

ベリリウム同位体による 縄文土器胎土のグルーピング 長野県川原田遺跡出土の土器について

Beryllium Isotopes Study of Middle Jomon pottery
from the Kawarada Site

坂本稔・今村峯雄

はじめに

① 試料と実験

② 結果と考察

まとめと展望

【論文要旨】

長野県川原田遺跡から出土した縄文土器 43 点について、胎土中の微量成分であるベリリウムの同位体 (^{10}Be , ^9Be) を測定し、土器型式および鉱物組成との比較を行った。

^{10}Be は大気圏上層で宇宙線の作用により作られ、降下して堆積物に取り込まれるため、その濃度は粘土層の堆積環境を示す指標とされる。一方 ^9Be は始源的な物質で、岩石学的な特徴を示す。

^{10}Be とベリリウム濃度との関係を示したグラフからは、川原田遺跡を特徴づける焼町類型土器、および勝板式土器はほとんどが類似した値を示す一方で、阿玉台式などの外来系の土器はそのグループから外れることが読み取れる。土器胎土の岩石、鉱物組成を分類した水沢氏の結果と比較すると、やはり該当数の少ない例外的な土器が特徴的なベリリウム同位体比を示している例が多い。異なる方法によるグルーピングが類似した傾向を示したことは、土器の胎土および混和材の起源について有意な束縛条件を与えうるものとして注目できる。

はじめに

本稿では、長野県川原田遺跡から出土した縄文土器について行った微量元素ベリリウム (Be) の同位体分析結果および胎土のグルーピングについて述べる。

一般に、土器の胎土に関する情報は、おもに鉱物組成や元素組成を指標として研究が行われてきた。これまで、縄文土器の胎土情報は鉱物による方法がより有効であるとされてきたが、最近では微量元素に基づく方法についても有効とする研究の事例が増加しつつある。ここで述べる、ベリリウム同位体による方法は、最近、我々歴博グループが試行しつつある新しい方法であり、通常微量元素による分析とはまた異なった情報を与えることを強調しておきたい。

天然に存在するベリリウム同位体には、おもに安定同位体である⁹Beと、半減期150万年の放射性同位体である¹⁰Beから成る。⁹Beは通常微量元素で、胎土の粘土成分にも、また混和材として加えられる岩石や鉱物片にも同様に存在する。一方、¹⁰Beは、基本的には宇宙線によって上層大気において二次的に生成し堆積物とともに取り込まれる同位体である。このため、堆積物では粒子性分が多いほど薄められ濃度が小さくなり、逆に粒子性分の流入が少ない堆積速度の小さな環境で生成したものは大きな濃度を示す。また、岩石や鉱物片には¹⁰Beはほとんど存在しないので、混和材による岩石片や鉱物片の影響をほとんど受けない。こうした特徴から⁹Beと¹⁰Beの濃度を二次元的にプロットすると、⁹Beで示される軸は岩石学的な特徴を、一方¹⁰Beで示される軸は堆積環境を示す指標として区分されることになる。

これまで、ベリリウム同位体を用いた土器胎土の研究は、南西諸島・九州の縄文前期～中期の土器について地域的な系統的な差異がみられた⁽¹⁾ほか、中国の商代～漢代の土器や原始瓷器の研究で、微量元素の多変量解析の結果とよい相関が得られる⁽²⁾など、胎土による土器産地分析の有効な方法として期待される。

本報告で得られた結果は、水沢氏が報告している鉱物組成による胎土の分類とよく相関していることが明らかとなり、異なる方法論から、土器胎土の情報が得られるケースとして注目されるものである。また⁹Beと¹⁰Beの濃度を二次元的にプロットした分布は、土器型式・様式の分類ごとに特徴があり、これら原理の異なる二つの方法を併用・検討することにより、本共同研究の目標の1つである「生産と流通」の実態を解析する手がかりが得られるものと考えられる。

