

博士（理 学） Ratnayake Nakin Prasanna

学 位 論 文 題 名

Study on molecular carbon isotope ratios of land plant-derived lipids in deep-sea sediments from the Bering Sea and the North Pacific Ocean

（ベーリング海、北太平洋の深海堆積物中に含まれる
陸上植物由来脂質の分子レベル炭素同位体比に関する研究）

学位論文内容の要旨

Marine sedimentary cores collected near the land are usually rich in terrestrial organic matter and considered to be useful to reconstruct the terrestrial paleoenvironment. However, time series data obtained utilizing these cores should represent more localized variations than regional or continental scale. Besides, these areas receive terrestrial material from multiple transportation mechanisms such as eolian, riverine, ice rafted and recycled pathways resulting in an obliterated paleoenvironmental record. Nevertheless, marine sediment cores collected from remote ocean areas could contain much better paleo-terrestrial records, since terrestrial materials are mainly transported thorough a single mechanism: wind. Therefore, in the present study author selected two piston cores one located far from continents, from the North Pacific Ocean, and another located closer to the continents, from the Bering Sea.

Sampling of sediment cores was carried out during the Cruise KH99-3 the R/V Hakuho Maru organized by the Ocean Research Institute of the University of Tokyo for the purpose of reconstructing the high-resolution glacial/interglacial paleoceanographic changes during the Late Quaternary in the Bering Sea and the North Pacific Ocean. Both these cores were obtained from seamounts since these areas are least likely to be disturbed by the turbidity currents.

Organic matter from these sediments were extracted and analysed for long-chain *n*-alkanes

and *n*-fatty acids which are usually considered to be derived from land plant cuticles. Because of the controversy surrounding the source of long chain fatty acids (recently there is evidence of long chain fatty acids being originated from marine algae or bacteria) they were further fractionated into three sub-fractions by column chromatography. The isotopic analysis of these three (esterified, free and polar) fractions, clarified the origins of fatty acids. Long-chain fatty acids ($>C_{22}$ even carbons) of esterified fraction had significantly lighter stable carbon isotopic values ($<-30\text{ ‰}$), showing their origin of terrestrial higher plants. In contrast, the long-chain fatty acids (only C_{22} , C_{24} and C_{26}) from polar and free fractions show heavier isotopic values (about -27 ‰) and could be a mixture of both terrestrial and marine origins. However, fatty acids with more than 28 carbons show lighter isotopic variations similar to esterified fatty acids confirming their terrestrial dominant contribution.

The $\delta^{13}C$ values of long-chain *n*-alkanes and some of the long-chain *n*-fatty acids (C_{28} and C_{30} free fatty acids, and C_{28} and C_{30} polar fatty acids and C_{22} , C_{24} , and C_{26} esterified fatty acids fractions) in the core from the Pacific Ocean show a significant variation possibly triggered by glacial/interglacial climatic changes. The present study shows that $\delta^{13}C$ maximums or minimums are mostly at the glacial/interglacial transition zone where temperature and other environmental parameters change drastically. The observed $\delta^{13}C$ cycle could be driven by aridity along with East Asian monsoon cycles. Increase of aridity along with decrease of rainfall could increase C_4 plants and decrease of aridity along with increase of rainfall could decrease C_4 plants. Our results suggest that C_4 plants started to spread with a beginning of a glacial period while maximizing at the end of the glacial periods. At the boundary when drastic climatic changes take place, C_4 plants started to diminish gradually up to the end of interglacial stage. However vertical changes of $\delta^{13}C$ in the core from the Bering Sea do not show significant variation similar to those from the North Pacific Ocean. Insignificant $\delta^{13}C$ variation in the core samples from the Bering Sea could be due to the insignificant aerosol contribution compared to current driven organic matter from the Bering catchments where there might be not significant C_4 plants possibly due to cold arid climate

during the glacial periods. In addition, the terrestrial organic matter coming to the Bering Sea through river water could be a mixture of plant litter and soil with comparatively old terrestrial organic matter. Moreover, turbidity currents and other local currents could induce re-suspension and re-sedimentation to form sediment layer with organic matter of wide geologic age together. Therefore, the land plant biomarkers recorded in a sedimentary sequence from the Bering Sea was not necessarily contemporary.

Long chain fatty acids could mainly be preserved in the form of free and polar fatty acids in the Bering and the North Pacific sediments. Heavier isotopic values in mid chain free fatty acids (about -27 ‰) depict that they were not only of terrestrial origin but also of in situ origin. Lighter isotopic values (<-30 ‰) including the mid chain *n*-fatty acids of esterified fraction depict that they were exclusively derived from higher land plants.

This study shows deep-ocean basins were much better for preserving vegetational changes compared to locations much closer to the continents. Also, $\delta^{13}\text{C}$ variation of higher land plant biomarkers of long chain *n*-alkanes and some long chain *n*-fatty acids in deep-sea sediments can be a useful tool to understand terrestrial-paleoenvironmental changes and perhaps can be used as an independent geological time scale.

