

| | |
|------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 氏名 | 上島雅人 |
| 生年月日 | |
| 本籍 | 東京都 |
| 学位の種類 | 博士(理学) |
| 学位記番号 | 博甲第326号 |
| 学位授与の日付 | 平成11年9月30日 |
| 学位授与の要件 | 課程博士(学位規則第4条第1項) |
| 学位授与の題目 | Clayey biomineralization-A role of microbes during the formation of layered silicate minerals-(粘土鉱物のバイオミネラリゼーション-層状珪酸塩鉱物形成時における微生物の役割-) |
| 論文審査委員(主査) | 田崎 和江(理学部・教授) |
| 論文審査委員(副査) | 奥野 正幸(理学部・助教授) 荒井 章司(研究科・教授) 佐藤 努(研究科・助教授) 福森 義宏(理学部・教授) |

学位論文要旨 Abstract

Microbial transformations on and in the Earth environment are the key to understand diagenesis and elemental cycles. Microbes, particularly bacteria and fungi, are ubiquitous in soils, water and air. It is important to understand the effects of microbes on geochemical cycles. Clays are major on terrestrial surface and removable, therefore, can contribute to geochemical cycles. To identify the interaction between microbes and silicate minerals and their micromorphology play a key role for elemental transportation induced by biosphere. Clayey biomineralization process and mechanism are micromorphologically, microstructurally investigated in terms of weathering and accumulation.

Bioweathering process of K-feldspar was studied in the Kutani Glaze solution for identifying microbial transportation. K-feldspar transforms into halloysite in the green microbial mats in the solution. This process goes on within microbial extracellular polymeric substance composed of acidic

polysaccharides. The extracellular polymeric substance plays a key role for K and Si release from the K-feldspar and the subsequent halloysite transformation.

Formation process of nontronite was observed on the surface of deep sea sediments of Iheya Basin, Okinawa Trough, Japan. The observations imply that nontronite was formed within the extracellular polymeric substance, composed of acidic polysaccharides, exuding from the microbial cells. To understand a role of polysaccharides in formation of Fe-rich layered silicates, synthetic experiment was complementarily performed using dextrin added with ferrosiliceous groundwater solution with stirring for 2 days. The precipitates including Fe-rich layered silicates were observed within the dextrin aggregates, whereas rod-shaped or spherical Si-bearing Fe-hydroxides were observed outside of the dextrin. The observations imply that the polysaccharide polymers are necessary for the formation of Fe-rich layered silicates. The results indicate that microbes profoundly influence to elemental transportation on terrestrial surface, particularly, the extracellular polymeric substances exuded from microbial cells are important for mobilization and/or immobilization of the elements on and in the Earth.

地球上の物質循環にとって生物圏の影響は重要である。なぜならば、生物は大気圏、地殻、水圏に広く生息し、様々な元素の循環にかかわっている。特に、微生物による物質の輸送は続成作用を理解するためのカギを担っている。微生物、特にバクテリアや真菌類は土壌、水、土そして大気中の至るところに生息し、地殻を構成する珪酸塩鉱物が

微生物によりどのように変化を受け、輸送されるのかを解明することは重要である。

従来のバイオミネラリゼーションの研究は歯、骨、貝殻、サンゴなどの石灰化の研究が主であった。しかし、地球科学的循環における微生物の影響を理解することは、その分布、数量の上からも重要である。地球上に最も多い珪酸塩鉱物、特に粘土鉱物は地殻表面に多く存在し、地球表面における元素の輸送に大きく貢献している。微生物と珪酸塩鉱物の相互作用と微細組織の形態を明らかにすることは、生物を媒介とする元素の循環を解くカギとなる。本研究では、粘土鉱物の形成場となっている微生物が滲出する粘着物質に着目した。粘着物質における粘土鉱物のバイオミネラリゼーションのプロセスおよびメカニズムを、カリ長石の風化および溶存イオンの集積の2つの観点から検討した。