①……………試料と実験

長野県御代田町川原田遺跡から出土した土器43点について、10数ミリ角の土器片をめもの製自動乳ばちで粉碎し、得られた粉末試料を500℃で2時間焼成して有機物を除いた。およそ100mgを分取し、テフロンビーカー中でフッ酸に溶解させた。少量の過塩素酸を加えて蒸発乾固することでフッ化物を除き、次いで希硝酸に溶解させた。

溶液の一部をベリリウム濃度の分析用に分取し、1%硝酸溶液中に含まれる胎土の濃度がほぼ0.1%になるように定容した。これを(株)日鐵テクノロジーに依頼し、ICP-MS(誘導結合プラ

ズマ質量分析計、セイコー電子：SPQ-9000)によるベリリウムの濃度分析を行った。定量はインジウムによる内部標準法によったが、一部の試料は既知量のベリリウムを加えた標準添加法で測定され、両者の結果から濃度を算出した。測定に伴う誤差は一律10%を見積もり、標準添加法による評価時に伝播させた。

残りの試料溶液にベリリウム担体 150 μg を添加し、蒸発乾固して希塩酸に溶解させた。アセチルアセトン数滴を加え、EDTA-水酸化ナトリウム溶液により pH を約 6.5 に調整し、四塩化炭素にベリリウムを抽出した。この操作によりベリリウムはアルミニウムなどの大部分の元素から分離される。抽出されたベリリウムは硝酸溶液に逆抽出して乾固した。これを希塩酸に溶解させたのち、アンモニア溶液で水酸化ベリリウムの沈澱を作り、遠心分離による洗浄を行った。数回繰り返した後、得られた水酸化ベリリウムを石英カップに移し、950 $^{\circ}\text{C}$ の電気炉で 30 分焼成して酸化ベリリウムとした。これを銀粉末と混合し、AMS (加速器質量分析計) のための試料ホルダに充填した。

^{10}Be の測定は東京大学原子力研究総合センターのタンデム加速器質量分析設備で行った。測定は ^{10}Be の計数が合計で 1000 を超えるよう数回繰り返された。測定された $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 比を計数によって加重平均し、標準試料で規格化した。測定値と担体分を含むベリリウムの総量から試料の ^{10}Be 濃度を算出した。

②……………結果と考察

測定結果を表 1 に示し、胎土中のベリリウム濃度 (ppm, 重量比) と ^{10}Be 濃度 ($10^6\text{atoms}/\text{mg}$, 試料 1 mg に含まれる原子数) の関係を図 1 に示す。 ^{10}Be は ^9Be の 1 億分の 1 程度しか存在しないので、横軸のベリリウム濃度は事実上 ^9Be の濃度とみなしてよい。ベリリウム濃度はほぼ 1 ppm から 3 ppm の間に分布し、 ^{10}Be 濃度は $0.7 \times 10^6\text{atoms}/\text{mg}$ を上限とする。縄文土器胎土のベリリウム同位体については、南西諸島出土土器の測定例があり、海洋性堆積物の影響を示唆する高い ^{10}Be 濃度 ($\sim 10^6$) が報告されている。川原田遺跡出土土器の ^{10}Be 濃度はこれよりも一桁低く、典型的な内陸性起源堆積物の濃度に一致する⁽³⁾。すなわち、今回測定された土器の胎土には陸性起源の粘土が用いられていることを示すものである。

第 1 図では、多くの試料がグラフの中央に分布し、数点が ^{10}Be 濃度の卓越する方向で上に外れて分布している。中央のグループが 2 つに分かれているように見えるが、第 1 表にある $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 比に有意な違いはない。粘土鉱物は堆積過程においてベリリウムを吸着するが、吸着面積が相対的に広い粒径の小さな鉱物ほどベリリウムを濃縮し、重量比による濃度は増加する。したがって、ベリリウム同位体によるグループは右上がりに形成され、その傾きは $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 比に相当する。同じグループ内での違いは粘土鉱物の粒径の違いを示している可能性は残るものの、ベリリウム同位体からは同じと見なしてよい。なお ^{10}Be が放射壊変で失われるのに対し、 ^9Be は地殻中に存在する始源的な物質なので、これらのグループを左下に延長した時に $^{10}\text{Be}=0$ の軸と交わる箇所は 0 ではなく、然るべきベリリウム濃度を示す。このグループに外部から ^{10}Be が付加された場合は、ベリリウム濃度は変わらずに ^{10}Be が真上にシフトする傾向を示す。

