠である．特に，中・古生代の地層から産する化石は，地表付近の常温常圧下で生じる陸水続成作用と，地下深部の高温高压下で生じる埋没続成作用の両方の影響を被っている場合がある．よって，より正確に化石試料のスクリーニングを行なっていくためには，陸水続成作用と埋没続成作用をそれぞれ個別に被った場合に，腕足動物殻の同位体組成がそれぞれどのように変化するのか，両続成作用の影響にどのような違いがあるのかなどの知見を集積させる必要がある．そこで本研究では，人工続成実験装置内にて現生腕足動物殻を約 1 ヶ月間，埋没続成環境の温度・圧力条件下に晒した場合，同殻の炭素・酸素同位体組成がどのように変化するのかを定量的に評価することを目的とした．

### II. 研究の方法

現生腕足動物試料は，岩手県大槌湾の水深 70 m で採取された *Terebratulina crosseii* の殻を 4 個体（B-5, B-9, B-10, B-16）使用した．殻は最大成長軸に沿って半割し，一方を未変質殻として保存し，もう一方を人工続成実験に用いた．最終的には，未変質の殻の同位体組成と人工続成実験にて変質した殻の同位体組成を直接比較し，後者の組成が続成実験によってどのように変化したのかを評価した．

人工続成実験は，海洋研究開発機構が所有する圧力容器，及び高温実験用オープンを用いて行った．現生腕足動物殻を人工海水や堆積物に相当する物質と共に，シリコンゴムチューブ，シリコンゴム栓，及びシリコン系液状ガスケットを組み合わせて作製した容器内に封入

し、圧力容器内に投入した。圧力容器は、125°C、75MPa の条件下で約 1 ヶ月間置き、腕足動物殻を人工的に続成変質させた。人工海水は、Milli-Q 水にテトラマリン社製人工海水粉末 (TetraMarin Salt Pro) を適量溶解させて作成した (以下、海水とよぶ)。様々な母岩の地層を再現するため、腕足動物殻と容器の隙間は、石英粉末、炭酸塩粉末、砂岩粉末の 3 種類をそれぞれ充填した。炭酸塩粉末は、宮城県仙台市に分布する仙台層群竜ノ口層より多産する二枚貝化石 (アラゴナイト) を粉末化したもの、砂岩粉末は千葉県市原市瀬又に分布する下総層群藪層の砂岩を 500 メッシュのふるいにかけて中粒砂以下の粒度にしたものを使用した。シリコンゴムチューブ内に封入する際の堆積物の重量は、現生殻の重量に対して 35 倍とした。また、水/岩石比率 (重量比率) が約 0.2 となるように、海水の重量を調整した。また、先行研究 (Riecheimann et al. 2016) の結果と比較を行うため、1 サンプル (B-9) は人工海水のみ (約 9.3 mL) を充填し、続成実験を行なった。

変質・未変質殻の化学分析用粉末試料は、0.12 mm マイクロドリルを用いて殻の内側に沿って 2 mm 間隔でサンプリングを行った。変質殻と未変質殻を比較し人工続成変質による改変量を特定できるよう、変質・未変質殻のサンプリング部位が同一になるようにした。東北大学大学院理学研究科地学専攻が所有する炭酸塩自動前処理装置 (ThermoQuest 製 Kiel III) および質量分析計 (ThermoFisher 製 Delta V Advantage) を用い、炭素・酸素同位体組成 ( $\delta^{13}\text{C}$ ・ $\delta^{18}\text{O}$ ) を測定した。サブスタンダード試料として Jct-1 を使用し、繰り返し測定の結果から算出された  $\delta^{13}\text{C}$  値、 $\delta^{18}\text{O}$  値の測定精度 ( $n=41$ ,  $1\sigma$ ) はそれぞれ  $\pm 0.03\text{‰}$ 、 $\pm 0.05\text{‰}$  であった。

### III. 研究結果

本研究で用いた腕足動物 *T. crossei* の殻厚 (0.5–1 mm) は、先行研究 (Fujioka et al. 2019) で用いた種とは異なり、殻頂から殻端までに顕著な変化が見られず、半割時の殻断面における殻形態をもとにインターバルを設定することが困難であった。そこで本研究では、4 個体の殻頂から 17–23 mm の部位に共通して確認できる  $\delta^{13}\text{C}$  値の極大値 (図 1A, B, C, D の黒矢印) を基準にインターバルを 2 つ設定し、殻頂から極大値までをインターバル 1、極大値から殻端をインターバル 2 とした。

