

DISS. ETH NO. 25508

Topics on radiocarbon geochemistry and organic matter-mineral interactions

A thesis submitted to attain the degree of
DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZURICH
(Dr. sc. ETH Zurich)

Presented by

THOMAS MICHAEL BLATTMANN

MSc ETH in Earth Sciences, ETH Zurich
born on 10.06.1987
citizen of Wädenswil (ZH) and USA

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Timothy Eglinton

Dr. Michael Plötze

Prof. Dr. Zhifei Liu

Dr. Maarten Lupker

Prof. Dr. Richard Keil

2018

Abstract

Organic matter in northeastern South China Sea deep ocean sediments is primarily comprised of a binary mixture of inputs from ocean primary productivity and from petrogenic (rock-derived) organic carbon from eroded Taiwanese bedrock. Based on distinct aluminum-radiocarbon relationships in deep-sea suspended sediments, pedogenic (soil-derived) organic carbon initially associated with terrigenous aluminosilicates is lost and replaced by marine organic carbon during transport. Mineralogical analyses reveal that terrestrial organic carbon of pedogenic origin is stripped from smectite mineral surfaces and upon its dispersal in distal ocean settings is subsequently followed by repopulation with marine organic carbon. The observed desorptive behavior of smectite with respect to its loss of pedogenic organic carbon in the marine realm, represents a new mechanism by which terrestrial biospheric productivity is decoupled from the geological carbon sink. This implies that marine primary productivity serves as the only effective “pump” for atmospheric carbon drawdown in smectitic sediments. In contrast, petrogenic organic matter is tightly associated with mica and chlorite together with quartz and rutile – an assemblage typical for shale-derived lithoclasts – and an association that endures into the marine realm. The source terrain of this petrogenic organic matter, Taiwan, is characterized by pronounced chemical weathering of pyrite, which is oxidized to sulfuric acid. Approximately two-thirds of the dissolved ion load of the Gaoping River derives from sulfuric acid-mediated chemical weathering of silicates and carbonates. Over geological timescales, chemical weathering on Taiwan releases carbon dioxide to the atmosphere primarily due to the dissolution of carbonates by sulfuric acid. This work provides new quantitative constraints on the carbon fluxes from chemical weathering of an orogeny and reveals how the global carbon cycle is modulated by organic matter-mineral interactions.

Zusammenfassung

Organische Materie in Tiefseesedimenten aus dem nordöstlichen Südchinesischen Meer besteht hauptsächlich aus einer binären Mischung von Einträgen einerseits aus mariner Primärproduktion und andererseits aus petrogenem (Gesteinsursprung) organischen Kohlenstoff von erodiertem taiwanesischen Gesteinsuntergrund. Basierend auf ausgeprägte Aluminium-Radiokarbon Beziehungen in tiefmarinen suspendierten Sedimenten, pedogener (Bodenursprung) organischer Kohlenstoff, der ursprünglich mit terrigenen Aluminosilikaten assoziiert ist, geht verloren und wird während des Transportes durch marinen organischen Kohlenstoff ersetzt. Mineralanalysen zeigten, dass terrestrischer organischer Kohlenstoff pedogenen Ursprungs von Smektitmineraloberflächen entnommen wird und letztere bei darauf folgender Verteilung in fernegelegenen Ozeangebieten durch marinen organischen Kohlenstoff neu besetzt werden. Das beobachtete desorptive Verhalten von Smektit in Bezug auf den Verlust von pedogenem organischen Kohlenstoff im marinen Milieu, stellte einen neuen Mechanismus dar, wobei die terrestrische biosphärische Primärproduktion von der geologischen Kohlenstoffsенке entkoppelt ist. Dies bedeutet, dass marine Primärproduktion die einzige effektive «Pumpe» für atmosphärischen Kohlenstoffentzug in smektitreichen Sedimenten darstellt. In Kontrast dazu steht petrogener organischer Kohlenstoff, der eng mit Glimmer und Chlorit assoziiert ist. Zusammen mit Quarz und Rutil ist dies ein Verbund, der typisch ist für Lithoklasten aus Schiefer und ein Verbund, der im marinen Milieu weiterbesteht. Die Bezugsquelle von diesem petrogenen organischen Kohlenstoff, Taiwan, ist gekennzeichnet von ausgeprägter chemischer Verwitterung von Pyrit, welcher zu Schwefelsäure oxidiert wird. Etwa Zweidrittel der Ladung an gelösten Ionen im Gaoping Fluss stammt von Schwefelsäure ausgelöster chemischer Verwitterung von Silikaten und Karbonaten. Über geologische Zeitfenster, setzt die chemische Verwitterung in Taiwan Kohlendioxid an die Atmosphäre frei; primär durch die Auflösung von Karbonate durch Schwefelsäure. Die vorliegende Arbeit bietet neue quantitative Abschätzungen der Kohlenstoffflüsse durch die chemische Verwitterung eines Gebirges und zeigt wie der globale Kohlenstoffkreislauf durch Wechselwirkungen zwischen organischer Materie und Mineralien beeinflusst wird.