

西ジャワの鮮新統から産出する珪化木のPIXE分析

景守紀子、川井秀一、寺田和雄^{*1}、Yance Mandang^{*2}、Rashmi Srivastava^{*3}

二ツ川章二^{*4}、世良耕一郎^{*5}

京都大学生存圏研究所
611-0011 京都府宇治市五ヶ庄

^{*1} 福井県立恐竜博物館
911-8601 勝山市村岡町寺尾 51-11

^{*2} Forest Products Research Institute
Jl. Gurung Batu No. 5, Bogor 16610, INDONESIA

^{*3} Birbal Sahni Institute of Palaeobotany,
53 University Road, Lucknow 226 007, INDIA

^{*4} (社) 日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンター
020-0173 岩手郡滝沢村字留が森 348-58

^{*5} 岩手医科大学サイクロトロンセンター
020-0173 岩手郡滝沢村字留が森 348-58

1. はじめに

珪化木とは、地層中に埋没した樹幹の細胞中に水に溶けた Si が浸透し、年代の経過とともに、樹幹全体が珪酸鉱物によって置換された木材化石の一種である。木が石になるという現象は人々の好奇心を喚起し、その生成過程をめぐってこれまで多くの報告がなされている。それによると、珪化木の年代は古生代から現世におよび、包含層の岩相は砂岩、シルト岩、粘土岩、凝灰岩など変化に富んでいる。また、珪化のメカニズムとは、水に溶けた珪酸が木材組織に浸透するし、セルロースの水酸基と水素結合することであり、有機化学的な置換ではないと結論している報告が多い。

いっぽう、珪化木は一般にその木材組織が細部にわたってみごとに保存されている場合が多いので、その薄片を光学顕微鏡で観察し、記載と樹種同定をおこない、古植物学的意義を論じた報告はさらに多い。

筆者らは、2002年7月29日～8月12日に、インドネシア、ジャワ島に出かけ、Bogor の Forest Products Research Institute と共同で、第三紀鮮新世のGenteng 累層から63個の珪化木試料を採集した。Genteng 累層から、珪化木が多産することは現地では古くから知られていたが、その古植物

学的研究、地球化学的研究はほとんどなされていない。

筆者らは、樹種同定を試みた後、化学組成を調べるために、珪化木とそれに付着している堆積物および包含層について PIXE 分析をおこなったので、その結果について一部を報告する。

2. 測定方法

2.1 分析試料

分析試料はインドネシア、ジャワ島西部、Rangkabitung, Leuwiliang, Tenjo の 3 地域において Genteng 累層に埋もれている珪化木（写真 1）を地層から掘りおこし、ハンマーでこぶし大の大きさに割り、インドネシア科学技術院(LIPI)の許可を得て、生存圏研究所（旧木質科学研究所）へ持ち帰った。

採取地ではインドネシアの層序学者 Dr. Sapri Hadiwisastra (Geotechnology Research Center, Bandung)によって層準、岩相（凝灰岩、凝灰岩質砂岩・粘土）が確認された。樹種同定は薄片の顕微鏡観察にもとづき、景守、寺田、Mandang, Srivastavan がおこなった。それらの中から 13 個の試料を選び、PIXE分析試料とした。

試料調製に際して、試料の全体が灰白色ないしはベージュ色で、中心部が黒色のものについては、白色部と黒色部にわけて、また、堆積物が珪化木にしっかりと付着している場合はそれを別に取り分け、別々に試料調製をおこなった（写真 2）。

表 1 に分析した試料の採取地、試料番号、種類または分析部位、樹種が示されている。



写真 1. Genteng 累層に埋もれている珪化木



写真 2. 分析試料の部位

2.2 試料調製と測定

試料を部位ごとにハンマーで小指大に砕いた後、振動ミルで細粉化し、ふるいにかけて、100 メッシュより細かい部分をさらにメノウ乳鉢で磨りつぶし、105℃で乾燥した。乾燥試料 100 mg を秤量し、内部標準として Pd-C を 10,000 $\mu\text{g/g}$ の割合で加え、メノウ乳鉢内で均質化した。その微量をポリプロピレンバックリング膜上に載せ、一滴のコロジオンで固定し、ターゲットとした。

