

(続紙 1)

京都大学	博士 (理学)	氏名	山方 優子
論文題目	Iron isotopic signatures for marine animals of various habitat (海洋生物における鉄同位体組成の多様性)		
(論文内容の要旨)			
<p>鉄は生体必須元素の1つであり、食物連鎖を通して生物間を循環し利用されている。陸上と海洋における鉄存在度の違いは生物の鉄吸収効率の違いに、ひいては鉄同位体比に反映される。一般的に、鉄が豊富に存在する陸上環境では生体内で起こる様々な同位体効果によって、栄養段階が上昇するごとに鉄供給源から鉄同位体比 ($^{56}\text{Fe}/^{54}\text{Fe}$, $^{57}\text{Fe}/^{54}\text{Fe}$) が約1‰ずつ低くなり、さらに高次生物ではその差が減少する傾向にある。また、部位間(肝臓-筋肉・血液)では鉄同位組成に約1‰の差が報告されている。一方で、海洋生物に関しては種間での鉄代謝を系統的に調べた例は少なく、特に鉄同位体情報を用いて臓器・部位間での鉄代謝を定量的に評価した研究報告は少なく、海洋生物での鉄代謝の多様性の評価が遅れていた。そこで本研究では、海洋生物の鉄代謝機構を紐解くと同時に、陸上動物との鉄代謝の差異、さらには深海極限環境での鉄代謝機構に関する基本的かつ重要な知見を与えた。</p> <p>鉄精密同位体分析に関しては、化学分離過程の陰イオン交換クロマトグラフィーによる鉄の単離溶出の後に、多重検出器型ICPMS(MC-ICPMS)を用いて、精密鉄同位体比分析を行った。博士課程では、海洋の中でも環境中に含まれる鉄の濃度が極端に異なる2つの環境に注目し、海洋表層(深度1000 m以浅)の動物である<i>Octopus longispadiceus</i> (クモダコ)、<i>Berryteuthis magister</i> (ドスイカ)、<i>Thunnus alalunga</i> (ビンナガ)、<i>Thunnus obesus</i> (メバチ)、<i>Kajika audax</i> (マカジキ)、<i>Peponocephala electra</i> (カズハゴンドウ)および深海熱水噴出孔の巻貝である<i>Chrysomallon squamiferum</i>(ウロコフネタマガイ)と<i>Gigantopelta aegis</i> (仮称:ギガントペルタ・イージス)を分析対象とした。</p> <p>海洋表層環境では、低次栄養段階生物の鉄同位体比は海水(環境)と似た値を示し、環境中にわずかにしか存在しない鉄に対して吸収効率を高める傾向にある。これに対し本研究で扱った高次栄養段階の生物は海水に比べて大きな分別を示し、低次の生物と鉄代謝が異なることが明らかとなった。さらに、<i>T. alalunga</i>、<i>T. obesus</i>、<i>K. audax</i>には器官(肝臓-筋肉)の間で大きな鉄同位体変化が見られなかった。これは、回遊魚はミオグロビンを高循環で生成するために、鉄貯蔵効率が低くなったためと考えられる。また南西インド洋のLongqi深海熱水噴出孔では、鉄が豊富に存在し、そこで発見された<i>C. squamiferum</i> (通称“スケーリーフット”)は、生物に有害な硫化鉄を無数の鱗に沈着させる特殊な鉄代謝機構を有する生物である。鉄代謝の特異性を評価するために、同地域で発見された鱗のない巻貝で、殻の外表面に硫化鉄を沈着させる<i>G. aegis</i>(系統的にスケーリーフットに比較的近縁)を比較対象生物として、様々な部位(筋肉・鰓・血液・食道腺(共生菌)・鱗・殻)の鉄同位体比分析を行った。<i>C. squamiferum</i>は<i>G. aegis</i>の筋肉・鰓・血液の鉄同位体比よりも約1‰高い値をもち、生体内における重い鉄の濃集は、軽い鉄を鱗に供給させる機構の存在によって引き起こされる可能性が示唆された。また、Longqi地域とKairei地域から採取された<i>C. squamiferum</i>を比較したところ、鱗の表面に存在する硫化鉄の層の数、さらには硫化鉄の結晶構造に違いがみられた。さらに、Longqi産の<i>C. squamiferum</i>の鱗にはFeとSに加えてPとCaが高濃度で鱗の先端部に濃集していることが分かった。地域によって鱗の形成機構に違いはあるが、貝殻や軟体部の鉄代謝機構には大きな差異は確認されなかった。</p> <p>本研究を通して、生体部位の鉄安定同位体組成から生物の未解明な鉄代謝機構、特に<i>C. squamiferum</i>の鱗を覆う硫化鉄の形成機構に関して新たな知見を引き出すことに成功した。鉄同位体比分析は地球化学的、生物学的、地質学的にも汎用される分析であり、生物の鉄代謝評価に重要であると結論づけることができる。</p>			