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 鈴 木 徳 行

副 査 教 授 蒲 生 俊 敬

副 査 助 教 授 山 本 正 伸 (大学院地球環境科学研究科)

副 査 講 師 沢 田 健

学 位 論 文 題 名

Study on molecular carbon isotope ratios of land plant-derived lipids in deep-sea sediments from the Bering Sea and the North Pacific Ocean

(ベーリング海、北太平洋の深海堆積物中に含まれる
陸上植物由来脂質の分子レベル炭素同位体比に関する研究)

陸上植物の安定炭素同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$) は植物の炭素固定回路の違い (C_3 植物、 C_4 植物、CAM 植物)、大気二酸化炭素の $\delta^{13}\text{C}$ 、植物の成長速度に影響するいろいろな要因 (水分、日射量、栄養など) と密接に関係している。したがって、陸上植物に由来する各種有機分子の $\delta^{13}\text{C}$ から陸上環境の変遷を明らかにすることが可能である。海洋底から得た堆積物柱状 (コア) 試料にはグローバルな地球環境変動が時間連続的に記録されている。陸域から離れた遠洋性堆積物であっても、陸上植物に由来すると考えられる長鎖アルカンや長鎖脂肪酸が顕著に検出されることがあり、深海堆積物には海洋変動史のほか、陸域の環境変遷も記録されている。本博士論文はベーリング海、北太平洋の遠洋性堆積物中に含まれる有機物より、陸起源の有機分子を抽出し、その $\delta^{13}\text{C}$ の過去 25 万年間の時系列変化を初めて明らかにしたものである。そして、陸起源有機物 $\delta^{13}\text{C}$ の時系列変化が、氷期-間氷期の繰り返しによって誘発された北半球中緯度地域の陸上植生の変化 (特に C_3 、 C_4 植物の相対量の変化) と密接に関係していることを世界で初めて明らかにした。

東京大学海洋研究所の「白鳳丸」による研究航海 KH-99-3 によって、ベーリング海、北太平洋の深海底からピストンコアサンプラーを用いていくつかのコア試料が得られた。本博士論文では、それらのコア試料のうち、深海底の高まりに位置するベーリング海の Bower 海嶺より得たコア試料 Bow-8a と北太平洋の天皇海山より得たコア試料 ES を研究試料として用いた。他の乗船研究者によっ

て明らかにされた堆積物柱状試料の帯磁率の変化と底生有孔虫の炭酸塩酸素同位体比の深度変化からこれらの柱状試料の精密な年代が決定されている。

長鎖奇数炭素数の n -アルカン¹は陸上高等植物に由来している。しかしながら、比較的高分子量 (C_{24} - C_{28}) の脂肪酸は陸上植物のほか、動植物プランクトンや各種海生生物も生産するため、堆積物より特定の生物に由来する脂肪酸だけを抽出することは容易ではなかった。本博士論文では、堆積物脂肪酸を「遊離脂肪酸」、「エステル態脂肪酸」、「高極性脂肪酸」にわけて分析しそれぞれの分子レベル炭素同位体比を測定することに成功した。「エステル態脂肪酸」は最も濃度が低いという特徴があるほか、その $\delta^{13}C$ は長鎖奇数炭素数の n -アルカンとよく類似しており、他の「遊離脂肪酸」や「高極性脂肪酸」の $\delta^{13}C$ と比較して有意に小さい(軽い)ことが明らかになった。「エステル態脂肪酸」の深度変化(時系列変化)も n -アルカン $\delta^{13}C$ の変化とよく類似していた。このことから、遠洋性堆積物中の「エステル態脂肪酸」は長鎖奇数炭素数の n -アルカンと同様に陸上植物起源のものであり、偏西風によって輸送されてきたものと結論された。遠洋性堆積物から陸起源脂肪酸を分離し、その $\delta^{13}C$ の時系列変化を明らかにしたのは本論文が初めてである。

本博士論文が研究の対象とした堆積物コアは現在より過去約 25 万年間の地球環境変動が記録されている。その間合わせて 8 回の氷期と間氷期の繰り返しがあった。北太平洋から得た ES コアでは、氷期-間氷期の繰り返しと陸上植物起源有機分子の $\delta^{13}C$ の間に有意な関係があることが初めて明らかにされた。間氷期には陸上植物起源有機分子の $\delta^{13}C$ が減少し、氷期の間は $\delta^{13}C$ が増加する。その転換点は氷期と間氷期の境界期にある。氷期と間氷期では、中緯度地域における陸上植生が大きく異なっていたことが最も大きな原因である。氷期には総じて C_4 植物が多くなるために陸上植物起源有機物の $\delta^{13}C$ は大きくなるが、間氷期ではその逆で C_3 植物がより繁栄するために $\delta^{13}C$ は小さくなる。

ベーリング海のような縁海の堆積物は北太平洋の遠洋性堆積物と比較すると、はるかに陸起源有機物に富んでいる。しかし、陸起源有機物は多様な運搬過程を経て堆積の場に集積するため、陸上でのイベントが効果的に堆積物に記録されていないことが示唆された。これは、北太平洋の中緯度地域では陸に近い縁海の堆積物よりも、陸から離れた深海堆積物により時間高分解能で陸上環境の変遷が記録されている場合があることを示している。本博士論文により、遠洋性堆積物には海洋環境の変遷のみならず、陸上環境の変遷も効果的に記録されていることが初めて示された。

よって著者は、北海道大学博士(理学)の学位を授与される資格があるものと認める。