

【産地決定法と地球化学】

鉛同位体比による金属考古遺物の産地決定 地中海地域の銅インゴットと日本の例

Provenancing Metals Using Lead Isotopes:
Its Applications to the Mediterranean Area and Japan

中井俊一

- ① 鉛同位体比による産地決定の原理
- ② 鉛同位体比を用いた産地決定の適用例
- ③ 鉛同位体比を用いた産地決定への異論
- ④ 日本での鉱床鉛同位体比データベースの現状

まとめ

【論文要旨】

1960年代に Brill がその可能性を示して以来、鉛同位体比による鉛、銀、銅製品の考古遺物の産地推定が行われてきた。最近、この方法によっては産地推定は不可能だという説をとなえるグループがある [Budd 1995]。小論ではこれまでの研究報告をふまえ、主に英国で行われてきた議論を検討する。地中海周辺地域の銅、鉛鉱山の鉛同位体比は集中的に測定が行われており、豊富なデータが蓄積されている。このデータベースにより、金属器考古遺物の産地推定は正確さを増したと考えられる。

Gale ら [1997] は、青銅期時代に地中海周辺の広い地域に分布していた銅牛革型インゴットについては、鉛同位体比が非常に均質であること、同位体比がキプロス島の特定地域の鉱山と一致することをもとに、この地域から原料を得たと結論している。

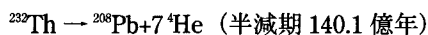
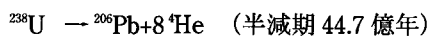
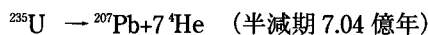
日本の鉱山についてのこれまでのデータを検討すると、日本全体で比較的均質な鉛同位体比を持つことがわかる。日本では個々の鉱山の同位体比による分離のためには、考古学的に問題となる鉱山のしぼり込み、それらからの鉱石の鉛同位体比の測定を集中して行い、データベースを蓄積することが必要である。日本と大陸との分離は一部で重複する試料もあるが全般的に言って分離が可能である。この場合も歴史的に意味を持つ鉱山を限定することにより議論はより明確になると考えられる。

①……………鉛同位体比による産地決定の原理

鉛同位体比による産地推定はこれまで鉛を主要成分として含む金属考古学試料に対して適用されてきた。具体的には青銅器、銅製品、貨幣などの産地推定が行われてきた。最初にこの方法の原理について概説する。鉛は硫黄と化合物をつくりやすい親銅性元素である。したがって地球では、硫黄を含むと考えられているコアに含まれているほか、大陸地殻などの表層部では硫黄化合物をつくり方鉛鉱(PbS)を主鉱物とする鉛鉱床として濃集している。一般の岩石中の濃度はこれより低く大陸地殻を構成する主要岩石の花崗岩で数十 ppm 程度、火山岩の玄武岩、安山岩で数 ppm 程度である。

鉛鉱床は多くの場合、火山活動などにもなっておこる熱水の活動によってできる⁽¹⁾。マグマから揮発性物質が分離し熱水となる際にマグマ中の塩素も放出される。塩素イオンが共存すると、銅、鉛、亜鉛などの金属元素は熱水中で塩化物錯体を形成し溶解度が大きくなる。したがって熱水が地殻内部を移動する際に地殻中のそれらの元素を溶かしだして濃集する。熱水が地表に達すると温度や pH など物理化学的条件が変化し、溶液中の錯体が不安定になるなどの理由で溶解度が下がり熱水中の鉛は硫黄との化合物(方鉛鉱 PbS など)を作り沈殿する。

鉛の同位体組成は鉱床の生成年代や鉱床への鉛の供給源となった物質の地球化学的性質により変化する。この性質を利用すれば鉛鉱山の同定に可能性が生まれる⁽²⁾。鉛は4個の安定同位体を持つ。鉛原子核は82個の陽子を含むが、中性子の数の差により質量数が204, 206, 207, 208の同位体がある。このうち206, 207, 208の同位体はウランやトリウムが次の放射壊変を起こして生成したものが付け加わり増加する。



ここで半減期というのは、放射性核種の数に半分になるのに要する時間である。例えば²³⁵Uの半減期は²³⁸Uのそれより短いことから、²³⁵Uはより速く壊れる。鉛の四つの同位体のうち²⁰⁴Pbは放射壊変により生成することはないので、地球が形成してから現在まで存在量は変化していない。一般に個々の同位体の絶対存在量よりも、同位体相互の比を測定するほうが容易である。したがって安定な同位体の²⁰⁴Pbとの比、²⁰⁶Pb/²⁰⁴Pb、²⁰⁷Pb/²⁰⁴Pb、²⁰⁸Pb/²⁰⁴Pbが地質学での議論に用いられている。鉛鉱床の鉛同位体比は鉱床の生成年代とともにどう変化するだろうか。大規模鉛鉱床を例にとって考えてみる。

図1.1と1.2に大規模鉛鉱床の鉛同位体比を●印で示す。大規模鉛鉱床の鉛同位体比測定の結果、以下の特徴が得られた。

- a. 同一の鉛鉱床では鉛同位体比はほとんど均一である。
- b. 鉱床の生成年代が等しい場合、鉱床の地理的な位置が離れていてもほぼ同じ同位体組成を持つ。
- c. 鉱床鉛を²⁰⁷Pb/²⁰⁴Pb - ²⁰⁶Pb/²⁰⁴Pb図上にプロットすると、一つの曲線を描くように分布する。若い鉱床ほど放射壊変性の鉛に富む。

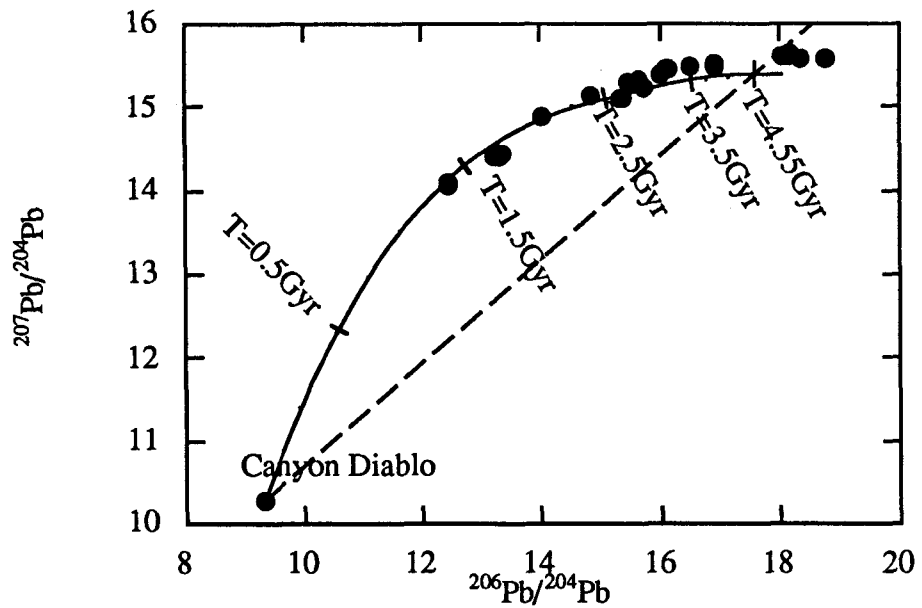


図 1.1 大規模鉛鉱床の $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ - $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 図中の曲線は仮想的な進化線。太陽系形成時に Canyon Diablo 隕鉄と等しい鉛同位体比を持つ物質が、 8.0 の μ ($^{238}\text{U}/^{204}\text{Pb}$) 値を持つと曲線上を進化する。T は太陽系形成からの時間で Gyr は 10 億年。図中の点線は太陽系の年代を持つ試料が閉鎖系で進化したときに持つ鉛同位体比の相関線でジオクロンと呼ばれる。いくつかの鉛鉱床はジオクロンより右の未来の領域の同位体比を持ち、一段階進化より複雑な歴史を持っていることがわかる。

