

令和 5 年 4 月 13 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02015

研究課題名(和文)古原生代オロシリア紀の生命・海洋進化

研究課題名(英文)Evolution of life and ocean during Orosirian Era in the Paleoproterozoic

研究代表者

白石 史人(Shiraishi, Fumito)

広島大学・先進理工系科学研究科(理)・准教授

研究者番号：30626908

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,700,000円

研究成果の概要(和文)：古原生代オロシリア紀(20.5～18.0億年前)の生命・海洋進化を理解するため、インドのオロシリア系に着目して研究を行った。縞状鉄鉱層からは、現生の鉄酸化細菌に類似した微化石が多数発見された。希土類元素の分析から、それらが底生の鉄酸化細菌であり、当時の浅海成縞状鉄鉱層の形成に重要な役割を果たしていた可能性が示された。また、2つの堆積盆から新たに堆積年代を制約するデータを得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

古原生代オロシリア紀は、縞状鉄鉱層の堆積場が浅海化したり、ユーキシニック(貧酸素・高硫化水素)水塊が発達を開始したなど、生命・海洋進化にとって重要な時代である。本研究ではインドのオロシリア系を研究することで、底生の鉄酸化細菌が縞状鉄鉱層の浅海化に関与した可能性や、ユーキシニック水塊がまだ全球的に広がっていなかった可能性などを示すことができた。結果として、よく研究されているカナダ以外のオロシリア系の重要性が認識されるものと期待される。

研究成果の概要(英文)：In order to understand the evolution of life and oceans during the Paleoproterozoic Orosirian period (2.05 to 1.80 billion years ago), this study focused on the Orosirian rocks in India. Many microfossils similar to modern iron-oxidizing bacteria were found in the banded iron formation. Analysis of rare earth elements indicated that they were benthic iron-oxidizing bacteria and may have played an important role in the formation of shallow marine banded iron formation at that time. This study also obtained new data to constrain the depositional ages from two sedimentary basins.

研究分野：地質学，層位・古生物学

キーワード：縞状鉄鉱層 鉄酸化細菌

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

先カンブリア時代は地球環境が大きく変化した時代であり、25～23億年前の大酸化イベントや約22・7.5・6.5億年前の全球凍結は特に有名である。その一方で、知名度は決して高くないが、20.5～18.0億年前(古原生代オロシリア紀)も生命・海洋進化を理解する上で非常に重要な時代である。

例えば、縞状鉄鉱層は大酸化イベント前では主に深海(約200m以深)で堆積していたが、大酸化イベント後では主に浅海で堆積するようになり(Klein, 2005)、そのほとんどがオロシリア紀に形成された。これは何らかの生物的・環境的要因が変化したためと考えられている。浅海成の縞状鉄鉱層はまた、ストロマトライトや微化石(いわゆるガンフリント生物群)をしばしば伴っており、それらは先カンブリア時代の生物相を知る上で重要な化石記録として注目されている。

また、大規模な縞状鉄鉱層の形成はオロシリア紀末で終了する。その原因は当初、海洋全体が酸化になって溶存鉄が酸化し尽されたためと考えられていた(Cloud, 1973)。しかしながらその後の研究により、大気酸素分圧の上昇に伴って陸上硫化物の酸化・硫酸イオンの海洋流入が起き、微生物の硫酸還元によって海洋全体がユーキシニック(貧酸素・高硫化水素)になったことで溶存鉄が黄鉄鉱として除去されたためとする仮説が提唱された(Canfield, 1998; Poulton et al., 2004)。最近では、ユーキシニックであったのは海洋中層のみであり、その状態が約18億年前から10億年以上にわたって続いたと考えられている(Poulton et al., 2010; Planavsky et al., 2011; Lyons et al., 2014)。

このようにオロシリア紀は、先カンブリア時代において生命・海洋進化の一大転換期であったが、1)なぜ縞状鉄鉱層の堆積場が浅海化したのか、2)ユーキシニック中層が成立当初から全球的に広がっていたのか、ということに関してはほとんど理解が進んでいない。その主な原因は、オロシリア紀の良質な地層記録がカナダ・アニキ堆積盆に集中しており、他地域からの情報が乏しいことにあった。