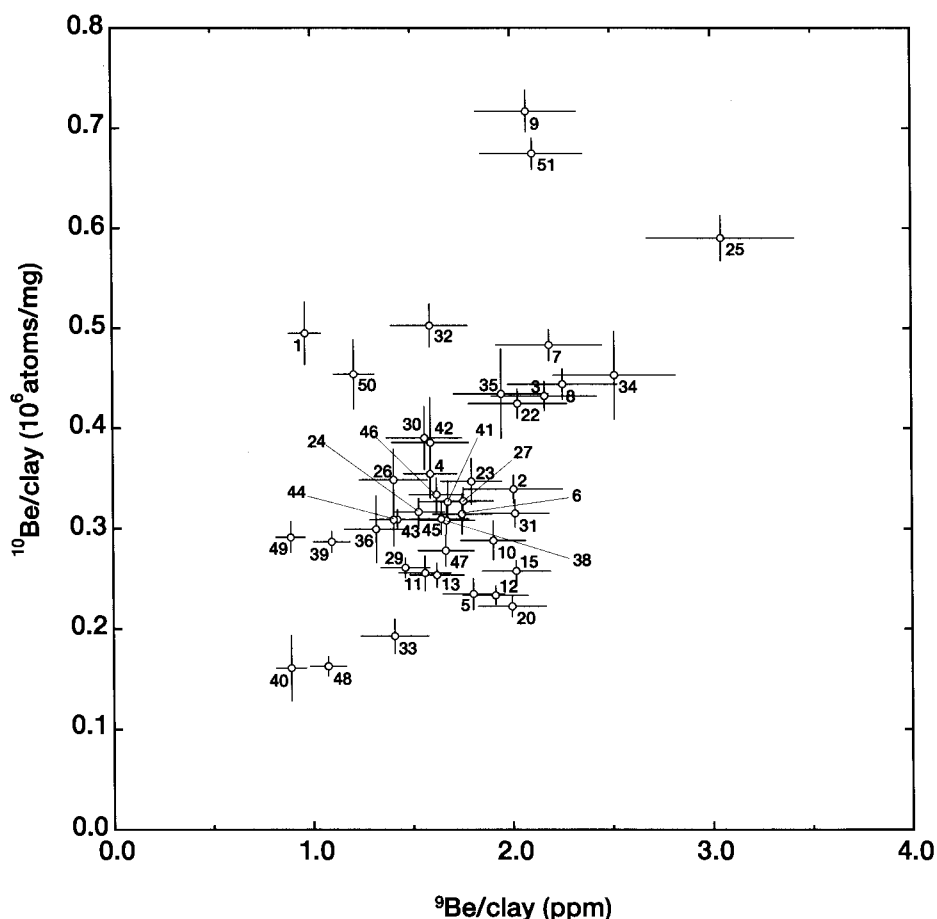
これらの土器を型式に基づいて、

第1表 川原田遺跡出土縄文土器の胎土のベリリウム同位体
番号欄の数字は第1図の番号に対応する。図欄の数字は、本報告書中の該当する試料の図番号に対応する。

番号	遺構	図	土器型式	$^{10}\text{Be}/\text{clay}$ ($10^6\text{atoms}/\text{mg}$)	$^9\text{Be}/\text{clay}$ (ppm)	$^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ (10^{-12})	分類
1	J-2	12	群馬系大木?北関東	0.49 ± 0.03	0.97 ± 0.08	7.67 ± 0.81	e. 外来系
2	J-11	24	勝坂・外来?	0.34 ± 0.01	2.01 ± 0.24	2.53 ± 0.32	b. 勝坂式
3	J-11	25	焼町	0.43 ± 0.01	2.16 ± 0.26	2.99 ± 0.38	a. 焼町類型
4	J-11	26	焼町	0.35 ± 0.02	1.59 ± 0.13	3.33 ± 0.36	a. 焼町類型
5	J-11	27	焼町	0.23 ± 0.02	1.81 ± 0.15	1.95 ± 0.21	a. 焼町類型
6	J-11	28	焼町	0.31 ± 0.02	1.75 ± 0.15	2.69 ± 0.28	a. 焼町類型
7	J-11	29	焼町	0.48 ± 0.02	2.19 ± 0.26	3.30 ± 0.41	a. 焼町類型
8	J-11	33	焼町	0.44 ± 0.02	2.25 ± 0.27	2.95 ± 0.37	a. 焼町類型
9	J-11	49	勝坂・在地?	0.72 ± 0.02	2.08 ± 0.25	5.16 ± 0.64	b. 勝坂式
10	J-11	61	勝坂	0.29 ± 0.02	1.91 ± 0.16	2.26 ± 0.24	b. 勝坂式
11	J-11	100	勝坂	0.26 ± 0.02	1.56 ± 0.13	2.45 ± 0.26	b. 勝坂式