PIXE分析はNMCCにおいて定法により行い、スペクトル解析はSeraら^{1,2)}によって開発された

コンピュータコード SAPIX によって行われた。

表 1. 分析試料の採取地・試料番号・種類または分析部位・樹種

採取地	試料番号	種類または分析部位	樹種(科)
Genteng	GEN - 0	標準地の凝灰岩	
	GEN -02w	珪化木、白色部	フタバガキ科
	GEN-02b	珪化木、黒色部	フタバガキ科
	GEN-03b	珪化木、黒色部	フタバガキ科
	GEN-04s	付着堆積物	
	GEN- 14w	珪化木、白色部	?
	GEN- 14b	珪化木、黒色部	?
	GEN- 17b	珪化木、黒色部	?
	GEN-20s	付着堆積物	
Sepan	SEP-06w	珪化木、白色部	フタバガキ科
	SEP-06s	付着堆積物	
	SEP-10s	付着堆積物	
Pasirketug	PAS-03-04s	凝灰岩	
Gobang	GOB-04w	珪化木、白色部	?
	GOB-04b	珪化木、黒色部	?
Tegal Tengah	TEG-02w	珪化木、白色部	シクンシ科
	TEG-02b	珪化木、黒色部	シクンシ科
Tenjo	TEN-01s	付着堆積物	

3. 結果

分析の結果、珪化木から 29 元素が検出された。すなわち、Na, Mg, Al, Si, P, S, Cl, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, As, Se, Br, Rb, Sr, Y, Zr, Hg, Pb である。これらの元素の中で Si は最も高い含有率を示し、数 10% のオーダーであった。その他の元素は試料によって、あるいは試料の部位によって含有率が ppm オーダーで大きく変化していた。ここでは、珪化木を地層を構成する 1 要素として捉え、珪化木とその周りの堆積物の化学組成にどのような違いがあるのか、比較した。珪化木が埋もれていた地層は火山砕屑物が陸上に堆積し、固化したものであり、その主要元素は Si, Al, Fe, Ca, Na, K, Mg, Ti である。地層や岩石の化学組成は一般に酸化物の形で表されるので、Si を SiO_2 に、Al を Al_2O_3 に、Fe はすべて Fe_2O_3 に、Ca を CaO に、Na を Na_2O に、K を K_2O に、Mg を MgO に、Ti を TiO_2 に換算し、これらの酸化物の合計を 100% として、試料の主要化学成分組成を図 1 に示した。なお、このようにして得た数値はこれまで報告されているエネルギー分散型 X 線マイクロアナライザー (EDS 分析) による火砕流堆積物の分析値に比べ妥当なものである。

この図からわかることは、1) 珪化木の化学組成は SiO_2 が全体の 90% 以上を占め、堆積物に比べて高い値をしめしている。2) 珪化木の白色部と黒色部では主要成分の組成に大差はない。3) 珪化木の Al_2O_3 含有率は堆積物に比べ、著しく低い。4) 採取場所の違いによる珪化木の化学組成的差異は小さい。5) 原樹木の種類による化学組成的差異は少ない。

ところで、珪化木とその周りの堆積物について化学成分を分析した報告は少ない。図 2 はアリゾナ州

の有名な国立化石林公園から採取された三畳紀（およそ 2 億年前）の枝状の珪化木とその周りの粘土層について分析したデータ³⁾に基づいている。この図は、珪化木と堆積物の化学成分組成の関係について先に述べた特徴とよく一致している。なお、図中の 3 m、0 – 1 cm は珪化木と堆積物との距離である。

また、樹幹の珪化は一般に SiO_2 が水に溶け、木材の細部中にしみ込み、細胞壁成分と結合することによって進行すると考えられている⁴⁾。筆者らの結果は、堆積物を構成する主要元素のなかで量的に最も多い Si が樹木中へもっとも浸透しやすく、かつ、それがいったん細胞内腔に堆積すると、分解・溶解されず、数百万年もの間それが保持されることを示している。また、一般に、木材の細胞壁を構成するセルロースの水酸基と $\text{Si}(\text{OH})_4$ になった Si が水素結合するというメカニズムが考えられている。筆者らの試料は、火山の大爆発後、火山灰の中に埋没し、泥流のような堆積をしたことが野外観察からわかっており、堆積物中には豊富な水分があったと推定される。また、木材中への Si の浸透を左右する要因として堆積物中の酸性度、酸化還元状態が重要であると考えられるが、Genteng 層についてはこれまで地球科学的研究はなされておらず、今後の課題である。加えて、Si の浸透と同時に進行すると推定される木材主成分の分解過程も明らかにされる必要があるが、ほとんど未着手の問題である。