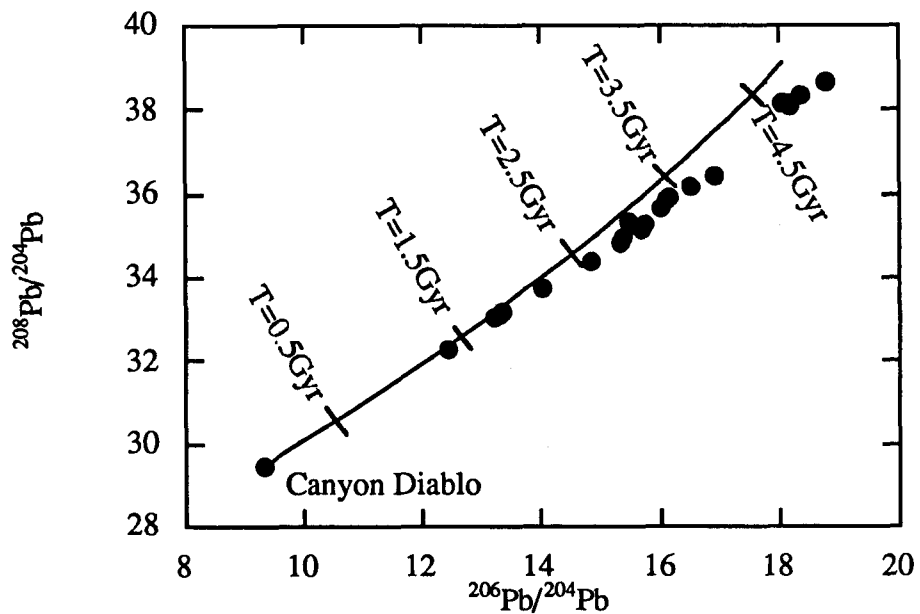


図 1.2 大規模鉛鉱床の $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ - $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 図中の曲線は仮想的な進化線。太陽系形成時に Canyon Diablo 隕鉄と等しい鉛同位体比を持つ物質が、 $\mu = 8.0$, $^{232}\text{Th}/^{204}\text{Pb} = 35.0$ を持つと曲線上を進化する。T は太陽系形成からの時間。

図 1.1 には鉛同位体比の成長曲線が示されている。この成長曲線は地球ができた時の鉛同位体比に、ウランの放射壊変起源の ^{207}Pb , ^{206}Pb が付け加わった時の鉛同位体比の変化を示している。曲線の形はウランと鉛の濃度比によって変化するが、ここに示したのは $^{238}\text{U}/^{204}\text{Pb} = 8$ の時の曲線である。

地球ができた時の鉛同位体比はウランやトリウムが含まれていない鉛を含む物質があればわかるが、地球内でそのような物質を手に入れることは難しい。そこで地球外試料を用いる。一部の未分化な隕石は地球の材料物質だと考えられている。未分化な隕石が太陽系形成直後に分化して鉄に富む相と岩石に富む相が分離したものがあるが、その鉄に富む相が隕鉄である。隕鉄は硫黄を含むため未分化な隕石のコンドライト（1 ppm 程度）より鉛濃度が高く 6 ppm 程度である。これに対して、ウランやトリウムは鉄相に入りにくい（U 濃度は 0.01ppm 以下）、隕鉄での U, Th/Pb 比は非常に小さくなり、したがって隕鉄ができた後の鉛同位体比の変化は無視でき、隕鉄は太陽系形成直後の鉛同位体比を保持していると考えられる。太陽系の始原的な鉛同位体比として Canyon Diablo 鉄中のトロイライト (FeS) の値が用いられる。地球のマントルも地球が形成した時にはこの隕鉄と等しい鉛同位体比を持っていたと考えられる。

地球でコアが形成されると、鉛はコアにはいるため残りの珪酸塩相の部分（マントル+地殻）の (U+Th)/Pb 比は増加する。そのため珪酸塩相の部分の鉛同位体比は放射壊変起源の核種が付け加わり変化する。図 1.1 の進化曲線は過去の珪酸塩相の部分の鉛同位体比の変化を表していると考えられるが、初期に $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ が増加し、現在に近づくにつれて $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 比の変化が緩やかになり、 $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 比のみ増加している特徴がある。これは前に述べたように ^{235}U の半減期が ^{238}U より短い（ $^{235}\text{U}/^{238}\text{U} = 0.0073$ ）ため、地球史の初期に ^{207}Pb を生成し、現在ではあまり残っていないためである。鉛鉱床ができた年代によって曲線上の位置が異なり、若い鉱床ほど地球形成時の点から離れていることが確認できる。なお鉛鉱物はほとんど U,Th を含まないため、いったん鉛鉱床が形成されるとその後の同位体比の変化は無視できる。

$^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ は ^{232}Th の壊変により変化する。図 1.2 は $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb} - ^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ の進化を示すが、やはり時代とともに同位体比が変化する傾向が得られる。このプロットの場合一方の親がウラン、もう一方の親核種がトリウムであるため、 $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb} - ^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 図よりは測定点のばらつきは大きくなる。

考古学では産地推定のために $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb} - ^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ の同位体プロットがよく用いられている。図 2 には中国、朝鮮半島と日本の鉛鉱床の比較を⁽³⁾⁽⁴⁾表す。このプロットでは古い鉛鉱床では $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比が大きくなる。縦軸の $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比は Th / U 比によって変化するほか、鉱床生成年代にもより、 ^{232}Th の半減期は ^{238}U よりも長い⁽³⁾ため古い鉱床ほど小さくなる。日本と中国、朝鮮半島の鉛鉱石の同位体比の差については後節で説明する。（以降、本論文では馬淵ら⁽³⁾の呼び方にならない図 2 の表示方法を A 式図、図 1.1 を B 式図と呼ぶことにする。）

以上述べた理由により鉱床の鉛はそれぞれの鉱山固有の同位体比を持つ可能性がある。これを利用して金属製品の原材料を得た鉱床を特定しようという研究がこれまで試みられてきた。

