

令和 4 年 5 月 17 日現在

機関番号：13301

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2021

課題番号：19K14829

研究課題名（和文）太古代前期の微生物マットの地球化学的研究

研究課題名（英文）Geochemical analysis of a microbial mat in the Archean

研究代表者

齋藤 誠史（Saitoh, Masafumi）

金沢大学・地球社会基盤学系・博士研究員

研究者番号：80637588

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,500,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、初期地球における生命の活動の痕跡を記録していることが期待される太古代前期の堆積岩を対象とした地質学的及び地球化学的分析を行った。岩相記載及び岩石に含まれる炭質物の炭素同位体比に基づいて、岩石に含まれる微生物マット様の構造の形成に関与したと推定される微生物の代謝経路を推定した。さらに硫化鉱物の四種硫黄同位体比に基づいて当時の大気・海洋系における地球規模の硫黄循環の制約を試みた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

生命の起源およびその初期進化を究明することは、人類共通の根源的な目標のひとつである。しかし、地質記録に乏しい初期地球における生態系および生物地球化学的物質循環には未だ不明な点が多く残されている。本研究では、太古代前期の堆積岩を対象とした地質学的および地球化学的研究に基づいて、当時の海洋に生息したと考えられる微生物の代謝経路、および当時の大気-海洋系におけるグローバルな硫黄循環を制約した。

研究成果の概要（英文）：Paleoarchean sedimentary rocks were analyzed in order to constrain the global biogeochemical cycles on early Earth. Based on the carbon isotopic composition of carbonaceous material, a possible remnant of sedimentary microbes, in the analyzed rocks, the potential microbial pathway for carbon fixation in the Paleoarchean ocean was constrained. Furthermore, the global sulfur cycle in the ocean-atmosphere system on early Earth was constrained on the basis of the multiple sulfur isotopic composition of sulfide minerals in the analyzed sediments.

研究分野：地球化学

キーワード：太古代前期 堆積岩 微生物マット 硫黄同位体比

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

生命の起源およびその初期進化を究明することは、人間の根源的な目標の一つである。生命の存在を示唆する最古の証拠は約 40 億年前の太古代初期にまでさかのぼる() など)。しかし原太古代(40-36 億年前)の地質記録は乏しく、この時期の生命の初期進化については不明な点が多い。

原太古代から時代を下った古太古代(36-32 億年前)前期の約 35 億年前の地球には、すでに多様な生態系が存在していたと考えられている。これまで、約 35 億年前の生態系についての研究は主に、変成度が比較的低い堆積岩が露出する西オーストラリア・ピルバラ地塊を対象として行われてきた。ピルバラ地塊において、約 34.8 億年前に形成されたと推定されるドレッサ層は、当時の海洋地殻を構成したと考えられる玄武岩質緑色岩類や、熱水から沈殿したと考えられるチャートやバライトなどから構成される。これまでにドレッサ層の地質記録からは、微生物の化石と推定される微細な組織に加えて、生物の活動を示唆するさまざまな地質学的・地球化学的証拠が報告されてきた() など)。この結果、当時の海底熱水系に伴う化学合成生態系には、アセチル CoA 経路・窒素固定・硫酸還元・メタン生成などの代謝をもつ微生物が存在した可能性が指摘されてきた() など)。しかし、ドレッサ層は閉鎖的なカルデラの内部で形成されたとする見解も存在し()、同層に記録された情報が当時のグローバルな生態系や物質循環を反映したものか否かについてはこれまで不明であった。

南アフリカ東部に位置するカーブパール地塊には、ピルバラ地塊と同様に、変成度が比較的低い古太古代の堆積岩が露出する。カーブパール地塊において、緑色岩類を主体とするオンフェルワクト層群は、初生的には碎屑物として堆積したと推定されるチャート層を複数挟在する()。オンフェルワクト層群の下部と上部の境界に位置するミドルマーカー・ホライゾン、そのようなチャート層のなかで最下位のものであり、カーブパール地塊における最古の碎屑岩層の一つとされる()。またその堆積年代は約 34.7 億年前と推定されており()、ピルバラ地塊のドレッサ層の年代(約 34.8 億年前)とちかい。これまでにミドルマーカー・ホライゾンの堆積学的および岩石学的研究が行われて、同チャート層が碎屑物として浅海域に堆積した可能性や、微生物マット様の葉理や炭質物を含むことなどが指摘されてきた()、など)。ミドルマーカー・ホライゾンは、約 35 億年前の地球における生態系や物質循環を明らかにする上で重要な記録媒体である。また同時代のドレッサ層と対比することによって当時のグローバルな生態系や物質循環に対して制約を与えられる可能性が考えられる。しかしその潜在的な重要性にも関わらず、当時の浅海域の生態系や大気・海洋系の物質循環に注目したミドルマーカー・ホライゾンの地球化学的研究はこれまでに行われてこなかった。