地球上に最も多い珪酸塩鉱物による輸送を明らかにするために、九谷焼釉薬中のカリ長石の微生物風化に注目した。水に溶いた釉薬の沈殿物の表面には緑色、茶色および黒色のバイオマット(微生物被膜)が形成される。特に緑色バイオマットには、微生物(シアノバクテリア)によるカリ長石のハロイサイト化とそのプロセスが粘着物質において観察された (Fig. 1)。また、その物質には酸性多糖が含まれていることが染色によって明らかとなった。カリ長石がハロイサイト化するプロセスにおいて、粒子の破碎が観察され、Si の溶脱が示唆された。これらの結果から、ハロイサイトのバイオミネラリゼーションは次のプロセスにより起こったと考えられる。

(1) カリ長石の粗い粒子は微生物の粘着物質に付着し、細かい粒子

は粘着物質内に取りこまれる。

- (2) 粘着物質に付着した粒子は、酸性多糖分子などの有機酸によって Si を溶脱され、それぞれ表面にエッチピット(削れ穴)の形成および破砕による細粒化がおこる。
- (3) Si の溶脱した粒子の表面にはハロイサイトの前駆体とみられる渦巻状構造が形成され、また、破砕した粒子も球状、管状と形態を変え、ハロイサイト化する。

深海底堆積物中には、多量の珪酸塩鉱物が存在する。本研究では沖縄トラフ伊平屋海凹の深海底堆積物の表面に生息する微生物に注目した。その微生物は酸性多糖分子を含む粘着物質を滲出しており、その粘着物質にノントロナイトの形成が認められた。さらに、そのノントロナイトの結晶格子は粘着物質の滲出方向に沿って配向していることが明らかとなった (Fig. 2)。微生物の細胞壁外膜の多糖分子はその滲出方向に配向することから (Fortin et al. 1997; Sleytr and Beveridge 1999)、微生物の多糖分子による Fe, Si のイオンの集積によりノントロナイトが形成されることが示唆された。

そこでこの粘着物質の性質を知るために、デンプン糊を用いた鉄に富む珪酸塩鉱物の合成実験を行った。デンプン糊はブドウ糖が縮重合した多糖である。これに鉄に富む湧水を加えて攪拌 2 日後、鉄に富む層状珪酸塩の沈着物がデンプン糊の凝集体の中に認められた。一方、デンプン糊の凝集体の外側にはシリカを含む棒状あるいは球状の水酸化鉄が観察され、鉄に富む層状珪酸塩は認められなかった。この観察結果から、デンプン糊およびその構造が鉄に富む珪酸塩の形成に必要であることが示唆された。多糖分子はピラノース環の縮重合したリボン状構造であり、その上下面に正の極性を持つことから、深海底のノ

ントロナイトの形成プロセスは次のように考えられる。

- (1) O 原子に負の極性を持つ SiO_4 四面体の底面が多糖の高分子の正の極性を持つリボン面に水分子層を介して平行に配向し、それらが縮重合し、 SiO_4 四面体層を形成する。
- (2) 向かい合った2つの四面体層の OH 基が溶存鉄(II)イオンを酸化させ、その層間に八面体層を形成し、層状珪酸塩鉱物が形成される。

以上の結果から、微生物と珪酸塩鉱物の反応場は、細胞を取り巻く粘着物質であることが明らかとなった。粘土鉱物形成時における微生物は、粘着物質の滲出により風化やイオンの集積の反応場を提供し、地圏—水圏—大気圏における物質の収支に重要な役割を果たしている。