12	J-11	101	勝坂	0.23 ± 0.01	1.92 ± 0.16	1.82 ± 0.17	b. 勝坂式
13	J-11	114	浅鉢・無文	0.25 ± 0.01	1.62 ± 0.14	2.34 ± 0.23	d. 特殊土器
15	J-11	116	浅鉢・無文	0.26 ± 0.01	2.02 ± 0.17	1.91 ± 0.18	d. 特殊土器
20	J-12	42	焼町・在地	0.22 ± 0.01	2.00 ± 0.17	1.66 ± 0.16	a. 焼町類型
22	J-12	44	勝坂・在地	0.42 ± 0.01	2.03 ± 0.25	3.13 ± 0.39	b. 勝坂式
23	J-12	47	勝坂・在地	0.35 ± 0.02	1.80 ± 0.15	2.89 ± 0.31	b. 勝坂式
24	J-12	48	焼町・在地	0.32 ± 0.01	1.53 ± 0.13	3.09 ± 0.29	a. 焼町類型
25	J-12	49	焼町・在地	0.59 ± 0.02	3.05 ± 0.37	2.90 ± 0.37	a. 焼町類型
26	J-12	58	焼町・在地	0.35 ± 0.03	1.41 ± 0.17	3.71 ± 0.55	a. 焼町類型
27	J-12	84	勝坂	0.33 ± 0.01	1.76 ± 0.15	2.79 ± 0.26	b. 勝坂式
29	J-12	161	焼町	0.26 ± 0.01	1.47 ± 0.12	2.67 ± 0.25	a. 焼町類型
30	J-24	47	在地系	0.39 ± 0.03	1.56 ± 0.19	3.74 ± 0.54	c. 在地系
31	J-24	48	在地系・古段階焼町	0.32 ± 0.01	2.02 ± 0.17	2.34 ± 0.22	c. 在地系
32	J-24	49	在地系	0.50 ± 0.02	1.59 ± 0.19	4.73 ± 0.61	c. 在地系
33	J-24	52	勝坂・在地	0.19 ± 0.02	1.41 ± 0.17	2.05 ± 0.31	b. 勝坂式
34	J-24	54	阿玉台	0.45 ± 0.04	2.51 ± 0.30	2.70 ± 0.42	e. 外来系