(続紙 2)

(論文審査の結果の要旨)

申請者の博士論文は全4章からなり、第1章では研究背景となる海洋生物の金属代謝と同位体地球化学を概説し、第2章では海洋環境での鉄の生態循環を議論し、第3章では極限環境、特に溶存鉄量の多い熱水噴出孔近辺で生息する鱗をもつ巻貝の*Chrysomallon squamiferum* (通称“スケーリーフット”)における鉄代謝機構の特異性を議論し、第4章で研究の総括と海洋環境での鉄の生体循環の研究応用展開と他分野への波及効果をまとめている。

生体試料に含まれる微量の鉄から、わずかな同位体比変化を捉える化学分析法を確立するとともに、入手が困難な種を含む高次栄養段階の海洋生物、特に深海2500メートル近辺に生息する特殊な貝類から系統的な同位体情報を引き出すことに成功している。その結果、様々な新しい知見が得られている。まず、先行研究では海洋生物と陸上生物では鉄利用能に大きな違いがあるとされてきたが、高次栄養段階の生物では、陸上動物と類似した鉄利用能をもつことが明らかとなった。さらに、同じ栄養段階の海洋生物でも、鉄同位体に大きな変動があり、従来の窒素同位体に基づく栄養段階が、鉄の食物連鎖を反映されていない可能性も指摘しており、海洋環境での生体鉄循環モデルに大きな修正を加えることとなった。

さらに申請者は、硫化鉄の鱗をもつ*C. squamiferum*に注目し、鉄同位体を通じてその特異性と普遍性を評価した。*C. squamiferum*が生息する熱水噴出孔は鉄が豊富に存在することが知られている。鉄は生体必須元素であるが、一方で過剰な鉄は毒性が強く、生命にとって危険な元素でもある。*C. squamiferum*は、毒性の高い元素(鉄と硫黄)を利用した鱗をまとっている。本研究では*C. squamiferum*の部位(鱗や臓器)の精密鉄同位体分析を通じて、本種の鉄代謝の特殊性を明らかにすることに成功している。また本研究では、*C. squamiferum*の鉄代謝の普遍性を評価するために、生息地の異なる二つの個体群(Longqi地域とKairei地域)について鉄同位体分析を行っている。その結果、個体群間で鱗の形成過程が異なる一方で、鉄代謝の特異性は両個体群で見られることを明らかにした。

申請者は、質量スペクトル干渉の除去に取り組み、より微小な同位体比の変動を検出することに成功している。この研究を通じて、従来の海洋環境での生物鉄循環モデルに再検討が必要なことも指摘している。本研究の成果は、精密かつ独創的な分析手法の開発を通じて精密同位体分析を実現し、重元素安定同位体地球化学の拡張性・応用性を飛躍的に拡大し、地球化学のみならず、広く生命化学分野に強い波及効果を示す内容を含んでいる。

このように申請者は精密鉄同位体分析を通じて、独創的な発想で海洋生物の鉄利用能の評価を行った。これらの手法は、様々な地質イベントの記載に直接的に応用可能であるだけでなく、将来的には生命化学、とくに金属代謝を研究するメタロミクス分野への研究にも展開が可能である。申請者による博士論文は、京都大学大学院理学研究科における博士論文に相応しい内容と独創性を備えている。よって、本論文は博士(理学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成31年1月21日、論文内容及びそれに関連した口頭試問を公開で行い、博士論文の内容についての質疑応答において、専門的議論に十分に耐える実力のあることも確認し、合格と認めた。

要旨公表可能日： 年 月 日以降