未変質の *T. crossei* 殻の  $\delta^{13}\text{C}$  値および  $\delta^{18}\text{O}$  値は、インターバル 1 では  $-0.22 \sim 1.75\text{‰}$  および  $0.71 \sim 1.85\text{‰}$ 、インターバル 2 では  $0.17 \sim 1.73\text{‰}$  および  $0.60 \sim 1.84\text{‰}$  の範囲にあった。インターバル 1 の  $\delta^{13}\text{C}$  値の変化幅がインターバル 2 の変化幅と比較して大きく、局所的に  $\delta^{13}\text{C}$  値の極小値が認められた。一方で、 $\delta^{18}\text{O}$  値の変化幅はインターバル 1 および 2 で同程度であった。

変質した *T. crossei* 殻の  $\delta^{13}\text{C}$  値および  $\delta^{18}\text{O}$  値は、インターバル 1 では  $-0.07 \sim 1.37\text{‰}$  および  $0.50 \sim 1.31\text{‰}$ 、インターバル 2 では  $0.44 \sim$

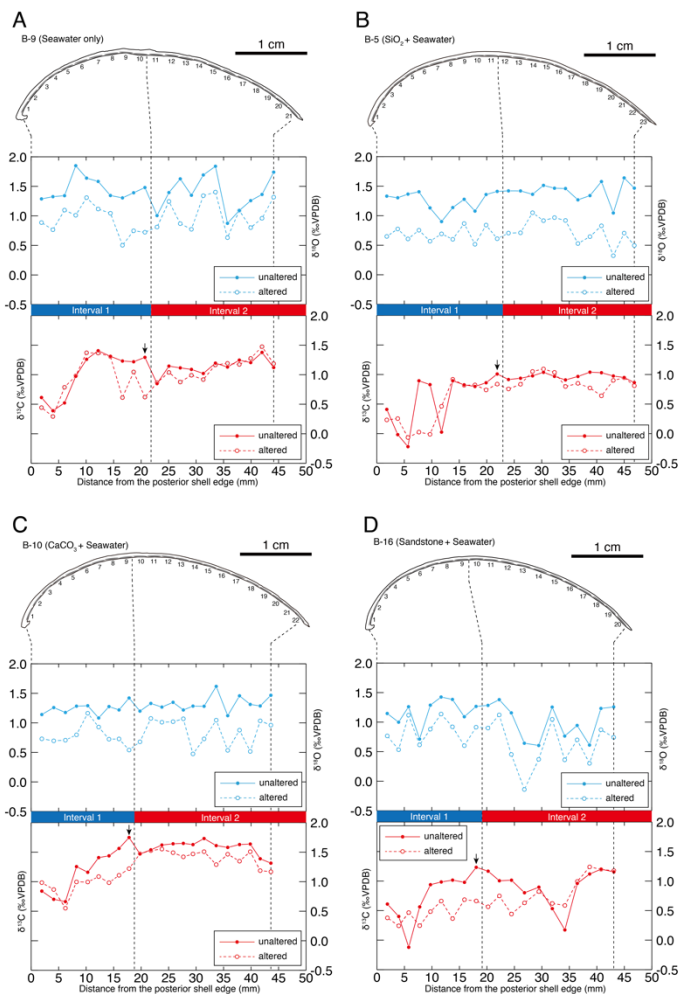


図1. 変質・未変質殻の炭素・酸素同位体組成

1.55%および-0.14~1.40%の範囲にあった。 $\delta^{13}\text{C}$  値および  $\delta^{18}\text{O}$  値の変化幅は、インターバル 1 と 2 とで大きな差異はなかった。

未変質殻と変質殻の  $\delta^{13}\text{C}$  の違いには、一部を除いて一定の傾向はみられなかった。一方、両殻の  $\delta^{18}\text{O}$  は B-9 の 1 データを除き、変質した殻が系統的に低い値を示した。

