

Reconstruction of the Mesoproterozoic sea floor  
sedimentary environment: Studies on  
stratigraphy and carbon and sulfur isotope of  
the DXCL drill cores in the coastal Pilbara  
terrane, Western Australia

三木, 翼

<https://doi.org/10.15017/1931697>

---

出版情報 : 九州大学, 2017, 博士 (理学), 課程博士  
バージョン :  
権利関係 :

|        |   |      |     |      |
|--------|---|------|-----|------|
| 氏 名    | 三木 翼  |      |     |      |
| 論 文 名  | Reconstruction of the Mesoproterozoic sea floor sedimentary environment:<br>Studies on stratigraphy and carbon and sulfur isotope of the DXCL drill cores in the coastal Pilbara terrane, Western Australia<br>(中太古代の海洋堆積環境復元: 西オーストラリア・海岸ピルバラ帯の DXCL コアの層序および炭素・硫黄同位体に関する研究) |      |     |      |
| 論文調査委員 | 主 査   | 九州大学 | 准教授 | 清川昌一 |
|        | 副 査   | 九州大学 | 教授  | 奈良岡浩 |
|        | 副 査   | 東京大学 | 教授  | 佐野有司 |

### 論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

三木翼氏の研究は以下の通りである。

西オーストラリア・ピルバラ地域は太古代の低変成度のグリーンストーン帯が最も良く保存され、特に北西部のクリーバビル地域には海岸に沿って約 32-31 億年前のデキソンアイランド層及びクリーバビル層が露出している(Kiyokawa and Taira, 1998; Kiyokawa et al., 2006)。しかし本地域の陸上露頭は様々な度合いの風化作用を被っており、地球化学的な物質変化を正確に追跡する事は困難であった。2007 年、未風化の新鮮な岩石試料を採取し、当時の海洋底環境を詳細に復元する事を目的とした Dixon Island-Cleaverville 陸上掘削(DXCL-Drilling Project; Kiyokawa et al., 2012)が行われた。本研究では DXCL 掘削によって得られた計 4 本、合計コア長約 420 m の未風化岩石試料(DX, CL1, CL2, CL3 コア)を用いて、これらの地層の詳細な岩相記載・層序確立および炭素・硫黄同位体分析を行い、約 32 から 31 億年前の海洋底環境の復元を試みた。

(コア記載と層序) DX コアは、黒色頁岩と灰色珪質頁岩、黄鉄鉱層の互層からなる。鏡下観察により、数 mm 幅の黄鉄鉱層の中には数十から数百  $\mu\text{m}$  の自形黄鉄鉱や直径約 10  $\mu\text{m}$  の微小球殻状黄鉄鉱の存在を明らかにし、それらの形成順序の推定を行った。CL1 コアおよび CL2 コアは、シルト～細粒砂を含む黒色頁岩ないし無層理黒色泥岩、CL3 コアは炭酸鉄 BIF と赤鉄鉱、磁鉄鉱、チャートからなる酸化鉄 BIF を黒色頁岩が挟む、上方に浅くなり、酸化的になる層序を復元した。

(黒色頁岩分析)

・炭素分析 黒色頁岩に注目して、生物活動を知るために、有機・無機炭素同位体( $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$ ・ $\delta^{13}\text{C}_{\text{carb}}$ )分析を行なった。 $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$  は岩相に関わらず -30 ‰ で安定し、酸素発生型の光合成細菌であるシアノバクテリアの存在を示した。シアノバクテリアは海洋表層に酸素を放出による、熱水起源の 2 価鉄イオンとの結合により水酸化鉄イオンの沈殿を示す。一方 BIF 部層中の  $\delta^{13}\text{C}_{\text{carb}}$  は主に菱鉄鉱の値を反映して、一般的な海洋無機炭酸塩(-2 ~ +2 ‰; Becker and Clayton, 1972)より低い約 -10 ‰ の値で安定した。これは世界各地の BIF 中の菱鉄鉱の値(約 -10 ‰; Fischer et al. 2009)に近く、同位体比の低い炭素源についての議論(Becker and Clayton, 1972)や BIF 中の菱鉄鉱の鉄同位体組成に関する研究(Konhauser et al., 2005)に示すように、鉄還元菌による水酸化鉄イオンを用いた呼吸反応で形成したことを突き止めた。

・硫黄分析 硫黄同位体比( $\delta^{34}\text{S}$ )全岩分析では粉碎試料から, DX コアから CL3 コアを通して  $\delta^{34}\text{S}$  値は-10 ~ +25 ‰の範囲, CL1 コア, CL2 コアおよび CL3 コアでは 0-20‰に渡る正の値を示した. 硫酸イオンよりも硫化物の方が同位体的に重くなる現象は一般に Rayleigh 分別(Seal, 2006)で説明されるが, DXCL 掘削試料では Rayleigh 分別の初期段階で必然的に生成される同位体的に軽い黄鉄鉱が欠如している. この時代の黄鉄鉱生成過程においては硫黄同位体が硫酸還元菌などにより軽くなるという, 従来の説に従わないプロセスが働いている可能性がある.