2. 研究の目的

本課題では、ミドルマーカー・ホライゾンの岩石試料の岩相記載および地球化学分析を行い、約 35 億年前に生息した微生物の代謝経路、および当時の大気・海洋系におけるグローバルな物質循環を制約することを研究の目的とした。

3. 研究の方法

南アフリカ共和国東部ムプマランガ州に位置するバーバートン・マコンジュワ山脈の周辺において地質調査を行い、ミドルマーカー・ホライゾンの岩石試料を採集した。採集した試料の岩相を記載した。試料に含まれる炭質物について全岩の炭素同位体分析を行った。試料に含まれる硫化鉱物について全岩のおよび局所の硫黄同位体分析を行った。

4. 研究成果

(1) 野外調査で採集した岩石試料について、光学および電子顕微鏡を用いて岩相を記載した。ミドルマーカー・ホライゾンは黒色および明灰色のチャートを主体とし、中部にラピリ層を挟在する。下部は黒色チャートを主体とし、平行および斜交葉理がしばしば認められる。岩石は全体的に著しく珪化しており微晶質石英を主体とするが、碎屑粒子の仮像もわずかに認められる。また黒色チャートには炭質物が多く含まれる。黄鉄鉱・黄銅鉱・方鉛鉱などの多様な硫化鉱物が認められる。ミドルマーカー・ホライゾンの上部は明灰色チャートを主体とする。明灰色チャートも微晶質石英を主体とし、チタン酸化物や粘土鉱物が多く含まれる。また大型で自形ないし半自形の硫化鉱物がしばしば認められる。方解石やクロム鉄鉱もわずかに認められる。明灰色チャート中には石英脈が多く認められる。炭質物は認められない。ミドルマーカー・ホライゾンの中部にはしばしばラピリ層が挟まれる。ラピリ層の層厚の側方変化は著しい。ラピリの多くは微晶質石英および細粒の粘土鉱物によって置換されている。

以上の観察事実は、ミドルマーカー・ホライゾンが初生的に碎屑物として堆積したとする先行研究の主張と調和的である()。また本研究の結果は、黒色チャート中の平行葉理が微生物マットの痕跡である可能性を指摘した先行研究の結果を支持する()。さらに本研究では、明灰色チャートにのみ、石英脈が多く認められることや大型で自形の硫化鉱物が卓越することを見出した。この事実は、明灰色チャートが黒色チャートと比較して著しい続成作用を被った可能性

を示唆する。

(2) 上述の岩相記載に基づき、微生物マットの痕跡と目される葉理が認められ炭質物を多く含む黒色チャートについて、EA-IRMS を用いて全岩の有機炭素同位体比を測定した。この結果、試料に含まれる炭質物の ^{13}C 値は主に $-28\sim -29\%$ であることが明らかになった。この結果に基づいて、ミドルマーカール・ホライゾンの微生物マットにおける炭酸固定経路の制約を試みた。基質となった二酸化炭素の炭素同位体比が不明であるため、炭酸固定の際の同位体分別について詳しく制約することはむずかしい。しかし同時代のピルバラ地塊のドレッサー層の熱水性石英中の流体包有物に含まれる二酸化炭素の分析結果に基づき()、約 35 億年前における大気中の二酸化炭素の ^{13}C 値が -4% 以下であったと仮定すると、のちにミドルマーカール・ホライゾンの炭質物となった有機化合物が生合成された際の同位体分別は 25% 以下であった可能性が考えられる。したがってカルビン回路(あるいは逆 TCA 回路)が炭酸固定経路の候補として考えられる。このことはマットを構成した微生物が光合成細菌だった可能性が指摘されていることと矛盾しない()。ドレッサー層の化学合成生態系ではアセチル CoA 経路で炭酸が固定された可能性が指摘されているが()、浅海域のミドルマーカール・ホライゾンの微生物マットではこれと異なる炭酸固定経路が存在した可能性が考えられる。