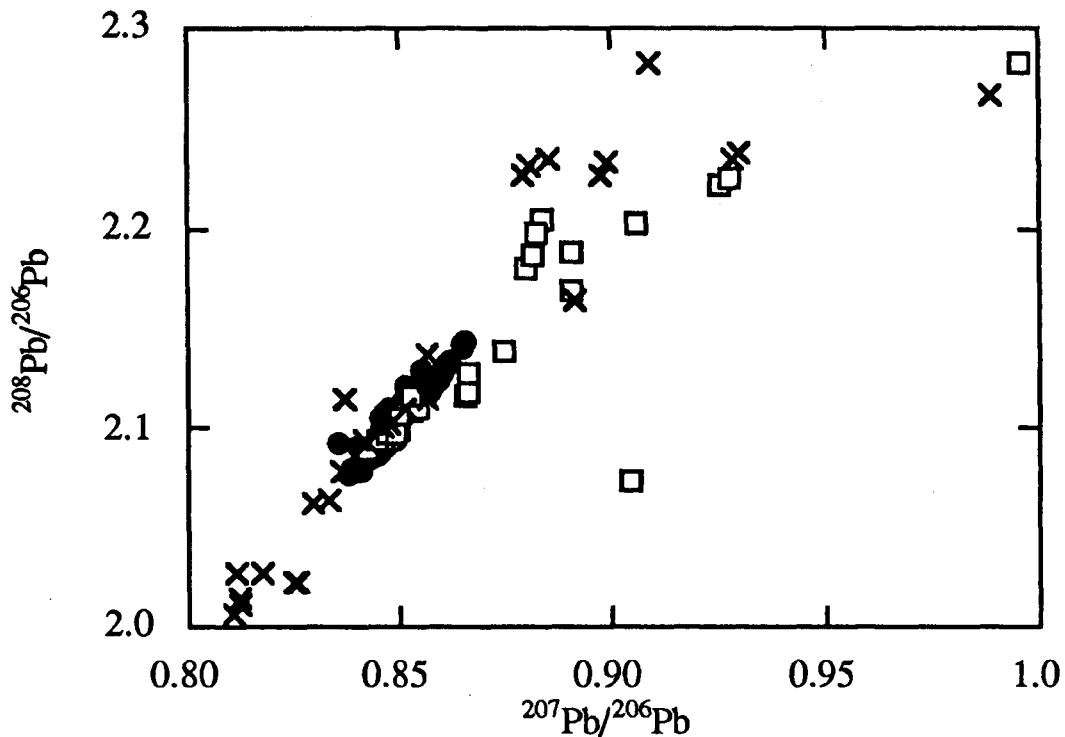


図2 日本、中国、朝鮮半島の鉛鉱床の $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ - $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ プロット 鉛同位体比データは馬淵久夫・平尾良光 [1987], 佐々木昭ら [1982] より。●は日本, □は中国, ×は韓国の鉱床からの鉱石。

②…………鉛同位体比を用いた産地決定の適用例

R. H. Brill⁽⁵⁾らがギリシャの鉛鉱山の方鉛鉱の鉛同位体比とイングランド, エジプト, トルコ等の鉱山の鉛同位体比を比較し, 鉛同位体比を考古学試料の産地推定に用いる可能性を初めて指摘した。

英国のOxford大学のグループは地中海とアナトリア地域の鉛鉱床の同位体比データの蓄積を重ね, 1992年までにギリシア, キプロス, トルコ, シナイ半島, ブルガリア, イタリアのサルジニア島, 同じくトスカナ地方, ドイツ, イギリス, スペインの鉛, 銅鉱山からの1500以上の鉱石の同位体比データベースを構築し, イラン, インドに関してもいくつかの鉱山についてデータを集めている⁽⁶⁾。これらのデータは鉛同位体比の3次元プロットに変換されるが, これまでのところ, 周辺部で重なることは見られるものの異なった二つの鉱山の鉛同位体比組成が一致する例は無かったそうである。地中海地域での鉛同位体比の変動はわずか8%以内で, そのうち多くは1.5%の範囲に収まる。したがって一つの鉱山に対し多くの鉱石の分析を行い, 鉱山ごとの同位体比の分布を把握しておくことが重要である。Oxford大学のグループは一鉱山に対し30から50個の鉱石を分析し, 分布を検討している。

Oxford大学のグループがこの方法を用いて地中海地域で発掘された銅インゴット (Copper oxide ingot) の産地推定を集中的に行い, 過去の交易の範囲などの問題に結び付け, 本法の有効性を示している⁽⁷⁾。銅インゴットは25-30kgの固まりで, 後期青銅期時代に見られる。インゴットに実用的な目的はなかったと考えられているが, 金属原材料, 権力の象徴としてあるいは一種の通

貨として用いられた可能性がある。紀元前 16 から 12 世紀に西はサルジニアから東はシリアまで、ギリシャ、アナトリア、キプロス、クレタなどの地域で見つかっている。さらに銅インゴットは当時の難破船の中からも発見されており、当時の交易品の重要な品目であったと考えられる。広域にわたる分布、難破船で発見されたこと、均一の形状からこの地域の後期青銅期時代の研究者の関心を集めてきた。インゴットの産地については多くの仮説があったが、この地域の主要銅生産地のキプロス島を挙げるものが多かった。しかし例えばサルジニア島では銅鉱床があるばかりでなく、後期青銅器時代に冶金工業が盛んに行われていたという考古学的証拠もあり生産地候補の一つに挙げられていた。またこの時代の鑄造の鑄型はシリアで唯一発見されており、近東地域の関与を考える研究者もいた。

地中海地域で発見された銅インゴットの鉛同位体比組成を図 3 に示す。クレタ島で出土した試料

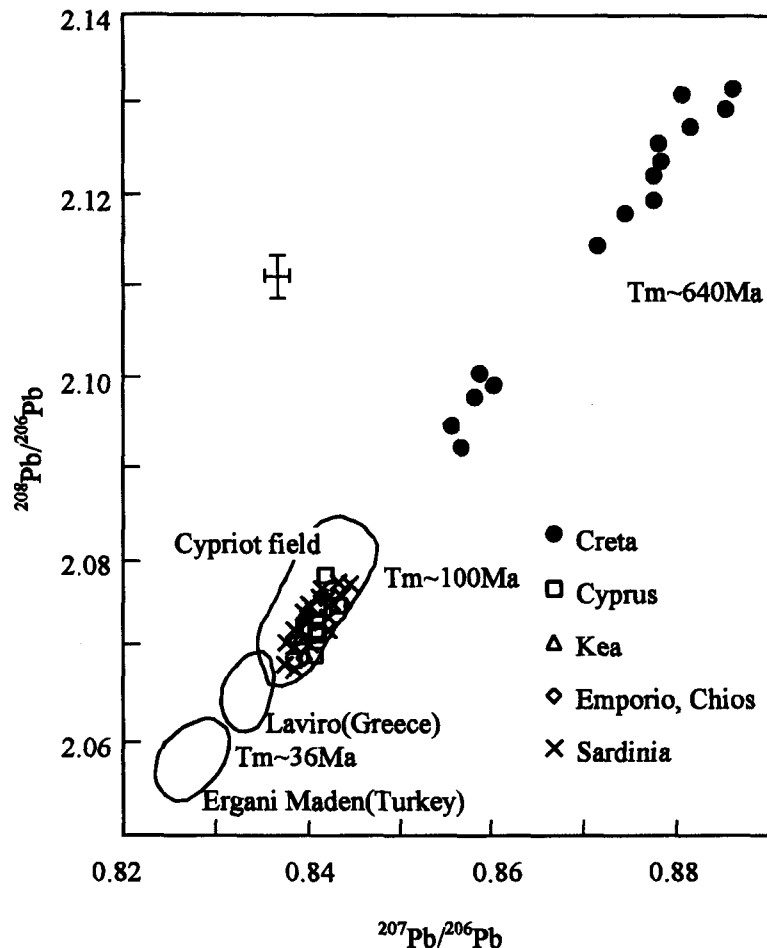


図 3 地中海全域で発見された銅インゴットの鉛同位体比組成 (A 式図) を産地ごとシンボルを変えて示した図 キプロス島, ギリシアの Laviro 鉱山, トルコの Ergani Maden 鉱山の銅鉱石の鉛同位体比の分布を楕円で示す。クレタ島の試料を除くとキプロスの鉱石の領域に含まれる。Tm は鉱床の鉛がマントルから抽出されたモデル年代を示す。Ma は 100 万年前を示す。クレタ島の試料はより古いモデル年代を持つことに注意。中東地域からの鉱石と考えられている。図中の十字記号は同位体比測定の実差。(Gale [1992] の図を改変)