### 2. 研究の目的

そこで本研究はインドのオロシリア系に着目し、縞状鉄鉱層の形成に底生鉄酸化細菌が寄与することで堆積場が浅海化したのか、また当該地域でもユーキシニック中層が発達していたのかを明らかにすることを当初の目的とした。

### 3. 研究の方法

まずはインドにおいて地質調査を行い、縞状鉄鉱層・黒色頁岩・凝灰岩などの岩相分布を明らかにする。縞状鉄鉱層中に見られる微化石に対しては集束イオンビーム加工によって薄膜試料を作成し、透過型電子顕微鏡および走査型透過X線顕微鏡を用いて観察を行い、微化石が底生の鉄酸化細菌であるかを検討する。また、縞状鉄鉱層の希土類元素パターンを測定することで、堆積時に鉄酸化細菌が好む微好気的環境であったかも調べる。黒色頁岩が得られた場合には、鉄化学種解析を行ってユーキシニックであったかを調べる。またこれらの岩石が、2.5億年間にわたるオロシリア紀の中でどの時代に位置するのかを明らかにするため、年代決定にも取り組む。

### 4. 研究成果

#### (1) 岩相分布

特にグワリオール堆積盆とマハコーシャル堆積盆のオロシリア系について、岩相分布を調査した。本研究課題の開始とほぼ時を同じくしてコロナ禍となったため、調査は当初の計画に比べると規模を縮小せざるを得なかったが、それでもなお、縞状鉄鉱層と凝灰岩などの火山砕屑岩の分布が明らかとなった。今回の調査範囲において黒色頁岩の産出は確認できず、これは当該地域においてユーキシニックを含む貧酸素水塊が欠如していたことを示唆する。ただし、これが堆積盆全体の状況を反映するかについては、今後より広範な調査が必要である。

#### (2) 縞状鉄鉱層中の微化石

縞状鉄鉱層試料から多数の薄片を作成・観察したところ、複数試料の珪質部から新たに微化石を発見した。それらは、これまでに発見されていたフィラメント状のものだけでなく、ココイド状のものも含まれており、後者はペロイドのような産状を示す場合もあることが明らかとなった。フィラメント状のもの多くは幅約1～4μm、長さ200μm以下であり、現生の鉄酸化細菌である*Leptothrix*属や*Gallionella*属と同等の大きさであった。一方、1つだけ幅約6μm、長さ約750μmと非常に長いチューブ状の構造が発見されたが、ところどころでチューブが角ばった輪郭を示すこと、またその末端部にヘマタイトのような鉱物が存在することから、これはチャート中にしばしば形成される偽化石のAmbient Inclusion Trailsであると考えられる。

薄片観察によって発見した微化石の中から、最も細胞のような構造がはっきり見えるものを選定し、その詳細な特徴を明らかにした(柴田, 2023)。まず薄片の微化石を含む部分から集束イオンビーム加工によって薄膜試料を作成し、それを走査型透過X線顕微鏡および透過型電子

顕微鏡を用いて観察した。走査型透過 X 線顕微鏡による観察では、微化石のチューブ内に有機物の存在を示すような炭素・窒素の分布はほとんど見られなかった。また微化石が鉄酸化細菌であった場合に期待される、チューブ表層を覆う鉄酸化物も見られなかった。チューブの内壁からは、非晶質シリカを示唆する NEXAFS スペクトルが得られたが、これは集束イオンビーム加工によるアーティファクトの可能性が高い。一方で、薄膜で観察される範囲内において、チューブ内に直径 0.5  $\mu\text{m}$  程度の鉄に富む粒子と炭素に富む粒子がそれぞれ 1 つずつ発見された。透過型電子顕微鏡による電子線回折パターンと EDS による元素分析から、炭素に富む粒子は有機物、鉄に富む粒子はゲーサイトであることが明らかになった。透過型電子顕微鏡による観察ではまた、チューブ内壁にサブミクロンサイズの石英が露出して粗くなっていることが確認され、このチューブ構造が Ambient Inclusion Trails のような偽化石でないことが明らかとなった。これらのことから、このチューブ状構造は微化石であるが、集束イオンビーム加工中に内部が抜け落ちた、もしくは続成作用などによって大部分の有機物や鉄酸化物が失われたものと推定される。これらの結果を踏まえ、今後はより黒色または褐色を呈する微化石を選定することで、本来の特徴がより詳細に明らかになるものと期待される。