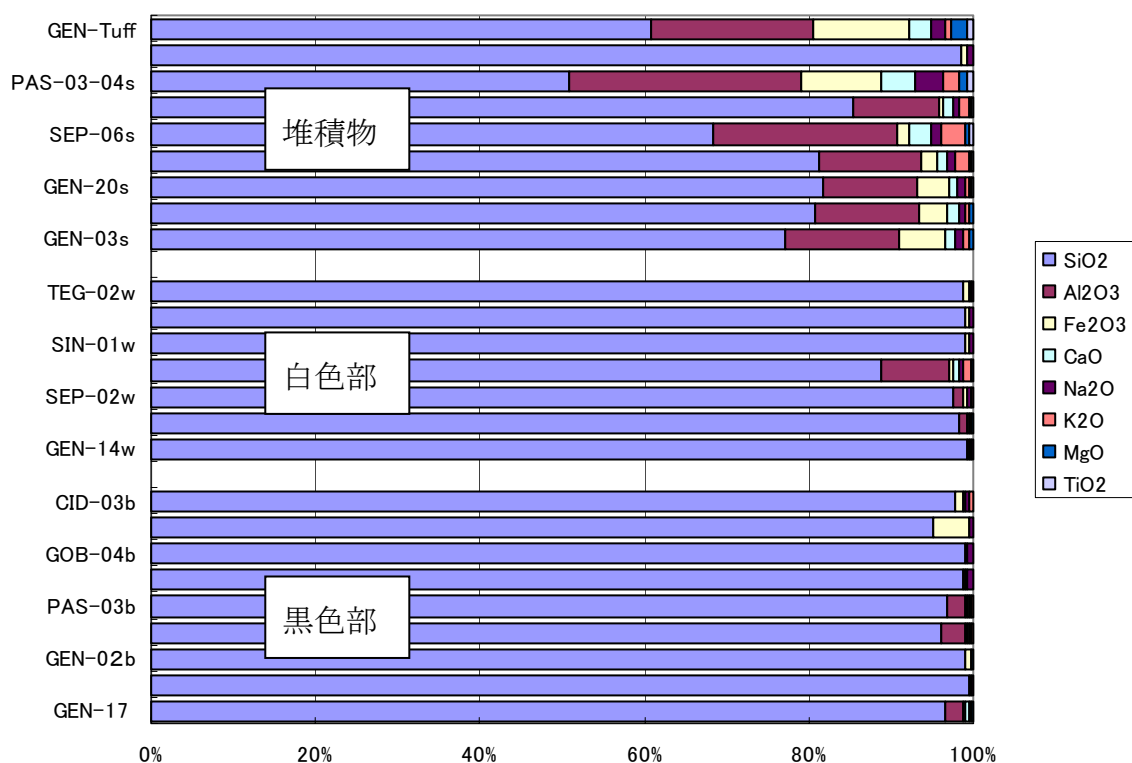


図 1. 堆積物と珪化木（白色と黒色部）の主要化学成分組成

ところで、テフラ（降下火砕堆積物、火砕流堆積物の総称）層序学において、テフラの供給源の推定や広域テフラの対比に使われる手法のひとつとして SiO_2 量と K_2O の含有量の関係をグラフ上にプロットする方法がある⁵⁾。それによるとテフラの供給源が同じである場合はグラフ上において比較的まとまった位置にプロットされる。そこで、この方法を適用して筆者らの結果を採取地域ごとに色分けして図 3 に示した。図中の 9 個のスポットは全体にばらついている。これは珪化木を採取した地層は同一層準ではない可能性があることを示唆している。しかし、図中の右下点線内の 5 点は互いに近い位置にある

ので、Genteng 層の中では同層準である可能性が高いと推定される。その他のスポットが互いに離れている原因は層準の違いだけでなく、供給源、風化の程度、堆積環境の違いなどが推定される。Genteng 層は層厚 700mに達する⁶⁾が、詳細な層序が未だに確立されていない。珪化木の地化学的側面を研究するには母岩の層序、堆積機構など基礎的研究が最重要である。

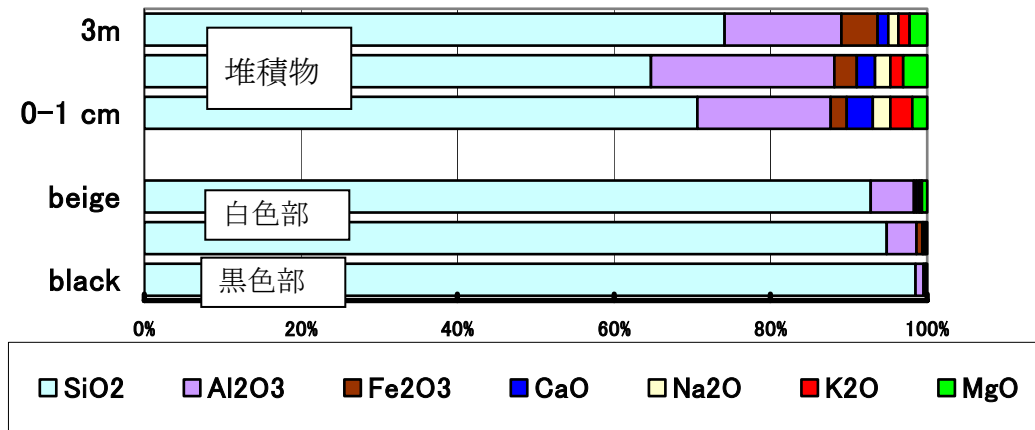


図2. アリゾナ産珪化木の化学組成 (A. C. Sigleo, 1979)