を除くと鉛同位体比の組成は比較的均一である。キプロス島、ギリシアの Lavro 鉱山、トルコの Ergani Maden の鉛鉱山の鉛同位体比組成も同じ図に示す。図から銅インゴットとキプロス島鉛鉱山の同位体比組成が重なっていることがわかる。この結果から Oxford のグループは青銅期時代にはキプロス島の鉱山から銅が供給され、銅インゴットの発見された地中海地域をカバーする物流管理システムが成り立っていたと考察している。Gale らはクレタ島の試料に対してはエーゲ海周辺地域ではなくイランやアフガニスタンからの原料輸入の可能性を示唆している。

③……………鉛同位体比を用いた産地決定への異論

英国 Bradford 大学の Budd らのグループは最近、鉛同位体比を用いた産地推定に異議を唱えてい⁽⁸⁾る。ここで鉛同位体比による産地推定が成り立つために必要な条件をあげる。

- 1) 鉱山ごとあるいは地域間で異なった鉛同位体比を持ち、重複しない。
- 2) 一つの鉱山で採掘された金属原料が他の鉱山からのものと混ぜられることなしに用いられ製品化される。
- 3) 鉱石を製錬する過程で同位体比が変動しない。

彼らはこれらの鉛同位体比による産地推定が成り立つのに必要な3条件についてすべて異議をാണ്でいる。以下に各項目ごとにかねらの異議とそれに対する反論を紹介する。

- 1) 地域間で鉛同位体比が重複する。

図4に Gale ら [1997]⁽⁷⁾ 以前のデータから推定されていたキプロス島の全地域の銅鉱山からの銅鉱石に含まれる鉛同位体比組成の分布とサルジニア島の銅鉱山の一部の鉛同位体比を示す。キプロス島全体の分布領域とサルジニア島の一部領域は重なる。この図から Budd らはキプロス島の銅鉱山とサルジニア島の銅鉱山は鉛同位体比からは分離できないと結論した。これに対して Oxford のグループはより集中的な試料採取と同位体比測定を行い以下のように反論している⁽⁷⁾。

まず地質学的な背景について述べる^(1,7)。キプロス島の銅鉱山はオフィオライトとよばれる過去の海洋地殻に胚胎されている。つまり大洋の海底で出来た鉱床である。1960年代に潜航艇による深海の調査が精力的に行われ興味深い海底地形が発見された。そのうちの一つは海底に連なる大山脈である。これは中央海嶺と呼ばれている。この大山脈の中央部は谷になっているが、ここでは海洋プレートの運動により海洋底が開き、その隙間を埋める形でマントルからマグマが上昇している。中央海嶺の海洋底が開きつつある拡大軸では海底から熱水が吹き出している光景も発見された。海底にブラックスモーカーと呼ばれる煙突状の堆積物が沈殿し、その先端から熱水が湧き出ている。この熱水は海洋底の地殻に染み込み地下深部まで達した海水がマグマにより熱せられて上昇してきたものであるが、移動する際に海洋地殻中の微量元素を溶かしこみ、海底に噴出する時に温度や化学的な条件の変化のため有用金属を沈殿させ鉱床をつくる。ブラックスモーカーは沈殿物の塊であり亜鉛、鉛、銅などの資源金属が濃集されている。海洋地殻が衝突などの影響で物理的に持ち上げられ、海底にできた金属鉱床が陸上に現れたものがキプロス島の銅鉱床である。海洋プレートの運動により中央海嶺で生成した海洋底は両側に開いていくと同時に金属鉱床も移動する。新しい中央部

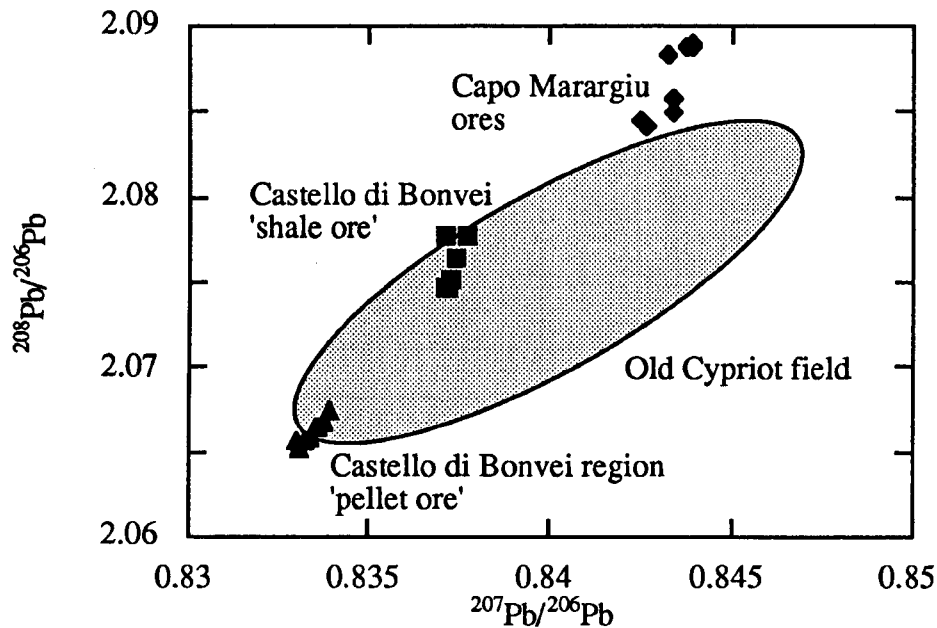


図4 キプロス島全地域（点で塗られた楕円の部分。1995年以前の同位体比データから考えられていた領域）と、サルジニア島の三地域の銅鉱山の銅鉱石中の鉛同位体比組成。サルジニア島の鉱石の一部はキプロス島の鉱石の領域と重なっているように見える。

の谷では熱水の湧出が続き新たに鉱床が形成される。こうして海洋地殻には形成年代の異なる金属鉱床の集まりができる（図5）。キプロス島では島内に多くの銅鉱床が分布しているが、これらは異なる時期の中央海嶺拡大軸で形成された鉱床がその後の造構運動で寄せ集められたものである（図6）（キプロス島の鉱床は中央海嶺の環境ではなく、日本海のような島弧の縁海の海洋底で形成されたという説もあることを付け加えておく）。図4に示したキプロス島の銅鉱床中の鉛同位体比の範囲は多くの鉱床の同位体比変動を積算したものである。Buddらが銅インゴットの起源について疑問を呈してから、Oxfordのグループはキプロス島の試料の鉛同位体比測定を集中的に行い、異なる拡大軸の鉱床毎に同位体比が異なること、各々の鉱床の同位体比変動は比較的に小さいことを示した（図7）。

キプロス島の鉱山に対して、サルジニア島の銅鉱山は地質学的にはミシシッピヴァレイ型鉱床とよばれ鉛同位体比が不均質で放射壊変性の鉛に富む鉱床である。図4に示した鉱床は $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ の値が最も小さい端成分の同位体比を持つ三つの鉱山であり、他の鉱山の鉛同位体比は図8のように大きな分布を持つ。

図9にはBuddらが鉛同位体比からは区別ができないと主張したサルジニア島の3鉱床の同位体比とキプロス島のApliki鉱山の同位体比を同時に示している。この図からサルジニア島の3鉱床とキプロス島の銅鉱床は分離可能であることが分かる。またこの図から銅インゴットの鉛同位体比はApliki鉱山のそれと重なっていることが分かり、この地域の鉱山から原料を得ていたと推定できる。

2) 鉛同位体比による産地推定が可能となるためには、一つの金属製品は一つの鉱山で採掘された鉱石で作られるという条件が必要である。Buddらはこの仮定にも異議を唱えている⁽⁸⁾。彼らは複