### (3) 希土類元素パターン

希土類元素濃度を測定するために、マイクロドリルを用いて試料の部位ごとに粉末試料を作成した。粉末試料を酸分解し、カラムで希土類元素を分離した後に、誘導結合プラズマ質量分析計を用いて希土類元素濃度を測定した (大西, 2022)。

縞状鉄鉱層では、鉄質部・珪質部とも正の Eu 異常が見られ、これは海底熱水の影響を示唆する。TiO<sub>2</sub> および Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 含有量と総 REE 濃度の相関係数は比較的小さいことから、陸源碎屑物由来の REE の影響は小さいと考えられる。同様に Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 含有量と総 REE 濃度の相関係数も有意でなかったことから、鉄酸化物によるスカベンジングの影響も小さいと考えられる。このことは、縞状鉄鉱層中の鉄酸化物形成に微生物が関与していた場合、浮遊性ではなく底生の微生物の寄与が大きかったことと整合的である。

全てのデータに関して、真のセリウム正異常を判別する図にプロットすると、10%程度の試料に明確な真のセリウム正異常が見られた。これらの試料にマンガン酸化物は含まれていないことから、セリウムは酸化されるがマンガンは酸化されない微好気的な環境を示している可能性が考えられる (Nakada et al., 2013)。実際に、これらの試料のいくつかは鉄酸化細菌に類似した微化石を含んでいることから、これら浅海成縞状鉄鉱層の形成に鉄酸化細菌が重要な役割を果たしていたことが考えられる。

### (4) 年代決定

グワリオール堆積盆において新たに発見された凝灰質砂岩からジルコンを分離し、レーザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析計によってウラン-鉛年代を測定した。分析した 140 個のジルコンのうち 31 個がコンコーダントな年代を示した。そのうち 30 個は 2700–2500 Ma であったが、1 つだけ 1982 Ma とオロシリア紀の年代を示すものが得られた。これらのことは、ジルコンの大部分は碎屑性であるが、ごく一部に堆積同時に近いジルコンが含まれていることを示唆する。グワリオール堆積盆の年代論は、現在に至るまで基盤岩やシルなどの間接的データに依拠しており (Srivastava et al., 2022)、本研究のデータは初の堆積同時年代である可能性があることから、今後は分析数を増やしてこの結果を確認する必要があるだろう。

マハコーシャル堆積盆においては新たに火山碎屑岩を発見し、それに含まれるジルコン 38 粒子のウラン-鉛年代を測定したところ、11 粒子で約 1894 Ma とこれもオロシリア紀を示す年代が得られた。これはマハコーシャル堆積盆で初の堆積同時年代であり、データ数も十分であることから、結果を国際誌に論文として公表した (Sharma et al., 2022)。

### < 引用文献 >

- Canfield D.E. (1998) A new model for Proterozoic ocean chemistry. *Nature* 396, 450–453.
- Cloud P. (1973) Paleocological significance of the banded iron-formation. *Economic Geology* 68, 1135–1143.
- Klein C. (2005) Some Precambrian banded iron-formations (BIFs) from around the world: Their age, geologic setting, mineralogy, metamorphism, geochemistry, and origins. *American Mineralogist* 90, 1473–1499.
- Lyons T.W., Reinhard C.T., Planavsky N.J. (2014) The rise of oxygen in Earth's early ocean and atmosphere. *Nature* 506, 307–315.
- Nakada R., Takahashi Y., Tanimizu M. (2013) Isotopic and speciation study on cerium during its solid-water distribution with implication for Ce stable isotope as a paleo-redox proxy. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 103, 49–62.
- 大西一樹 (2022) インド・オロシリア系グワリオール層群に見られる縞状鉄鉱層の形成環境。令和 3 年度広島大学卒業論文。
- Planavsky N.J., McGoldrick P., Scott C.T., Li C., Reinhard C.T., Kelly A.E., Chu X., Bekker A., Love G.D., Lyons T.W. (2011) Widespread iron-rich conditions in the mid-Proterozoic

