

グリーンランド・イスア地域の岩石から読み解く約 38 億年前の生命圏  
**Possible early Archaean biosphere interpreted from ca. 3.8 Ga Isua rocks, West Greenland**

大友 陽子<sup>1\*</sup>  
Yoko Ohtomo<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup> 日本学術振興会特別研究員  
北海道大学大学院工学研究院環境循環システム部門  
資源循環工学分野 環境地質学研究室  
〒060-8628, 北海道札幌市北区北十三条西八丁目

<sup>1</sup>Research Fellowship, Japan Society for the Promotion of Science, Laboratory of Environmental Geology,  
Division of Sustainable Resources Engineering, Faculty of engineering, Hokkaido University,  
Kita 13, Nishi 8, Kita-ku, Sapporo, Hokkaido 060-8628, Japan.

\*Correspondence author. E-mail: ohtomoy@eng.hokudai.ac.jp

**Abstract**

The suggestion that graphite in early Archaean rocks is biogenic origin had met with a degree of scepticism. Reduced carbon stable isotope values of graphite in >3.7-billion-year-old sedimentary rocks, Isua Supracrustal Belt (ISB), West Greenland, suggest that vast ecosystems of microorganisms were spread in early Archaean oceans. However, more recent studies suggest that most of graphite-bearing rocks were formed through interactions between crustal fluids and surrounding igneous rocks during later metasomatic events, thereby evoking scepticism on the compelling existence of an extensive sedimentary sequence in the ISB and on the biogenic origin of constituents. <sup>13</sup>C-depleted graphite globules, which are considered to be formed from biogenic precursors, have been reported from the well-preserved metamorphosed clastic sedimentary rocks in the ISB, however, these were found at a single locality. It therefore remains unknown whether the remnants of life at other localities in the ISB were lost during metamorphism or were originally absent. The additional discovery of clastic sedimentary rocks containing graphite may provide evidence for the preservation of organic constituents in the ISB, thus supporting the suggestion that microbes were flourished in early Archaean oceans.