(3) 黒色および明灰色チャートに含まれる硫化鉱物について、フッ化法を用いた全岩の四種硫黄同位体分析および二次イオン質量分析を用いた局所の三種硫黄同位体分析を行った。 ^{34}S 値に加えて、 $\Delta^{33}\text{S}$ 値を以下の式で定義した()。

$$\Delta^{33}\text{S} = \text{‰}^{33}\text{S} - 1000 \times [(1 + \text{‰}^{34}\text{S}/1000)^{0.515} - 1]$$

同位体分析の結果、ミドルマーカール・ホライゾンに含まれる硫化鉱物の ^{34}S 値は主に、 $-5\sim +10\%$ の範囲に入ることが明らかになった。また $\Delta^{33}\text{S}$ 値はほぼ正值で最大約 $+2.8\%$ に達し、硫黄の質量非依存性同位体分別のシグナルを記録していることが明らかになった。さらに黒色チャートと明灰色チャートとでは硫化鉱物の含有量および硫黄同位体シグナルが系統的に異なることが明らかになった。黒色チャートは比較的低い硫黄含有量と高い $\Delta^{33}\text{S}$ 値によって特徴づけられる。これに対して明灰色チャートは比較的高い硫黄含有量と低い $\Delta^{33}\text{S}$ 値によって特徴づけられる。とくに明灰色チャートの硫化鉱物の ^{34}S 値および $\Delta^{33}\text{S}$ 値はいずれも一様にゼロ付近の値をとる。このことから明灰色チャートに含まれる硫化鉱物は主に二次的に熱水から沈殿したと考えられる。この解釈は、上述の岩相記載の結果から明灰色チャートが著しい続成作用を被っていると考えられることと調和的である。

硫黄同位体分析の結果に基づき、全岩および局所分析のいずれにおいても、硫黄化合物を用いた微生物代謝の関与を示唆する ^{34}S 値の証拠は認められなかった。一般に、(硫酸還元などの)硫黄化合物を用いた微生物代謝では大きな動的同位体分別が起きることが知られ()、これは代謝の生成物である硫化水素、およびそれに由来する硫化鉱物の著しく低い ^{34}S 値によって特徴づけられる。これに対してミドルマーカール・ホライゾンに含まれる硫化鉱物の ^{34}S 値は主に、 $-5\sim +10\%$ の範囲に入る。特に、著しい続成作用を被ったと推定される明灰色チャートのみならず、比較的新鮮な黒色チャートにおいても著しく低い ^{34}S 値は認められなかった。このことから、ミドルマーカール・ホライゾンのマットは硫黄代謝を行わない種類の微生物によって構成されていた可能性が考えられる。ピルバラ地塊のドレッサー層の研究結果から、約 35 億年前の海水硫酸の $\Delta^{33}\text{S}$ 値は負の値であったと推定されている()、したがってもし仮に当時、海水硫酸を基質とする微生物硫酸還元が起きたとすると、この結果生成した硫化水素の $\Delta^{33}\text{S}$ 値も負の値をとったはずである。しかし上述のように、ミドルマーカール・ホライゾンに含まれる硫化鉱物は正の ^{34}S 値を示す。この事実は、ミドルマーカール・ホライゾンの微生物マットでは硫黄化合物を用いた代謝が卓越していなかった可能性を支持する。

一般に、太古代の地質記録中の硫黄の質量非依存性同位体分別のシグナルは、還元的な大気下における硫黄化学種の光化学反応によって生成したと推定されている() など)。とくにこの結果、正の $\Delta^{33}\text{S}$ 値をもつ元素硫黄が生成し、(太古代の地質記録中にしばしばみられる) $\Delta^{33}\text{S}$ 値が正值の硫化鉱物はこちらに由来する可能性が指摘されている()、)。本研究の結果から、ミドルマーカール・ホライゾンの黒色チャートにも還元的な大気由来の硫黄の寄与があった可能性が示唆される。

(4) 本研究によって得られたミドルマーカール・ホライゾンの硫黄同位体記録を、同じカーブパール地塊のオンフェルワクト層群下部の記録と比較した。この結果、ミドルマーカール・ホライゾンの硫化鉱物の $\Delta^{33}\text{S}$ 値は主に正であるのに対して、これよりも下位の緑色岩に含まれる硫化鉱物は $\Delta^{33}\text{S}$ 値が負のものが卓越し、両者は(いずれも硫黄の質量非依存性同位体分別を記録するものの) $\Delta^{33}\text{S}$ 値の符号が真逆であることが明らかになった。そこで火山ガスに含まれる二酸化硫黄の不均化反応を考慮した大気-海洋系の硫黄循環モデルを考案し()、これに基づいて符号が異なる $\Delta^{33}\text{S}$ 値が共存するオンフェルワクト層群下部の硫黄同位体記録を統一的に説明した。