- ocean. *Nature* 477, 448–451.
- Poulton S.W., Fralick P.W., Canfield D.E. (2004) The transition to a sulphidic ocean~ 1.84 billion years ago. *Nature* 431, 173–177.
- Poulton S.W., Fralick P.W., Canfield D.E. (2010) Spatial variability in oceanic redox structure 1.8 billion years ago. *Nature Geoscience* 3, 486–490.
- Sharma A., Das K., Chakraborty P., Shiraishi F., Kayama M. (2022) U-Pb zircon geochronology of a pyroclastic rock from the Parsoi Formation, Mahakoshal Group: Implications towards basin age and related tectonics in Central Indian Tectonic Zone. *Geological Journal* 57, 4122–4138.
- 柴田 絢亮 (2023) インド古原生界グワリオール層群の縞状鉄鉱層中に見られる微化石の起源解明 . 令和 4 年度広島大学卒業論文 .
- Srivastava R.K., Chamberlain K.R., Samal A.K., Ernst R.E. (2022) A new ca. 1.73 Ga mafic magmatic event in the Indian Shield: Evidence from an in-situ SIMS U-Pb baddeleyite date and geochemistry of the mafic intrusions within the Gwalior basin, Bundelkhand craton. *Precambrian Research* 377, 106696.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Sharma Aditi, Das Kaushik, Chakraborty Partha Pratim, Shiraishi Fumito, Kayama Masahiro	4. 巻 57
2. 論文標題 U-Pb zircon geochronology of a pyroclastic rock from the Parsoi Formation, Mahakoshal Group: Implications towards age and tectonics of the Basin in Central Indian Tectonic Zone	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Geological Journal	6. 最初と最後の頁 4122 ~ 4138
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/gj.4533	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
1. 著者名 Shields G.A., Strachan R.A., Porter S.M., Halverson G.P., Macdonald F.A., Plumb K.A., de Alvarenga C.J., Banerjee D.M., Bekker A., Bleeker W., Brasier A., Chakraborty P.P., Collins A.I.S., Condie K., Das K., et al.	4. 巻 179
2. 論文標題 A template for an improved rock-based subdivision of the pre-Cryogenian timescale	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Geological Society	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1144/jgs2020-222	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
1. 著者名 Mukherjee Sneha, Das Paramita, Ghosh Gautam, Bose Sankar, Amal Dev J., Das Kaushik, Tomson J.K.	4. 巻 387
2. 論文標題 Petrography, geochemistry and detrital zircon geochronology of the Srisailam Quartzite Formation, Cuddapah Basin, India: Implications for depositional age, correlation and provenance	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Precambrian Research	6. 最初と最後の頁 106978 ~ 106978
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.precamres.2023.106978	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
1. 著者名 Nagaishi Kazuya, Nakada Ryoichi, Ishikawa Tsuyoshi	4. 巻 55
2. 論文標題 High-throughput isotope analysis of sub-nanogram sized lead using MC-ICP-MS with on-line thallium doping technique and desolvating nebulizer system	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 GEOCHEMICAL JOURNAL	6. 最初と最後の頁 1 ~ 9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2343/geochemj.2.0612	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 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 白石史人
2. 発表標題 微生物による鉱物形成過程から読み解く地球史・生命史
3. 学会等名 日本地球化学会第69回年会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中田亮一、横山文香、朝倉奈子、永石一弥
2. 発表標題 希土類元素安定同位体比を用いたpH指標の開発
3. 学会等名 日本地球化学会第69回年会
4. 発表年 2022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
研究分担者	Das Kaushik  (Das Kaushik)  (40634077)	広島大学・先進理工系科学研究科(理)・准教授    (15401)	
研究分担者	中田 亮一  (Nakada Ryoichi)  (50726958)	国立研究開発法人海洋研究開発機構・超先鋭研究開発部門(高知コア研究所)・主任研究員    (82706)	

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			
インド	デリー大学			