#### IV. 考察

未変質殻の  $\delta^{13}\text{C}$  プロファイルでは、全個体においてインターバル 1 の  $\delta^{13}\text{C}$  値の変化幅がインターバル 2 の変化幅と比較して大きく、局所的に  $\delta^{13}\text{C}$  値の極小値が存在することが認められた。腕足動物殻のインターバル 1 に該当する部位は、生存時に開殻筋や調整筋が付着していた部位であり、先行研究では同部位の  $\delta^{13}\text{C}$  値が二次層上部の  $\delta^{13}\text{C}$  値と比較して最大 2% の低い  $\delta^{13}\text{C}$  値を示すことが報告されている (Parkinson et al. 2005 ; Yamamoto et al. 2010, 2013)。また、腕足動物の種によってはインターバル 1 の  $\delta^{18}\text{O}$  値に生物学的同位体効果の影響がみられ、 $\delta^{18}\text{O}$  値の変化幅が大きくなることが明らかになっている (Fujioka et al. 2019)。以上より、インターバル 1 は人工続成実験による同位体組成値の改変量を見積もるのに適さない部位と判断されるため、以下の考察はインターバル 2 のデータのみを用いて行う。

変質殻のインターバル 2 における  $\delta^{13}\text{C}$  値の変化幅は未変質殻と比較して同程度であった。また、B-10 を除いた全ての殻サンプルにおいて、未変質殻と変質殻の  $\delta^{13}\text{C}$  の違いに一定の傾向はみられなかった。先行研究の Riechelmann et al. (2016) では現生腕足動物殻を 100°C の水中 (海水および陸水) で変質させたが、変質殻と未変質殻とで  $\delta^{13}\text{C}$  値に有意な差がみられなかったことを報告している。一方、炭酸塩粉末+海水によって変質させた B-10 (図 1C) では、変質殻の  $\delta^{13}\text{C}$  値が未変質殻と比較して系統的に低い値をとることから、続成過程で殻の  $\delta^{13}\text{C}$  値が低下したと考えられる。これは、炭酸塩粉末が他の堆積物と比較して交代可能な軽い炭素同位体を多く含むことに起因すると考えられる。よって、埋没続成作用における  $\delta^{13}\text{C}$  値の変化は周囲の母岩の種類と関係していることを示唆し、珪長質堆積岩よりも炭酸塩堆積岩を母岩とした場合の方が続成後の腕足動物殻の  $\delta^{13}\text{C}$  値が系統的に低くなる傾向にあることが示された。

変質殻のインターバル 2 における  $\delta^{18}\text{O}$  値は、ほぼ全てのデータにおいて未変質殻のものと比較して系統的に低い値を示した。先行研究の Riechelmann et al. (2016) では、100°C、175°C の温度条件下で続成実験を行い、前者の殻の  $\delta^{18}\text{O}$  値は初生値と比較して 0.4~0.9% 低い値を、後者は 100°C での実験よりもさらに低い  $\delta^{18}\text{O}$  値を示したことを報告している。本研究では、周囲が海水のみの殻 (B-9) と堆積物+海水で変質させた殻 (B-5, B-10, B-16) との間に明確な  $\delta^{18}\text{O}$  値の違いが見られなかったことを踏まえると、続成に関与する母液 (本研究では海水) が十分に存在する場合、周囲の母液・堆積物の組成よりも変質時の温度の方が殻の  $\delta^{18}\text{O}$  値の改変に大きく寄与すると考えられる。

#### V. 成果発表

今後、各種追加データを取得したのち、研究成果を欧文の学術雑誌で公表する予定である。また、学術雑誌で公表できる段階になり次第、日本地質学会や日本古生物学会等の学会において口頭・ポスター発表を行う予定である。

#### VI. 今後の課題

今後、本研究で続成変質させた殻の微量金属元素濃度分析 (Na, Mg, Mn, Fe, Sr)、走査電子顕微鏡を用いた殻の微細構造観察、ルミノスコープを用いたカソードルミネッセンス像観察を行い、今回得た  $\delta^{13}\text{C}$ ・ $\delta^{18}\text{O}$  データとの比較から、腕足動物殻に記録された古環境情報が人工的な埋没続成変質によってどのように改変されるのか、殻の化学組成の改変の程度が殻構造の変質とどのように関連するのかを検討していきたい。また、本研究のシリコンゴムチューブを用いた実験方法は、天然の化石試料が被ったと考えられる最高温度・圧力 (175°C・90MPa) の条件ではすぐに劣化してしまい、長期間の続成実験に耐えられないことが本研究の実験を通じて明らかになった。今後は、本続成実験に適したより耐久性の高い材質を見出し、最高温度・圧力下での続成実験を達成したいと考えている。