35	J-24	55	阿玉台	0.43 ± 0.04	1.95 ± 0.24	3.34 ± 0.53	e. 外来系
36	J-24	58	コップ型ミニチュア	0.30 ± 0.03	1.32 ± 0.16	3.40 ± 0.56	d. 特殊土器
38	J-24	73	勝坂	0.31 ± 0.01	1.67 ± 0.14	2.76 ± 0.26	b. 勝坂式
39	J-24	83	勝坂・在地	0.29 ± 0.01	1.10 ± 0.09	3.92 ± 0.36	b. 勝坂式
40	J-24	89	勝坂	0.16 ± 0.03	0.89 ± 0.07	2.71 ± 0.59	b. 勝坂式
41	J-24	122	在地系	0.33 ± 0.02	1.68 ± 0.14	2.91 ± 0.31	c. 在地系
42	J-24	125	在地系	0.39 ± 0.04	1.59 ± 0.19	3.62 ± 0.61	c. 在地系
43	J-24	128	在地系・斜行洗線文	0.31 ± 0.01	1.43 ± 0.12	3.24 ± 0.29	c. 在地系
44	J-24	130	在地系	0.31 ± 0.03	1.41 ± 0.12	3.29 ± 0.39	c. 在地系
45	J-24	145	在地系	0.31 ± 0.02	1.65 ± 0.14	2.82 ± 0.28	c. 在地系
46	J-24	152	勝坂・在地	0.33 ± 0.02	1.62 ± 0.14	3.08 ± 0.30	b. 勝坂式
47	J-24	157	勝坂・在地	0.28 ± 0.02	1.67 ± 0.14	2.49 ± 0.25	b. 勝坂式
48	J-25	6	群馬系?	0.16 ± 0.01	1.08 ± 0.09	2.27 ± 0.23	e. 外来系
49	J-50	21	在地阿玉台	0.29 ± 0.02	0.89 ± 0.07	4.90 ± 0.49	e. 外来系
50	J-51	11	在地阿玉台	0.45 ± 0.03	1.21 ± 0.10	5.61 ± 0.64	e. 外来系
51	D-77	228	越後系?焼町?	0.67 ± 0.02	2.11 ± 0.25	4.79 ± 0.59	e. 外来系