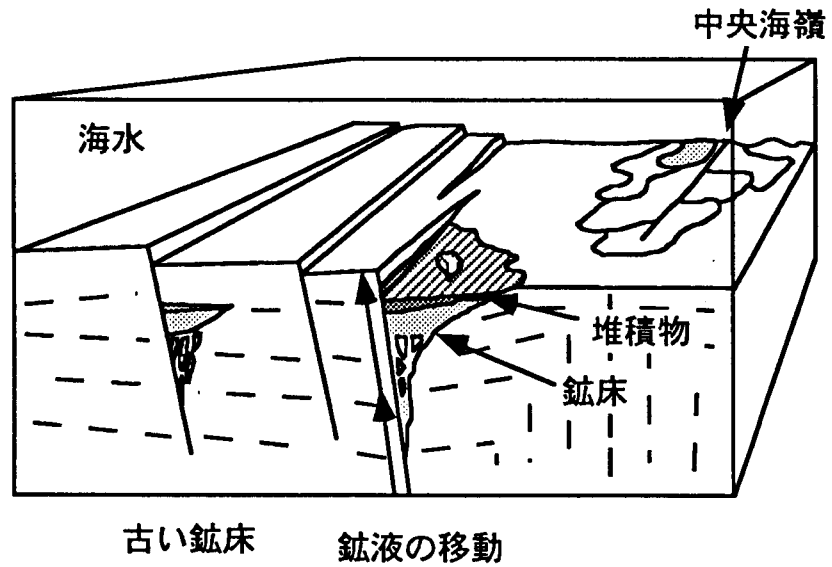


図5 中央海嶺の熱水鉱床の模式図 海洋底から染み込んだ海水はマグマで熱せられ金属元素を溶かし込み鉱液となり上昇する。海洋底付近で物理的、化学的環境の変化により鉱床を沈殿する。中央海嶺での海洋底の拡大により鉱床は移動する。左の古い鉱床は堆積物や火成岩に覆われている。

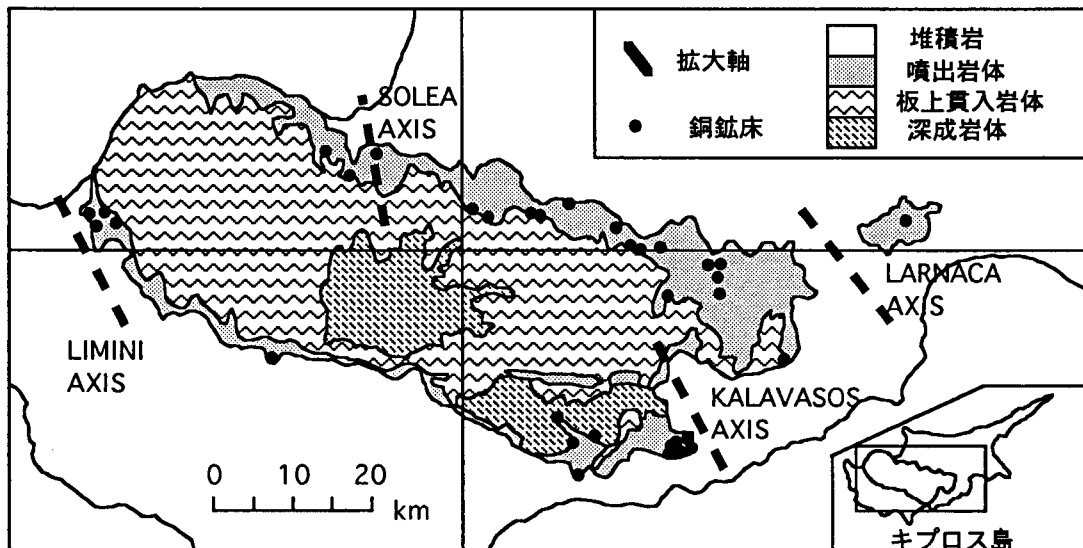


図6 キプロス島の銅鉱山の分布 図中の4つの軸は過去の海洋底拡大軸の位置を示す。Galeら [1997] の図2より。

数の鉱山で採掘した鉱石を混合して銅インゴットを作った、あるいは銅製品を再溶融して新たに銅インゴットを作った可能性を挙げ、鉛同位体比による産地推定に疑問を呈している。しかしもし銅インゴットが異なる地域の鉱山からの鉱石の混合物だとすると、混合物の鉛同位体比がキプロス島の Apiliki 鉱山と一致し、しかも鉛同位体比が比較的均質なことを説明するのは困難である。銅インゴットを精錬する際に毎回異なる地域からの鉱石を一定の割合で混合することが必要になり、これは現実的ではない。

3) 同位体比分別の可能性 鉛同位体比による産地推定のためには銅鉱石を精錬する時に鉛同位体比が変化しないことが必要である。この仮定についても Budd⁽⁸⁾らは疑問を表している。鉱石の焙焼(ばいしょう)(鉱石を溶解しない程度の温度で処理する精錬法)や溶融精錬の際に、揮発性の高い鉛は一部が蒸発し、軽い同位体と重い同位体の分別が起こり、金属製品の鉛同位体比は鉱石のそれとは一致しない理論的可能性を彼らはあげている。しかし Budd⁽¹⁰⁾らでは、実際に焙焼実験を行って鉛同位体比に変化が起らなかったことを認めている。

以上述べたように銅インゴットに関しては Oxford グループの主張の方に有利な点が多いようである。

④……………日本での鉱床鉛同位体比データベースの現状

以上の節で青銅期時代の地中海地方における銅インゴットの産地推定に関する論争について紹介

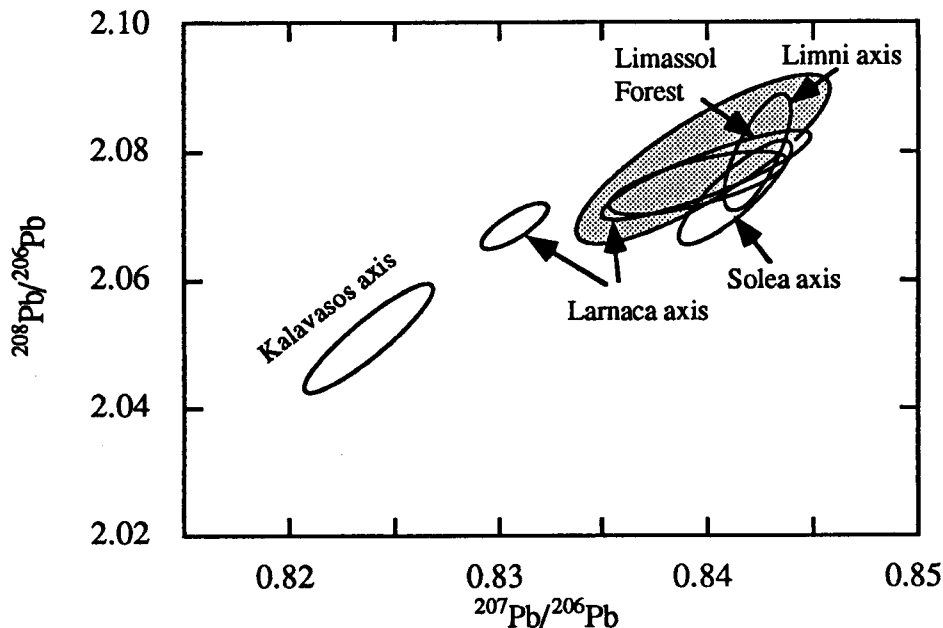


図7 キプロス島の銅鉱石の鉛同位体比を拡大軸毎に分類した図 個々の拡大軸に属する銅鉱山は比較的狭い同位体比の範囲を持つことが分かる。点で塗られた領域は Gale ら [1997] 以前のデータによるキプロス島銅鉱山の鉛同位体比の変動領域。実際の銅鉱石の鉛同位体比分布は以前に推定されていた領域とは必ずしも一致しない。