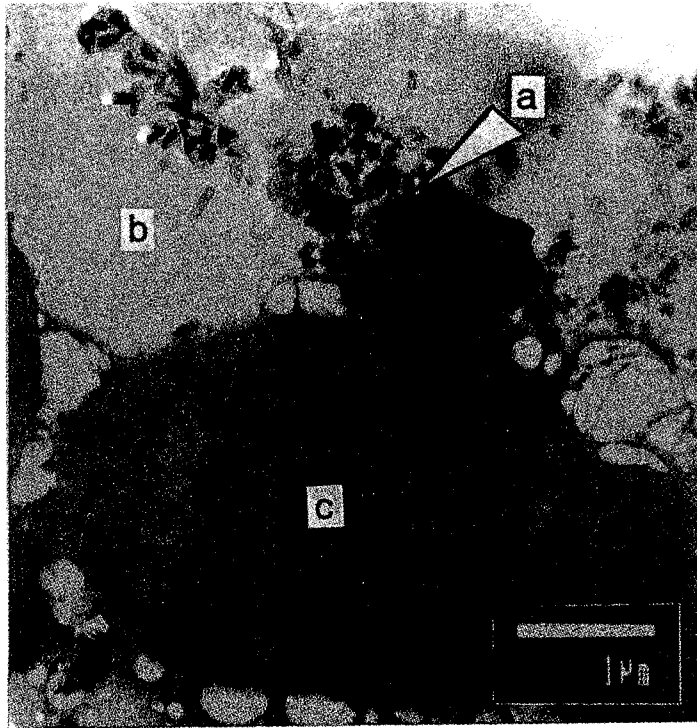


Fig. 1 TEM image of the green microbial mats obtained from Kutani Glaze solution, showing K-feldspar fragmentation (a) within the extracellular polymeric substance layer surrounding microbial cells (c).

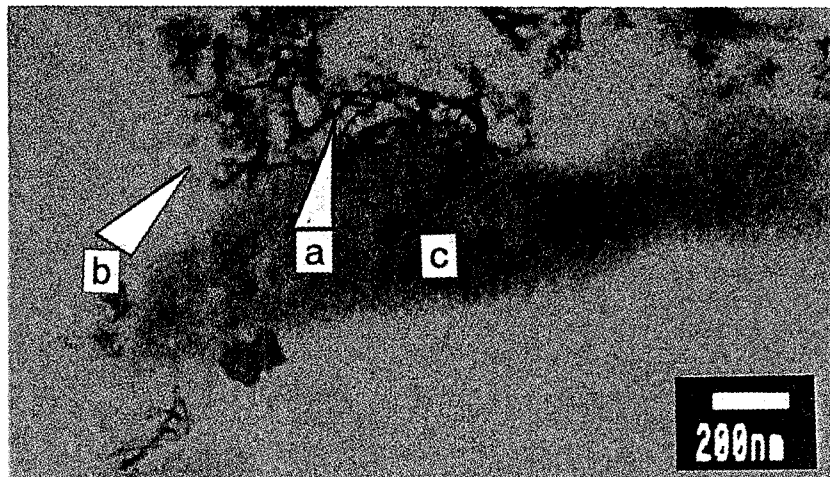


Fig. 2 TEM image of microbe obtained from deep sea sediments. Fibrous nontronite (a) crystallized with an orientation along the direction of the extracellular polymeric substance exudation (b) from microbial cell wall (c).

学位論文審査結果の要旨

微生物は大気、土壌および水中の至るところに生息し、地球上に多量に存在する珪酸塩鉱物の物質循環に重要な役割を担っている。本研究では、微生物が粘土鉱物の生成過程にどのように関与しているかを電子顕微鏡を用いて明らかにした。微生物が出す粘着物質が粘土鉱物の形成場となることを光学顕微鏡レベルから透過型電子顕微鏡による nm レベルまでを明らかにした。その実例としてカリ長石を主成分とする九谷焼釉薬中に形成したバイオマット(微生物被膜)を観察、分析し、微生物が出す粘着物質の中で酸性多糖分子によりカリ長石が風化し、ハロイサイトを形成することを明らかにした。新海底堆積物中に生息する微生物も多糖分子を出し、ノントロナイトを形成する事実を電子顕微鏡により示した。さらに、多糖類が粘土鉱物を形成するメカニズムを明らかにするために、デンプンを用いた合成実験を行った。多糖分子は溶存イオンを集積させ、2日間で層状珪酸塩鉱物を形成することを示した。本研究により、微生物は、粘着物質の滲出により岩石・鉱物の風化やイオンの集積の反応場を提供し、地球上の珪酸塩鉱物の物質循環に重要な役割を果たしていることを示した。

本論文は、従来の物理・化学的風化作用に加え、ほとんど研究されてこなかった微生物風化の分野において非常に有意義な知見を得ている。以上の研究成果は博士(理学)の学位を受けるに値すると判定される。