- a. 焼町類型
- b. 勝坂式
- c. 在地系 (焼町類型, 勝坂式以外のもの)
- d. 特殊土器 (在地系のなかで, 特殊な形状を有するもの)
- e. 外来系 (阿玉台式など)

の5つに分類し, それぞれが図中のどの位置に分布するかを検討した(第2図)。川原田遺跡を特徴づける焼町類型土器, および勝坂式土器はほとんどが中央のグループに属する。a. のうち数点



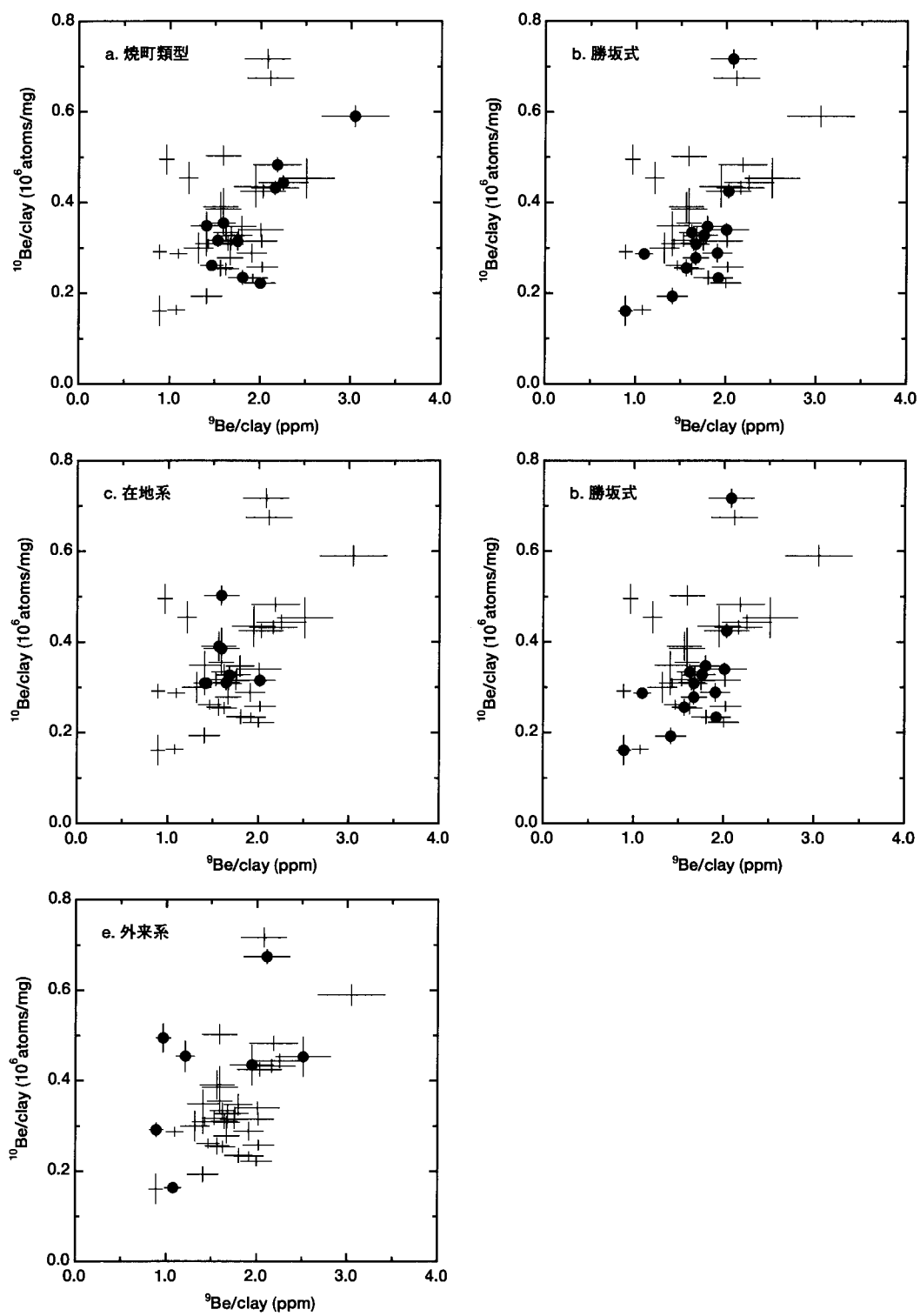
第1図 川原田遺跡出土縄文土器の胎土のベリリウム濃度 (^9Be) と ^{10}Be の関係
 図中の番号は第1表の番号欄の数字に対応する。

が右上に外れて位置しているが、上述したように $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 比からは左下のグループと有意な違いはない。一方、b. に属する9はグループから上方に外れ、明確に区別することができる。またグループの左下に外れる数点 (33, 39, 40) の $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 比はやや異なった傾向を見せ、違うグループに分類できるように思われる。