ミドルマーカール・ホライゾンを含むオンフェルワクト層群下部の硫黄同位体記録を、同時代のピルバラ地塊のドレッサー層の記録と対比した。この結果、特に大気由来の硫黄の寄与を示唆す

るミドルマーカー・ホライゾンの同位体記録を加味することによって、両地域の硫黄同位体記録、およびそれらを説明する硫黄循環モデルの間に著しい共通性が存在することを見出した。当時地理的に隔っていた可能性があるカーブパール地塊とピルバラ地塊の地質記録において共通する硫黄同位体シグナルが見出されたことは、これらが約 35 億年前の大気 海洋系におけるグローバルな硫黄循環を記録している可能性を示唆する。

< 引用文献 >

- Tashiro et al. (2017) *Nature*, 549, 516-518.
Schopf et al. (2018) *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 115, 53-58.
Ueno et al. (2001) *Int. Geol. Rev.*, 43, 196-212.
Nishizawa et al. (2014). *Geochim. Cosmochim. Acta*, 138, 117-135.
Shen et al. (2001) *Nature*, 410, 77-81.
Ueno et al. (2006) *Nature*, 440, 516-519.
Van Kranendonk et al. (2008) *Precambrian Res.*, 167, 93-124.
Hofmann (2005) *Precambrian Res.*, 143, 23-49.
Lanier and Lowe (1982) *Precambrian Res.*, 18, 237-260.
Armstrong et al. (1990) *Earth Planet. Sci. Lett.*, 101, 90-106.
Hickman-Lewis et al. (2018) *Precambrian Res.*, 312, 45-67.
Ono (2017) *Ann. Rev. Earth Planet. Sci.* 2017, 45, 301-329.
Canfield (2001) *Geochim. Cosmochim. Acta*, 65, 1117-1124.
Ueno et al. (2008) *Geochim. Cosmochim. Acta*, 72, 5675-5691.
Shen et al. (2009) *Earth Planet. Sci. Lett.*, 279, 383-391.
Farquhar et al. (2000) *Science*, 289, 756-758.
Ono et al. (2003) *Earth Planet. Sci. Lett.*, 213, 15-30.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Saitoh, M., Nabhan, S., Thomazo, C., Olivier, N., Moyen, J.-F., Ueno, Y., Marin-Carbonne, J.	4. 巻 10
2. 論文標題 Multiple sulfur isotope records of the 3.22 Ga Moodies Group, Barberton Greenstone Belt.	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Geosciences	6. 最初と最後の頁 145
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/geosciences10040145	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Saitoh, M., Olivier, N., Garcon, M., Boyet, M., Thomazo, C., Alleon, J., Moyen, J.-F., Motto-Ros, V., Marin-Carbonne, J.	4. 巻 362
2. 論文標題 Metamorphic origin of anastomosing and wavy laminas overprinting putative microbial deposits from the 3.22 Ga Moodies Group (Barberton Greenstone Belt).	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Precambrian Research	6. 最初と最後の頁 106306
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.precamres.2021.106306	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Saitoh, M., Olivier, N., Garcon, M., Boyet, M., Thomazo, C., Alleon, J., Moyen, J.-F., Motto-Ros, V., Marin-Carbonne, J.	4. 巻 373
2. 論文標題 Reply to comment on “Metamorphic origin of anastomosing and wavy laminas overprinting putative microbial deposits from the 3.22 Ga Moodies Group (Barberton Greenstone Belt)”	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Precambrian Research	6. 最初と最後の頁 106624
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.precamres.2022.106624	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Saitoh, M., Olivier, N., Thomazo, C., Ueno, Y., Moyen, J.-F., Marin-Carbonne, J.
2. 発表標題 Petrological and geochemical characteristics of the 3.47 Ga Middle Marker horizon in the Barberton Greenstone Belt, South Africa.
3. 学会等名 18th Swiss Geoscience Meeting (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
フランス	クレルモン=オーヴェルニュ大学			
スイス	ローザンヌ大学			