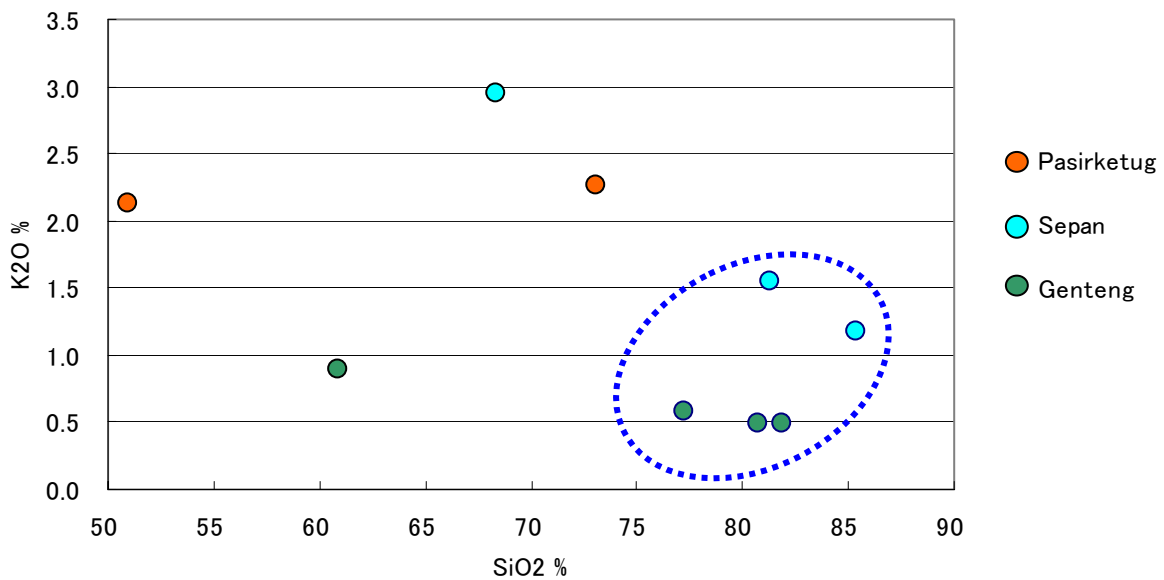


図3. 珪化木が埋もれていた堆積物の SiO₂-K₂O 図

本稿では、珪化木およびそれに付着している堆積物について、PIXE 分析をおこない、主要元素について検討した。今後はすでに分析を終えている微量元素について報告したいと考えている。

謝辞

インドネシアでの珪化木採集、搬出にあたり、Forest Products Research Institute (Bogor)の Dr. A. Fauzi Masu`ud 氏ならびにインドネシア科学技術院 (LIPI) の Dr. Bangban Subyanto 氏に多大のご協力をいただいた。また、現地ではバンドン地質技術研究センターの Dr. Sapri Hadiwisastra 氏、景守豊氏 (プール学院高等学校) にお世話になった。樹種同定にあたっては在野の研究者荒本敏彦氏から助言をいただいた。そして PIXE 分析にあたり、仁科記念サイクロトロンセンターの方々にご協力をいただいた。以上の方々に深く感謝いたします。

文献

- 1) S. Futatsugawa, S. Hatakeyama, S. Saitou and K. Sera, Present status of NMCC and sample preparation method for bio-samples, *Int. J. PIXE*, 3, No.4, 319-328 (1993).
- 2) K. Sera and S. Futatsugawa, Quantitative analysis of powdered samples composed of High-Z elements, *Int. J. PIXE*, 8, Nos.2 & 3, 185-202 (1998).
- 3) A. C. Sigleo, Geochemistry of silicified wood and associated sediments, Petrified Forest National Park, Arizona, *Chem. Geol.* 26, 151-163 (1979).
- 4) R. F. Leo and E. S. Barghoorn, Silicification of wood, *Harvard Bot. Mus. Leafl.*, Harvard Univ., 23, 1-47 (1976).
- 5) 長橋良隆、吉川周作、宮川ちひろ、内山高、井内美郎、近畿地方および八ヶ岳山麓における過去 43 万年間の広域テフラの層序と編年—EDS 分析による火山ガラス片の主要成分組成—第四紀研究、43, No.1, 15-35 (2004).
- 6) R. W. van Bemmelen, *The geology of Indonesia. I A*, The Hague (Martinus Nijhoff), 1-732 (1949).