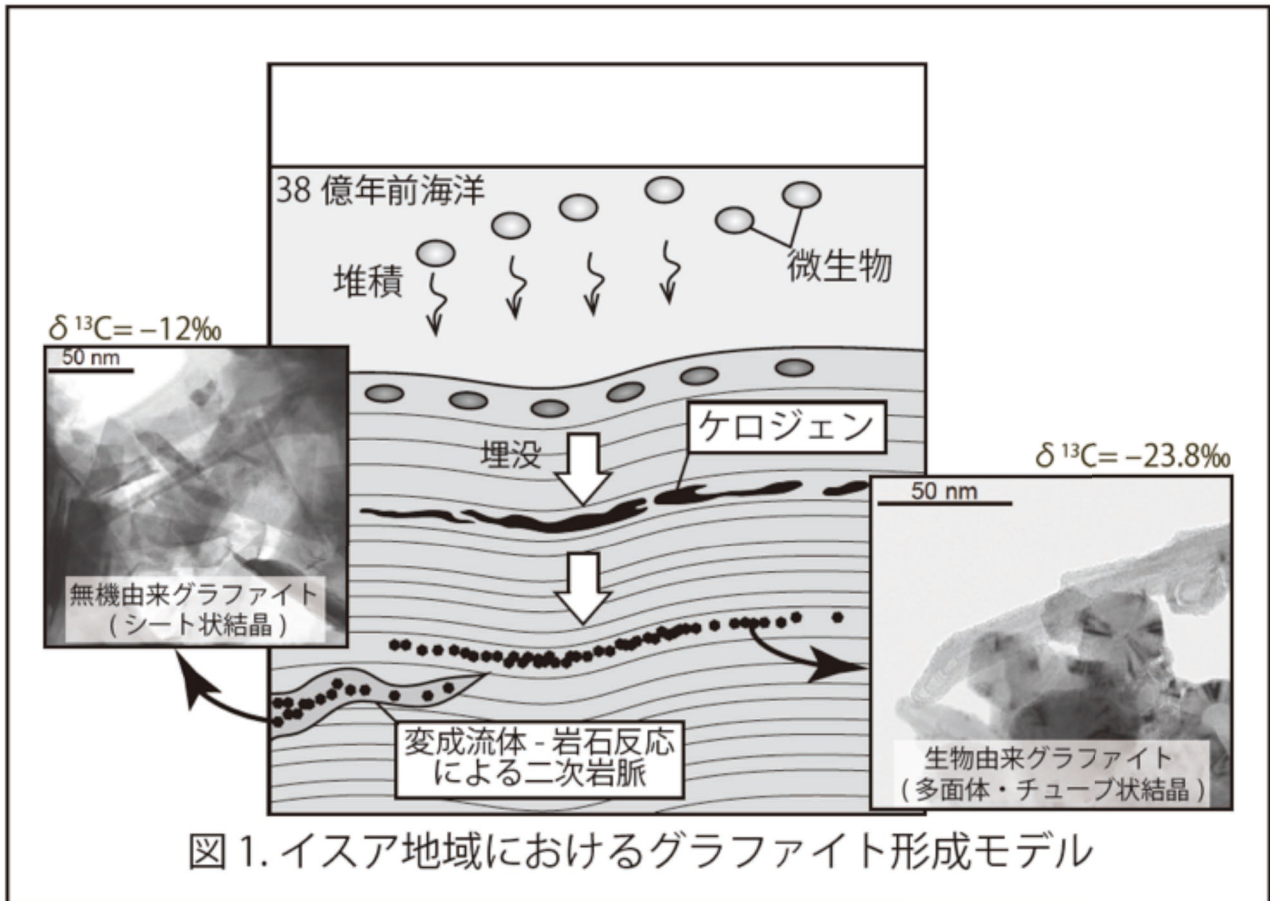
We performed a geological survey along the northwestern area of the ISB. Banded iron formations (BIFs) contain interbedded black to grey schist layers, typically 40–80 cm thick. Rare earth element patterns in the schist samples lie between that in Post Archaean Australian Shale and surrounding BIFs, suggesting that the protoliths of the schist was a mixture of clastic marine sediments and BIFs. The schist samples contain abundant graphite carbon (0.1–8.8 wt% C<sub>graphite</sub>) which indicates –23.8 to –12.5‰ (average, –17.9‰) of δ<sup>13</sup>C<sub>graphite</sub> values, ranging within values reported in previous studies. Graphite in the secondary vein sample indicates ~ –12‰ of the δ<sup>13</sup>C<sub>graphite</sub> value. Theoretical δ<sup>13</sup>C values of fluid-precipitated graphites indicate that the possible lowest δ<sup>13</sup>C values exceed –16.4‰ when Rayleigh-type isotope fractionation

operates in the fluids, suggesting  $^{13}\text{C}$ -depleted biogenic organic matter is postulated as an initial carbon source to explain the lightest carbon isotope compositions (e.g.,  $-23.8\%$ ) in this study. Scanning transmission electron microscope (STEM) and high-resolution electron microscope (HRTEM) observations showed that examined metasediment included graphitic polygonal grains and nanotubes, whereas the secondary vein sample included sheeted flake-like graphite grains and showed the absence of polygonal grains and nanotubes. These observations suggest that graphite in the examined metasediment has a different origin from the secondarily derived graphite. Distorted structures observed by STEM and HRTEM are common in pyrolysed and pressurized organic compounds, containing non-planar carbon ring compounds associated with abundant pores. Therefore, we concluded that biogenic organic matter is suggested as the precursors of the graphite in metasediment. High concentrations of  $^{13}\text{C}$ -depleted graphite in these rocks would require widespread planktonic microbial activity to support the high rate of production and sedimentary delivery of organic matter to the  $>3.7$ -billion-year-old ocean floor.