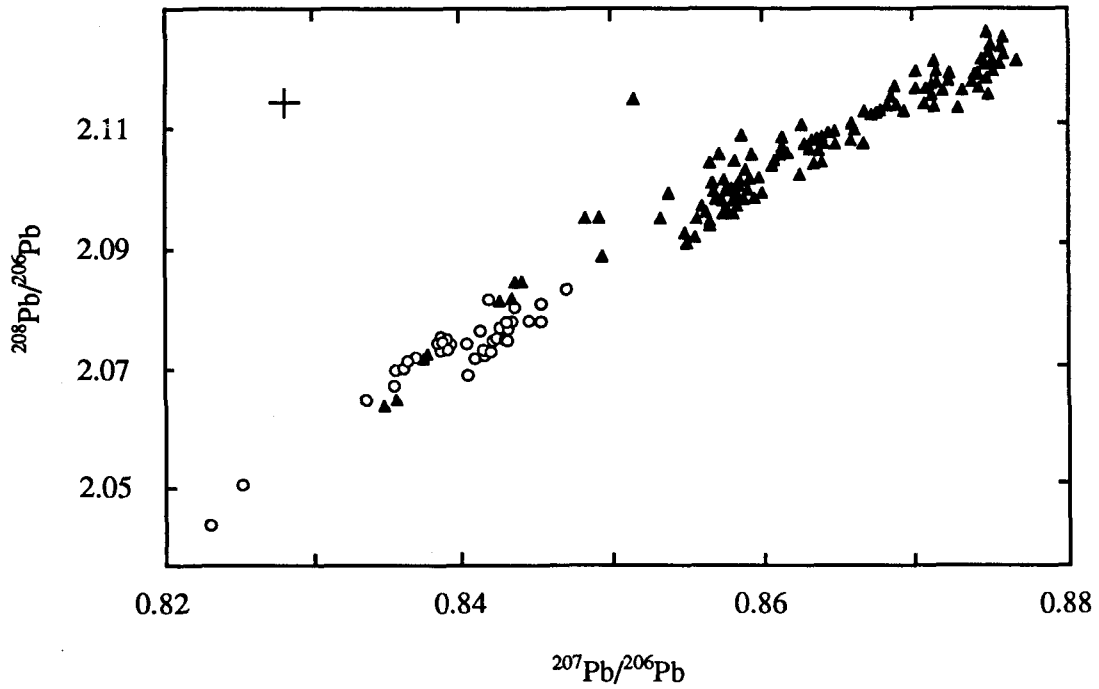


図8 キプロス島全地域（1995年以前の同位体比データ）、サルジニア島全域の銅鉱山の銅鉱石中の鉛同位体比組成。データはBudd [1995]より。丸はキプロスの試料、三角はサルジニア島の試料。サルジニア島の鉱石の大部分はキプロス島よりも高い $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ を持つ。左上の十字は測定誤差の大きさ。

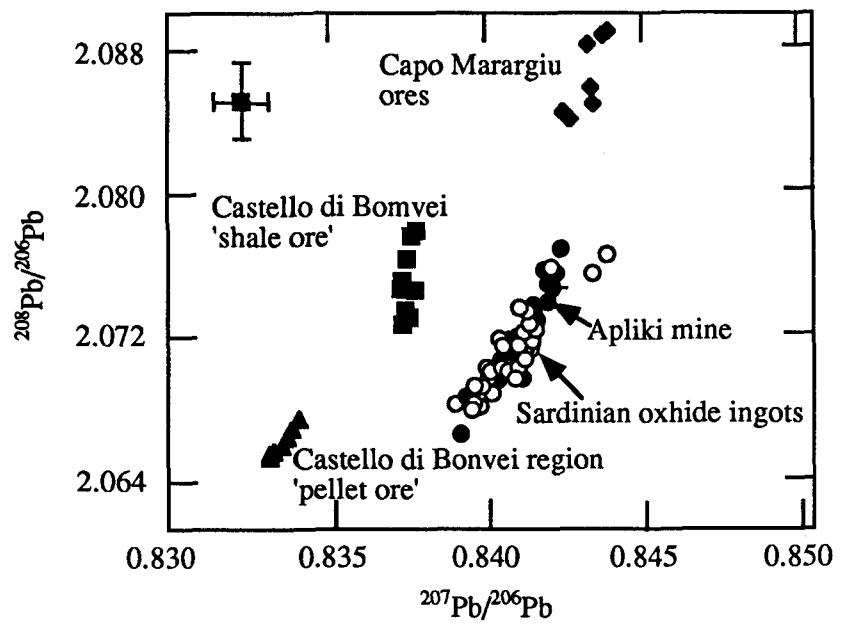


図9 キプロス島のSolea axis地域のApliki鉱山とサルジニア島の三地域の銅鉱石の鉛同位体比の比較。サルジニア出土の銅インゴットの鉛同位体比も同時に示す。銅インゴットはSolea地域からの鉱石の分布範囲と一致するがサルジニアの鉱山の鉱石とは異なる同位体比を示す。

したが、日本での適用への問題点を考えてみたい。

日本での考古学遺物の産地推定は日本のどの鉱山の鉱石を使ったかというより、日本産かアジア大陸産かという区分でとらえられているのが現状である。日本の鉱床とアジア大陸の鉱床の鉛同位体比に差を生む原因は主に地殻ができた年代の差による。図10, 11.1, 11.2に中国, 朝鮮の鉛鉱石と日本のその鉛同位体比のA式図, B式図 ($^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb} - ^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$, $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb} - ^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$) による比較を示す。まずA式図では日本の鉱石は狭い範囲に集中しているが、中国, 朝鮮半島の試料は分布領域が広い。中国北部, 朝鮮半島北部の鉱石は $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$, $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ とも大きい。中国南部, 朝鮮半島南部の鉱石は $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$, $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ ともに日本のものより小さい値をもつ。日本の鉱石の領域を拡大したものが図12, 13.1, 13.2である。図12のA式図で日本と中国, 朝鮮半島の鉱石には重なるものも多い。ちなみに日本の鉱石の同位体比分布範囲は前章の地中海地方の銅インゴットとは重ならない。

B式図でも日本の鉱床の鉛同位体比は比較的狭い領域に集中している。一方中国, 朝鮮の鉱床の同位体比は変動が大きい。中国南部の鉱石は $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$, $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ とも大きい, 北部の鉱石では小さい。朝鮮半島でも南北の差が大きく南部のものは $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ が大きくまた変動も大きい。北部のものは南部より $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ が小さく, 日本や中国北部の鉱石に比べて同じ $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ に対して $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ が大きい。

この鉛同位体比の分布パターンは以下のように説明できる。先に原理の項で説明したように, 古い時代 (例えば10億年以前) にできた鉱床は $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$, $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 比とも小さくなることが予想される。中国北部, 朝鮮半島北部は古い大陸地域であり, 一部の例外を除き新しい火成活動が少ない。これを反映して鉱石は低い鉛同位体比を持つと考えられる。中国南部, 朝鮮半島南部, 日本で