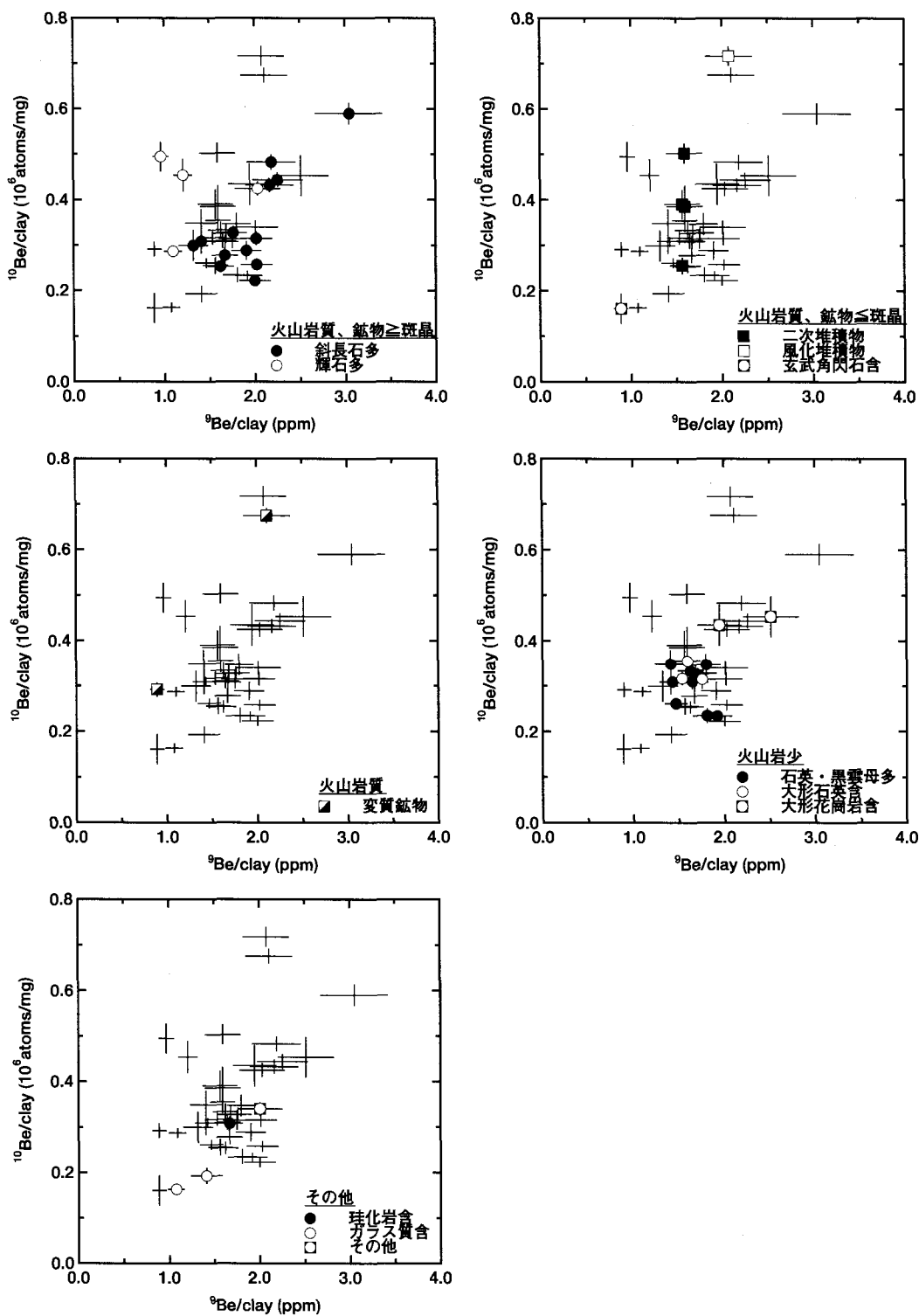
在地系と目される土器は、特殊な形状のものも含めほぼ中央のグループに含まれる。ただしc. に属する32は ^{10}Be の付加を受けているように見える。特徴的なのはe. に分類した外来系土器であり、多くが中央のグループから外れて分布している。

以上の傾向は、焼町類型、勝坂式を含む在地系の土器は堆積環境の似通った粘土が胎土に用いられていることを示唆するものである。一方、異なった堆積層からの採取が予想される外来系土器の胎土は、ベリリウム同位体により異なったグループとして区別できる可能性がある。

本稿と同じ土器について、水沢氏は胎土中の岩石、鉱物情報に基づいた分類を試みている。土器形式の場合と同様に、分類ごとの図中の位置を示した (第3図)。該当する試料数の多い群のベリ



第2図 川原田遺跡出土縄文土器の形式とベリリウム同位体の関係
分類 a. ~ e. は本文を参照。



第3図 川原田遺跡出土縄文土器の岩石、鉱物組成とベリリウム同位体の関係
 分類は本報告書中の水沢論文「岩石・鉱物からみた素地土採集領域」(P 237~265)を参照。