*Keywords:* 生命の起源; イスア表成岩帯; グラファイト; 縞状鉄鉱層

地球上の生命はいつ、どのような環境で誕生したのだろうか？初期生命圏の姿がどのようなであったかを知る為には、当時形成した岩石に記録された生命の痕跡や、その生息環境についての情報を読み解く必要がある。最も古い生命の痕跡は、約 38 億年前に形成された岩石が分布するグリーンランド・イスア表成岩帯で発見されている。この生命の痕跡は、変成を受けた海洋堆積物由来の岩石に含まれる、 $^{12}\text{C}$  に富むグラファイトである (Rosing et al., *Science*, 1999)。しかしながら、イスア表成岩帯の岩石から約 38 億年前の生態系や生息環境を読み取るには問題があった。それは、生物由来のグラファイトと、地殻内の無機化学反応で生成された無機由来グラファイトがこの地域に混在しており、両者の判別が難しいことにあった。1970 年代に本格的な地質調査が開始されて以降、イスア地域で次々と発見されたグラファイトは生命の痕跡と解釈されてきたが (Schidlowski et al., *Cosmochim. Acta*, 1979)、2002 年 Van Zuilen らの報告により、変成流体と苦鉄質岩の反応でもグラファイトが生成することが判明した (Van Zuilen et al., *Nature*, 2002)。その後、イスア表成岩帯で発見されてきたグラファイトのほぼ全ては、生命の痕跡といえるような地質学的・地球化学的証拠を揃えておらず、無機反応由来であると考えられた。唯一の例外は Rosing の報告例のみであった。すなわち、最古の生命の痕跡は唯一つの露頭でしか見つかっておらず、生態系や生息環境の議論に足る十分なデータが収集出来ない上、生命の痕跡の存在自体に対する疑いを招いていた。

生命の痕跡がイスア表成岩帯の他の場所にも見つければ、生物由来グラファイトを含む岩石を対象とした初期地球生命圏に関する議論が行える。その為には、成因の異なる 2 種のグラファイトを判別するより確かな方法が必要であった。従来、炭素質物質の起源推定には炭素安定同位体比測定が有効な方法とされていたが、イスア表成岩帯のグラファイトは  $\text{CO}_2$  に富む変成流体と反応して初生の同位体比を保存していない場合がある為、従来法による判別だけでは不十分であった。したがって、炭素安定同位体以外の新たな「生命の証拠」を提示するデータが必要とされていた。そこで、本研究では、グリーンランド・イスア地域における無機由来グラファイトと生物由来グラファイトの特徴の違いを対比して、更なる「最古の生命の痕跡」を発見することを本研究の目的とした。従来研究と較べて特筆すべき点は、グラファイト粒子の高解像度観察を行ったことである。無機グラファイトは  $\text{CO}_2$  に富む地殻内変成流体から沈殿したのに対して、生物由来グラファイトは、生物の



死骸という、炭素骨格を主体とした不均質な組成を持つ固体から変成を経て結晶化したと考えられる。本研究では、起源の異なる2種のグラファイトは互いに前駆物質が異なる為、結晶の概形や結晶格子も異なるという作業仮説を立てて、グラファイトの透過型電子顕微鏡観察 (STEM, HRTEM) で晶癖や格子の歪みの記載を行い、両者の違いを対比した。

まず、イスア表成岩帯北西部において地質調査を行い、500×500m 四方の詳細な地質図を作成した。採取した岩石から薄片試料を作成して、偏光顕微鏡観察、粉末X線回折及び電子線マイクロアナライザ (EPMA) 分析により造岩鉱物の同定を行った。また、粉末試料を使用して誘導結合プラズマ質量 (ICP-MS) 分析による全岩組成測定を行い、微量元素組成から原岩の同定を行った。同時に炭素含有量分析及び炭素質物質の炭素安定同位体分析を行い、炭素質物質の起源や変成流体の影響について考察した。一方で、変成流体組成を熱力学計算から見積もり、流体から沈殿した無機由来グラファイトがとりうる炭素安定同位体比を、レイリー分別を仮定したモデルで計算した。また、代表的な試料から炭素質物質を酸処理により抽出して、X線粉末回折分析及び顕微ラマン分光分析を行い、その結晶度及び経験した温度を見積もった。抽出した炭素質物質は高分解能透過電子顕微鏡 (HRTEM) 及び走査型透過電子顕微鏡 (STEM) で観察した。同様の分析を無機由来グラファイトに対しても行い、新たに発見した炭素質物質との特徴の違いを対比した。