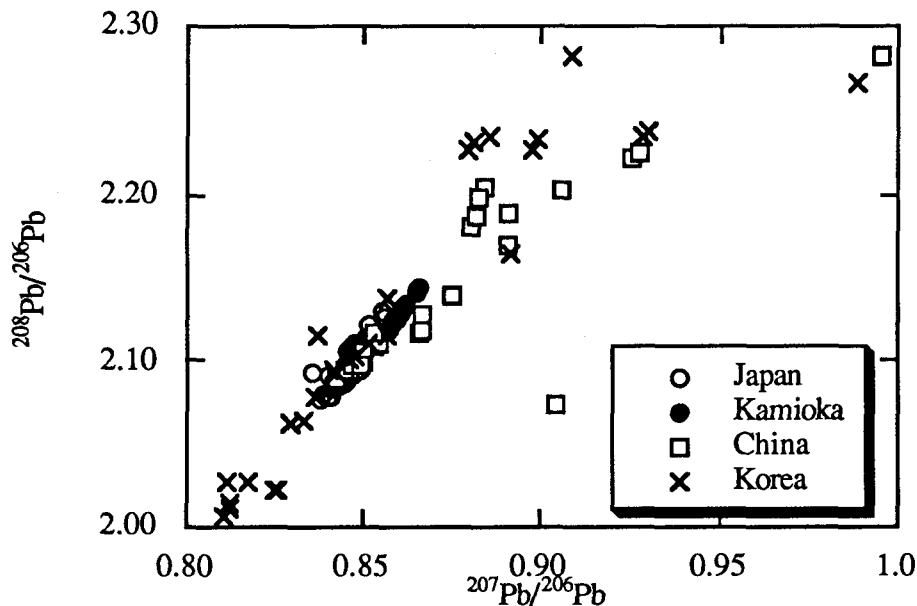


図10 中国・朝鮮の鉛鉱石と日本の鉱石の鉛同位体比の比較 (A式図) 神岡鉱山以外の日本の鉱山の鉱石を○で, 神岡鉱山の鉱石を●で, 中国の鉱石を□で, 韓国の鉱石を×で示す。鉛同位体比データは馬淵久夫・平尾良光 [1987], 佐々木昭ら [1982] より。

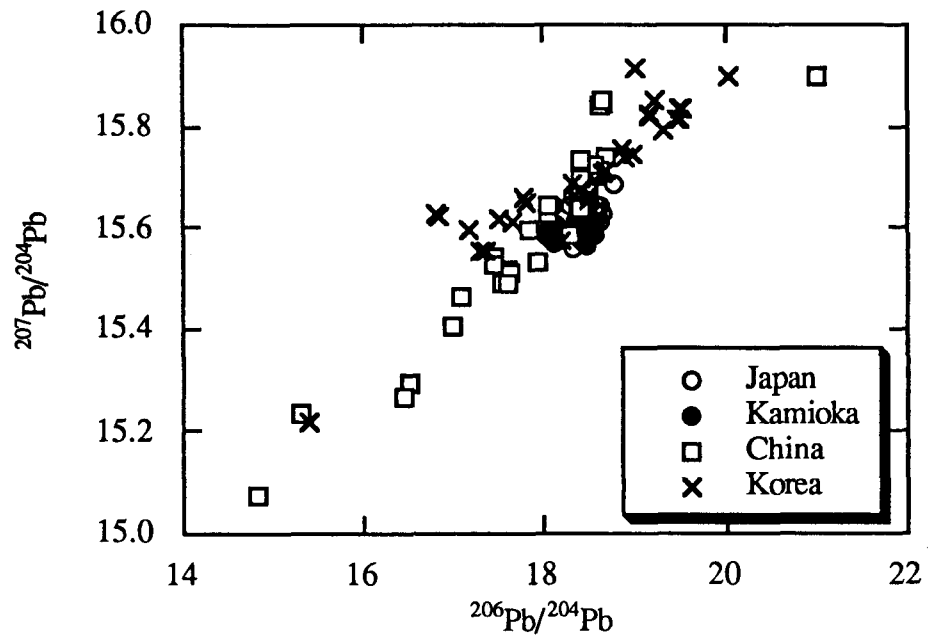
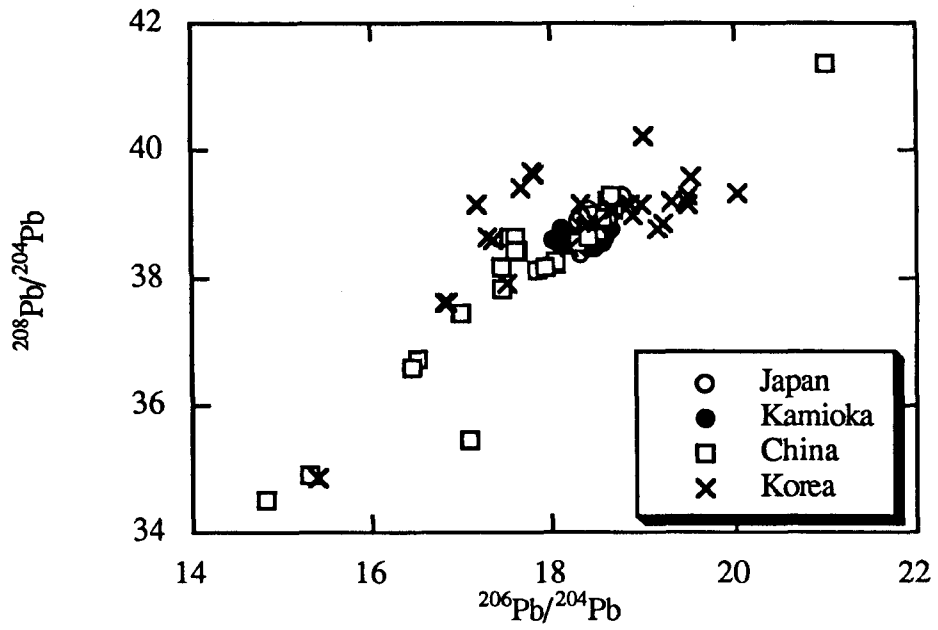


図 11.1(上) 図 11.2(下) 中国・朝鮮の鉛鉱石と日本の鉱石の鉛同位体比の比較 (B式図)
記号は図 10 と同じ。

はこの二地域よりも新しい数億年より若い鉱床が多い。そのため鉱石は $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$, $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ の成長により、上記二地域よりも高い値を持つ。B式図の日本の鉱石の分布範囲を拡大した図13.1, 13.2を見ると、日本の鉛鉱石は一部中国南部や朝鮮半島南部の鉱石と重なるものがあるが、この領域では同じ $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 比に対し、 $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$, $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 比が小さくなる試料が多いことがわかる。A式図の表示よりも日本と中国、朝鮮との分離は良好である。

日本の鉱床のなかで岐阜県の神岡鉱山の鉱石は大陸に近い鉛同位体比を持ち産地推定の際に問題になると指摘されてきた。図13.1, 13.2で神岡鉱山の同位体比が他の日本の鉱山とは異なる事が明らかである。神岡鉱山はスカルン鉱床と呼ばれるタイプの鉱床であり、これは花崗岩マグマが地殻に貫入した時にマグマが放出した熱水が地殻中の金属元素を濃集してきたものである。神岡鉱山の周辺の地殻は日本で最も古い領域の一つでありこのため他の鉱山より低い $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 比を持つと考えられる。しかしこの図から見るかぎり、他の日本の鉱山と比較して大陸の鉱山との分離が特に困難であるとはいえない。今回の比較に用いた大陸の鉱山のうち全てが考古学的に意味を持つのかは筆者は明るくない。このような検討を加えることにより、大陸と日本の判定はより可能性が高くなるものと思われる。

まとめ

本小論では鉛同位体比による産地推定についての最近の主に英国での議論を紹介した。研究対象となる地中海周辺地域の銅、鉛鉱山の鉛同位体比は集中的に測定が行われており、豊富なデータが蓄積されている。このデータベースを利用することにより、産地推定が可能である。本小論で紹介

