

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Sulfur cycling in Ediacaran and early Cambrian periods reconstructed from quadruple sulfur isotope analysis and culture experiment of sulfate reducing bacteria
著者(和文)	松浦史宏
Author(English)	Fumihiro Matsu'ura
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10290号, 授与年月日:2016年9月20日, 学位の種別:課程博士, 審査員:上野 雄一郎,中本 泰史,綱川 秀夫,横山 哲也,太田 健二,岩森 光
Citation(English)	Degree:, Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10290号, Conferred date:2016/9/20, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻： Department of	地球惑星科学	専攻	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 （理学）
学生氏名： Student's Name	松浦 史宏		指導教員（主）： Academic Advisor(main)	上野 雄一郎
			指導教員（副）： Academic Advisor(sub)	綱川 秀雄

要旨（和文 2000 字程度）

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

堆積物中の硫酸塩や硫化物の硫黄同位体比は地球表層環境の酸化還元状態を表す指標のひとつである。しかし、顕生代の海洋堆積物に含まれる硫酸塩と硫化物間の硫黄同位体分別は 50%を超えるのに対し、実験室での硫酸還元菌の単離培養実験では平均 20%程度で、環境中の硫黄同位体分別を再現できていないという問題がある。天然環境と実験室で生じる硫黄同位体分別の違いは、硫化水素の酸化を含む酸化的な硫黄循環に推移したこと起因する可能性があり、その開始時期は生物が多細胞化するエディアカラ紀からカンブリア紀にかけてと考えられてきた。しかし、最近の研究により酸化的な海洋硫黄循環は中期原生代からすでに始まっていた可能性が示唆されている。そこで、後期原生代における硫酸塩、硫化物間の硫黄同位体分別の増大の原因を明らかにする必要がある。また、微生物硫酸還元は海洋堆積物中の有機物分解の 50%程度を担っていると考えられており、海洋硫黄循環においても主要な役割を果たしていると考えられる。そのため微生物硫酸還元過程での硫黄同位体分別の増減要因を特定することは重要である。

そこで微生物硫酸還元過程での硫黄同位体分別の増減要因を明らかにするため、硫酸還元菌の培養実験を行った。特に硫酸還元菌の増殖フェーズに着目し、対数増殖期とそれ以降の細胞維持期における微生物硫酸還元過程の硫黄同位体分別係数を決定した。培養には海洋堆積物中などに最も普遍的に存在する菌の一つである *Desulfovibrio desulfuricans* を用いた。培養の基質は乳酸を用いた実験と、グルコースを用いた実験の 2 つを行った。その結果、乳酸を基質に用いた場合でも、グルコースを基質に用いた場合でも細胞維持期における硫黄同位体分別が対数増殖期よりも大きくなることを明らかにした。特に、基質にグルコースを用いて、かつ培地に鉄を加えない実験を行ったところ細胞維持期における硫黄同位体分別は 50%を超える大きな値となった。この結果から環境中の大きな硫黄同位体分別を説明するうえで硫酸還元菌の細胞維持期の代謝が重要であることを明らかにした。