リウム同位体は図中の中央に位置し、一つの大きなグループを形成している。一方該当数の少ない例外的な岩石、鉍物組成を持つ試料のベリリウム同位体は、やはり特徴的な値を示している例が多い。ベリリウム同位体が粘土の起源と結び付けられるのに対し、岩石、鉍物組成は混和材の情報を包括している。今回異なる方法によるグルーピングが類似した傾向を示したことは、土器の胎土および混和材の起源について有意な束縛条件を与えうるものとして注目できる。

まとめと展望

長野県川原田遺跡出土の縄文土器 43 点の胎土のベリリウム同位体を測定した。ベリリウム濃度と ^{10}Be 濃度の関係から、焼町類型、勝坂式を含む在地系土器は 1 つのグループを形成し、他方外来系土器はグループに属さない特徴的な値を示すものが見られた。例外的な岩石、鉍物組成を持つ試料もやはりグループに属さない例が多い。土器胎土のベリリウム同位体は、材料となる粘土の起源を推定する手がかりとなる可能性がある。

今後、外来系土器にも注目し、測定対象を川原田遺跡外に広げることでベリリウム同位体によるグルーピングの精度を高めていく予定である。また岩石、鉍物情報と連係させて胎土の採取地に関する束縛条件を絞り込んでいきたい。

謝辞

本研究の ^{10}Be の測定において、東京大学原子力研究センターのタンデム加速器研究部門の松崎浩之氏ほかスタッフの方々にお世話になった。また、小林謙一、建石 徹、水沢教子の各氏には有益なご教示をいただいた。以上の方々に記して謝意を表します。

坂本 稔 (国立歴史民俗博物館情報資料研究部)
今村峯雄 (国立歴史民俗博物館情報資料研究部)

註

- (1) — 今村峯雄・坂本稔・齋藤努・西谷大, 「ベリリウム・鉛同位体による南西諸島出土縄文前期土器の産地と流通の研究」『国立歴史民俗博物館研究報告』, 77, pp.39-49, 1999 年
- (2) — 坂本 稔・今村峯雄・松崎浩之・Y. Li・T. Chen, 「ベリリウム同位体による中国出土土器・原始瓷器のグルーピング」『日本文化財科学会第 18 回大会研究発表要旨集』, pp.172-173, 2001 年
- (3) — L. Brown・I.S. Sacks・F. Tera・J. Klein・R. Middleton, 「Beryllium-10 in continental sediments」『Earth and Planetary Science Letters』, 55, pp.370-376, 1981

Beryllium Isotopes Study of Middle Jomon pottery from the Kawarada Site

SAKAMOTO Minoru and IMAMURA Mineo

We have investigated beryllium isotopes in clay materials of Middle Jomon pottery from the Kawarada site, Nagano Prefecture, Japan, and compared with their typology and mineralogical information.

It is known that sedimentary clays are enriched in ^{10}Be , an isotope of cosmic-rays interaction with atmospheric nitrogen and oxygen. Its content in clays reflects the sedimentary condition in which the clays were formed. On the other hand, ^9Be , the stable isotope of beryllium, is contained in diverse rocks. The content of ^9Be reflects the geology of the source site where the clay is originated. Thus, the pair of ^{10}Be - ^9Be provides a possible means of discriminating the provenance of the pottery from the others.

Distribution of the ^9Be and ^{10}Be contents in the Kawarada pottery samples indicates an existence of a large group, which consists of ca. 70% of the pottery investigated. It is found that almost all samples of this group are classified into 5 major and sub-major groups of the total 11 mineralogical groups given by Mizusawa in this report. It is noted that all the samples with typologically non-local origin and 5 out of 6 minor mineralogical groups given by Mizusawa are positioned outside of the main grouping of beryllium. These facts should be useful in discussing the way of pottery production such as clay sources and the possible addition of minerals, and their mutual transportation between archaeological sites in the Middle Jomon Period.