重い  $\delta^{34}\text{S}$  変動プロセスを調べるため, 細かな黄鉄鉱ラミナを特徴的に多く含む DX コアに重点的に着目し, 黄鉄鉱ラミナを構成する直径約 10  $\mu\text{m}$  の微小球殻状黄鉄鉱について  $\delta^{34}\text{S}$  局所分析を行なった. 球殻状黄鉄鉱は, その形態から R(rounded)-I 型(球殻の中にシリカのみが充填したもの), R-II 型(球殻の中にシリカが充填し, 中心部に黄鉄鉱球を含むもの), R-III 型(球殻の中を全て黄鉄鉱が充填したもの)の 3 つに分類した. これらを, NanoSIMS50(二次元高分解能二次イオン質量分析装置)を用いて 10 x 10  $\mu\text{m}^2$  ほどの領域を対象に  $\delta^{34}\text{S}$  のマッピングを行なった. ここでは, 4 つに分類でき, R-I 型: 1 つの球殻内で同心円状の分布. R-II 型: 外殻は同心円状の分布, 内部の黄鉄鉱球の 5 ~ 10 ‰高い値の存在. R-III 型: 外縁部と中心部が軽く, その間にリング状に約 7 ‰高い領域の存在. R-IV 型: 直径 10  $\mu\text{m}$  の円状の領域, 周囲は 20 ~ 30 ‰低くほぼ均質であった. 自形は, 均質な値の分布で, 値も一定していた.

R-I 型は最も初期に形成し, その球殻内部にて硫酸還元が続いて黄鉄鉱が沈殿する際に同位体的に重い組成をとることで R-II 型となる. 球殻が全て黄鉄鉱で埋まる時点で黄鉄鉱は同位体的に最も重くなっており, R-III 型になる. 一方 R-IV 型は, 球殻が外側に成長して他の球殻と接する際に同位体的に均質で軽い黄鉄鉱が形成した. また球殻外部では同位体比が均質な自形の黄鉄鉱が結成時に成長している. この球殻状黄鉄鉱の成長について, 粒径(10 $\mu\text{m}$ )から硫酸還元菌(体長~1 $\mu\text{m}$ )の活動が想起されるが, 硫酸還元菌が生成する硫化物の  $\delta^{34}\text{S}$  を上昇させる働きは閉鎖系以外では知られていない. この球殻部分で同位体変化を起こしていることが明らかになった. しかし球殻内部は結晶成長のために硫酸を取り込む開放系である必要がある. そのため, 内部の黄鉄鉱の  $\delta^{34}\text{S}$  を上昇させるプロセスは硫酸還元菌による Rayleigh 分別とは異なる可能性が高い.

(結果) デキソンアイランド・クリバービル層では 1) 全体に深海の嫌気的環境から浅海化しながら BIF 生成場へと変化したこと, 2) 表層のシアノバクテリアの発する酸素により水酸化鉄が形成し, 鉄還元菌による菱鉄鉱形成が行われていたこと, 3) 黄鉄鉱の  $\delta^{34}\text{S}$  が高く重晶石の  $\delta^{34}\text{S}$  が低い特異な環境であり, Rayleigh 分別以外の同位体分別プロセスが働いていた可能性があること, 4) 球殻状黄鉄鉱内部にも同位体不均質があり,  $\mu\text{m}$  スケールでも黄鉄鉱の  $\delta^{34}\text{S}$  を高くするプロセスが働いていたことが明らかになった.

本研究は, 400m に及ぶ膨大な掘削試料から膨大かつ詳細なデータを取得し, 約 5000 万年間におよぶ地層変化を追求して, 今まで知られていない当時の層序および化学データから当時の海底環境の復元を試みている. この時代は地球史の中で空白といわれる 32-31 億年前であり, その地球表層部における海底環境復元に踏み込んだ本研究は, 世界的にも太古代環境復元を考察するために非常に重要である. 彼の研究はこの時代の世界的に重要な基礎データとなり, 今まで知られていなかった中太古代海底における炭素・硫黄循環および生物活動についての挙動が明らかになった.

よって, 本研究者は博士(理学)の学位を受ける資格があるものと認める.