さらに、後期原生代における硫黄同位体分別の増大の原因を明らかにするため、南中国三峡地域の 635Ma から 510Ma にかけての地層から掘削された掘削試料を用いて cm 単位の詳細な 4 種硫黄同位体分析を行った。堆積物中の硫酸塩である炭酸塩置換体硫酸の抽出については、新たに確立した手法を適用し、硫酸塩、硫化物についての詳細な 4 種硫黄同位体化学層序を確立した。この結果硫化物の $\delta^{34}\text{S}$ 値が主に硫酸塩硫化物間の硫黄同位体分別を反映しており、硫化物の $\delta^{34}\text{S}$ 値が後期原生代を通じて 2 つの負異常を持つことを明らかにした。南中国三峡地域は多細胞生物の化石を含む後期原生代の代表的な地層が保存されている場所であり、本研究で用いた掘削試料を用いてすでに炭酸塩の炭素同位体比 ($\delta^{13}\text{C}_{\text{carb}}$)、ストロンチウム同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$)、有機物の炭素同位体比 ($\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$) などが報告されている。本研究で得られた硫化物の $\delta^{34}\text{S}$ 値の変動を炭素およびストロンチウム化学層序と比較したところ $\delta^{34}\text{S}$ 値と $\delta^{13}\text{C}_{\text{carb}}$ 値が正の相関を持ち、 $\delta^{34}\text{S}$ 値と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 値が負の相関を持つことが分かった。硫酸還元過程の硫黄同位体分別は、先行研究や本研究の硫酸還元菌培養実験により主に微生物硫酸還元領域への有機物供給量と海水硫酸濃度で決まると考えられる。南中国三峡地域では先行研究の $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$ 値の分析から海水中に大量の有機物が存在していたと考えられるため、硫黄同位体分別は微生物硫酸還元領域への有機物供給量でなく海水硫酸濃度の増減を反映していると考えられる。実際に、硫化物の $\delta^{34}\text{S}$ 値の負異常期において $\delta^{13}\text{C}_{\text{carb}}$ 値が減少し $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比が上昇することから、硫化物の $\delta^{34}\text{S}$ 値の負異常は、酸化的風化起源の大陸物質供給量が増大したことにより、海水硫酸濃度が上昇したことを反映していると結論付けた。特にシュラムエクスカージョンと呼ばれる全球的な炭酸塩の炭素同位体の負異常において硫酸塩の $\delta^{34}\text{S}$ 値が全球的に変動していることから、シュラムエクスカージョンが起きたエディアカラ紀中期に、硫黄同位体比が全球的に均質化する程度まで、海水硫酸濃度が上昇したと結論付けた。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。
Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。
Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻：地球惑星科学 専攻
Department of
学生氏名：松浦 史宏
Student's Name

申請学位(専攻分野)：博士 (理学)
Academic Degree Requested Doctor of
指導教員(主)：上野 雄一郎
Academic Advisor(main)
指導教員(副)：綱川 秀雄
Academic Advisor(sub)

要旨(英文 300 語程度)
Thesis Summary (approx. 300 English Words)

Sulfur isotopic compositions of the sulfates and the sulfides in marine sediments are a proxy of the oxidation state of the earth's surface. The sulfur isotope fractionation between seawater sulfate and sedimentary sulfides exceeds 50‰ in Phanerozoic marine sediments. However, in laboratory, the culture experiments of sulfate reducing bacteria generally yield smaller fractionation. The discrepancy between the experiments and natural systems may be explained by the onset of oxidative sulfur cycling through sulfur disproportionation at around Ediacaran-Cambrian boundary, though several studies on multiple sulfur isotopes suggested oxidative sulfur cycling have already started in Mesoproterozoic. In order to clarify the reason why the sulfur isotope fractionation increased at the terminal Proterozoic, it is also important to study the factors controlling the sulfur isotope fractionation by sulfate reducers.

To solve the problem, culturing experiment of sulfate reducing bacteria were conducted, particularly focusing on the relation between cell's growth phase and the sulfur isotope fractionation. The experimental results show that the fractionation during the cell's maintenance phase is larger than that of the exponential phase. In particular, the calculated fractionation by *Desulfovibrio desulfuricans*, one of the most typical sulfate reducer, exceeded 50‰ during maintenance growth phase, when glucose was used as an electron donor without iron source for the growth. These results imply that the maintenance metabolism may play a major role for controlling the overall sulfur isotopic ratio of sulfide in nature.

On the other hand, detailed quadruple sulfur isotope analysis was conducted using drill core samples of an Ediacaran-Cambrian boundary section in South China ranging from 635 Ma to ca. 510 Ma. A newly-developed extraction method was applied to extract carbonate associated sulfate and sulfides for constructing multiple sulfur isotope chemostratigraphy. The results indicate that the sulfide $\delta^{34}\text{S}$ values mainly reflect the degree of isotope fractionation between sulfate and sulfide. We identified the two negative $\delta^{34}\text{S}_{\text{sulfide}}$ excursion when the fractionation increase, and found that the $\delta^{34}\text{S}_{\text{sulfide}}$ profile is clearly correlated with carbon and strontium isotope profile. Based on the correlation, we conclude that the observed $\delta^{34}\text{S}_{\text{sulfide}}$ fluctuation reflects increase of oceanic sulfate reservoir due to enhancement of oxidative weathering of continental materials, particularly at the time of global $\delta^{13}\text{C}_{\text{carbonate}}$ excursion known as Shuram excursion event.

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note: Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1 copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。
Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).