本研究ではイスア地域北西部の地質調査により、縞状鉄鉱層中に新たな黒色片岩層を発見した。この黒色片岩層は約 250m に渡り縞状鉄鉱層の層理に平行に分布しており、海洋化学沈殿物である縞状鉄鉱層と同時期の堆積層であることが示唆された。希土類金属元素組成は Post Archaean Australian Shale と周囲の縞状鉄鉱層の間のパターンを示した。このことは、黒色片岩層が黒色頁岩のような碎屑物を含む堆積物と縞状鉄鉱層の混合物であることを示している。この黒色片岩層の炭素含有量分析を行ったところ、0.1~8.8wt%の炭素を含んでいることが解った。岩石から抽出し

た炭素質物質の粉末 X 線回折測定では、この炭素質物質がグラファイトであることが示された。同じグラファイト粉末に対して顕微ラマン分光分析を行い、ピーク強度及び面積比から変成温度を見積もったところ (Beyssac et al., 2002)、このグラファイトは  $525 \pm 50^\circ\text{C}$  の変成温度を経ていることがわかった。この温度はイスア地域が経験したプログレード変成作用の温度と合致していることから、グラファイトは周辺岩石と同じ変成履歴を辿ったものと考えられる。地殻内流体から沈殿した無機由来グラファイトにも同様の分析を行ったところ、変成温度は  $496 \pm 50^\circ\text{C}$  であり、黒色片岩中のグラファイトと大きな違いは無かった。黒色片岩中のグラファイトの炭素安定同位体値は  $-23.8 \sim -14.7\%$  の範囲で不均質な値を示したのに対して、無機由来グラファイトはほぼ均質に  $-12\%$  前後を示した。周辺岩石の造岩鉱物組成から変成流体組成を計算したところ、黒色片岩と共存する変成流体は  $\text{CO}_2$  が主体であり、この流体から沈殿するグラファイトがとりうる炭素安定同位体値は  $-16\%$  以上であった。このことは黒色片岩層中のグラファイトが示した軽い同位体値 ( $-23.8\%$ ) は、変成流体からの沈殿では説明出来ないことを示している。

STEM の観察結果から、黒色片岩中のグラファイトは数 100nm のチューブ状構造や多面体構造を持つ粒子で構成されていたのに対して、無機由来グラファイトは比較的均質なフレーク状構造を持つ粒子で構成されていた。また、HRTEM 観察では、黒色片岩中のグラファイトがオニオン構造と呼ばれる生物由来炭素質物質に特徴的な組織に似た格子の歪みを残しているのに対して、無機由来グラファイトの内部は格子欠陥が少ない様子が見られた。この構造の違いは、黒色片岩中のグラファイトの前駆物質が多様な炭素骨格を持つ生物由来有機分子を含んでいたのに対して、無機由来グラファイトは流体からの沈殿時に薄膜状結晶として形成されたことに起因するものと推定した。以上の結果から、イスア地域の生物由来グラファイトと無機由来グラファイトが異なる特徴を持つことを初めて明らかにした。図 1 はイスア地域のグラファイト形成プロセスを模式化したものである。本研究の結果は、約 38 億年前の海洋に既に微生物が繁茂しており、その生産性は炭素に富む堆積層を形成する程高かったことを示唆している。本研究で示した「生物由来有機物」の判定法は、変質の激しい太古代岩石中の生命の痕跡判別のみならず、火星等他の惑星における生命の痕跡の判別など、アストロバイオロジー分野にも広く役立つと考えられる。

## 謝辞

本研究の内容は Ohtomo et al. (2014, *Nature Geoscience*) にて出版済である。論文執筆にあたり、東北大学金属材料研究所百万ボルト電顕室の青柳英二氏には走査型透過電子顕微鏡及び高分解能透過電子顕微鏡による観察に助力頂いた。渡邊隆広博士、奈良郁子博士には東北大における炭素安定同位体分析に関して助力頂いた。また、論文化にあたり、東北大学・古川善博助教及び北海道大学・大竹翼准教授には有用なコメントを頂いた。この研究は日本学術振興会科学研究費 (17403011, 21403009) の援助を受けて行われたものである。以上の方々及び資金援助に感謝の意を表す。

## 引用文献

- Rosing, M. T. (1999)  $^{13}\text{C}$ -depleted carbon microparticles in  $>3700\text{-Ma}$  sea-floor sedimentary rocks from West Greenland. *Science*, **283**, 674–676.
- Schidlowski, M., Appel, P. W. U., Eichmann, R. and Junge, C. E. (1979) Carbon isotope geochemistry of the  $3.7 \times 10^9\text{-yr-old}$  Isua sediments, West Greenland: implications for the Archaean carbon and oxygen cycles. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **43**, 189–199.

- Van Zuilen, M.A., Lepland, A. & Arrhenius, G. (2002) Reassessing the evidence for the earliest traces of life. *Nature*, **418**, 627–630.
- Beysac, O., Goffé, B., Chopin, C. & Rouzaud, J. N. (2002) Raman spectra of carbonaceous material in metasediments: a new geothermometer. *Journal of Metamorphic Geology*, **20**, 859–871.
- Ohtomo, Y., Kakegawa, T., Ishida, A., Nagase, T. & Rosing, M. T. (2014) Evidence for biogenic graphite in early Archaean Isua metasedimentary rocks. *Nature Geoscience* **7**, 25–28.

## 日本語要旨

生命がいつ地球上に誕生したのかは科学史上の大きな問題である。西グリーンランド・イスア表成岩帯には約 38 億年前の岩石が分布しており、岩石中からグラファイトが発見されている。この地域の堆積岩中のグラファイトは  $^{13}\text{C}$  に欠乏した同位体組成を示すことから最古の生命の痕跡と考えられている。しかしながら、同地域には、変成流体から無機プロセスで沈殿したグラファイトも見つかっており、変質した岩石から生物由来グラファイトと無機由来グラファイトを見分けるのは非常に困難である。この問題の原因は、成因の異なる 2 種類のグラファイトの地質学的、地球化学的、鉱物学的特徴を詳細に対比していないことにある。本研究では、イスア表成岩帯北西部で新たに発見した黒色片岩中のグラファイトと、同地域の地殻内流体から沈殿した無機由来グラファイトの特徴の対比を行った。

発見された黒色片岩は層厚 40–80cm で、約 250m に渡って縞状鉄鉱層の層理に平行に分布しており、希土類金属元素組成から碎屑性堆積物と縞状鉄鉱層の混合物であることが示された。この黒色片岩層は 0.1–8.8wt% のグラファイトを含んでいた。炭素安定同位体分析では、黒色片岩中のグラファイトの同位体値が  $-23.8\text{‰}$ – $-14.7\text{‰}$  という不均質な値を示したのに対して、無機由来グラファイトはほぼ均質に  $-12\text{‰}$  前後を示した。熱力学計算から算出した、変成流体から沈殿するグラファイトがとりうる炭素安定同位体比は  $-16\text{‰}$  以上であった。このことは、黒色片岩層中のグラファイトが示した軽い同位体値 ( $-23.8\text{‰}$ ) は、流体からの沈殿では説明出来ないことを示している。透過型電子顕微鏡による観察の結果、黒色片岩中のグラファイトは数 100nm のチューブ状構造や多面体構造を持つ粒子で構成されていたのに対して、無機由来グラファイトは比較的均質なフレーク状構造を持つ粒子で構成されていた。これらの構造の違いは、黒色片岩中のグラファイトの前駆物質が多様な炭素骨格を持つ生物由来有機分子を含んでいたのに対して、無機由来グラファイトは流体からの沈殿時に薄膜状結晶として形成されたことに起因するものと推定した。以上の結果から、イスア地域の生物由来グラファイトと無機由来グラファイトが異なる特徴を持つことを初めて明らかにした。本研究の結果は、約 38 億年前の海洋に既に浮遊性微生物が繁茂しており、その生産性は炭素に富む堆積層を形成する程高かったことを示唆している。