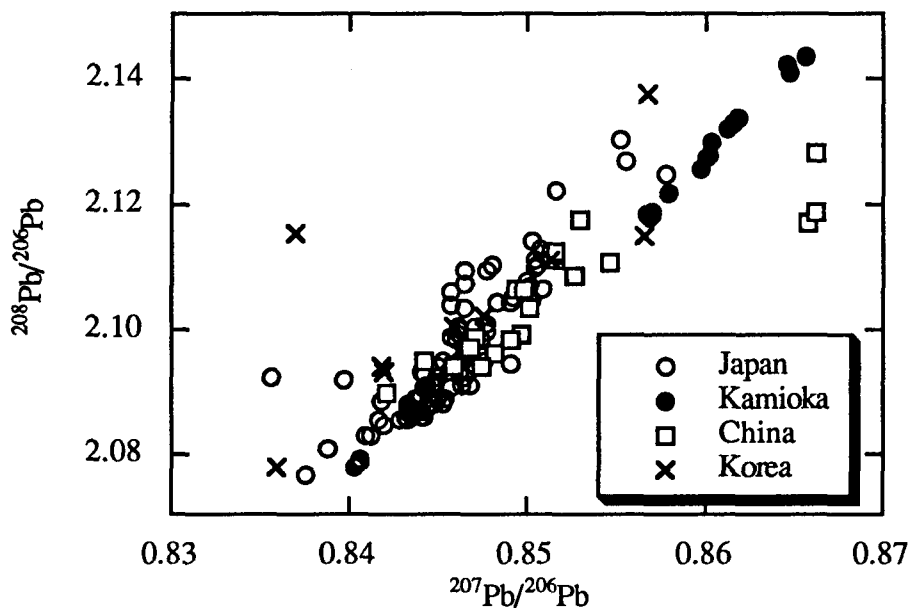


図12 中国・朝鮮の鉛鉱石と日本の鉱石の鉛同位体比の比較 (A式図)
図10の日本の鉱床の領域を拡大したもの。

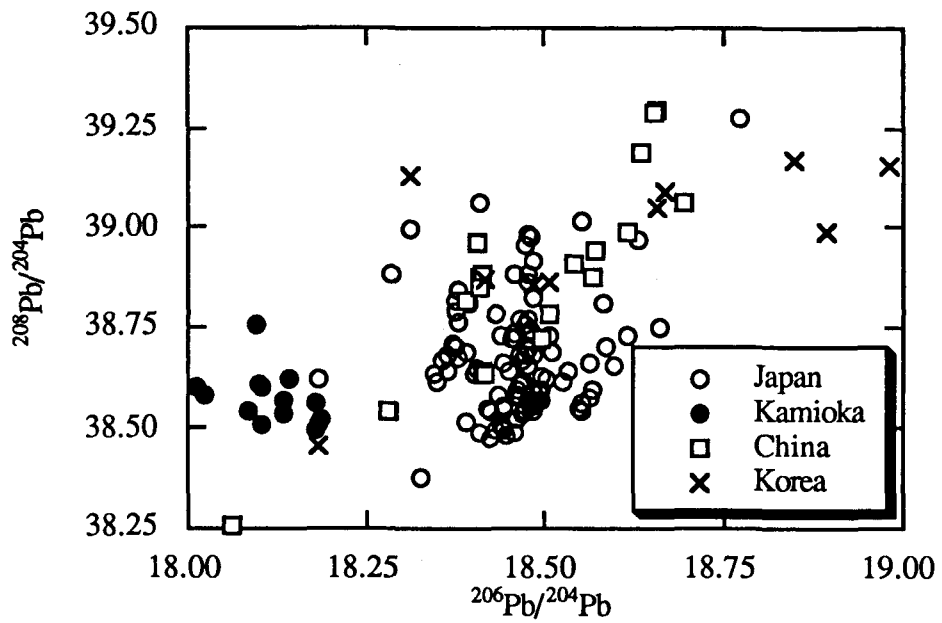
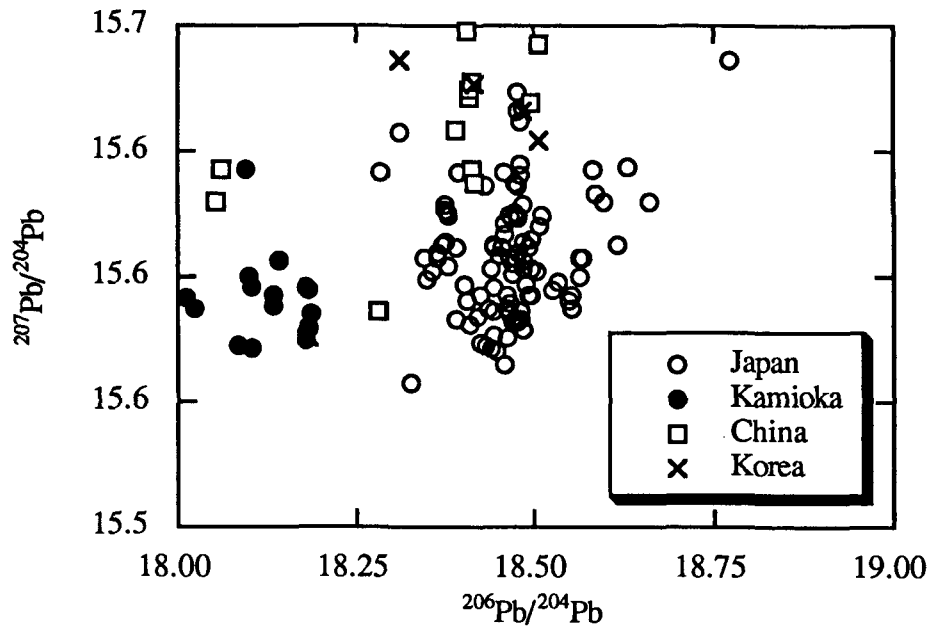


図 13.1 (上) 13.2 (下) 中国・朝鮮の鉛鉱石と日本の鉱石の鉛同位体比の比較 (B式図)
 図 11.1・図 11.2 の日本の鉱床の領域を拡大したもの。

した銅インゴットについては、鉛同位体比が非常に均質であること、同位体比がキプロス島の特定地域の鉱山と一致することからみて、産地の推定が可能である。複数の鉱山からの鉱石の混合では、測定された均質な同位体比を説明するのは困難である。

日本の鉱山についてのこれまでのデータを検討すると日本全体で比較的均質な鉛同位体比を持つことがわかる。日本では個々の鉱山の同位体比による分離のためには、考古学的に問題となる鉱山のしほり込み、それらからの鉱石の鉛同位体比の測定を集中して行い、データベースを蓄積することが必要である。その点でこの共同研究での齋藤らの開発中の鉛同位体比の迅速分析法が期待される。日本と大陸との分離は一部で重複する試料もあるが全般的に言って分離が可能である。この場合も歴史的に意味を持つ鉱山を限定することにより議論はより明確になる。

註

- (1)——飯山敏道, 鉱床学概論, 1989, 東京大学出版会, pp.196.
- (2)——G. Faure, Principles of isotope geology, 2nd ed., 1986, John Wiley & Sons, Inc., pp. 589.
- (3)——馬淵久夫・平尾良光, 1987, 東アジア鉛鉱石の鉛同位体比, 考古学雑誌, 第73巻.
- (4)——佐々木昭, 佐藤和郎, G.L. カミング, 1982, 日本列島の鉱床鉛同位体比, 鉱山地質, vol. 32, pp. 457-474.
- (5)——R. H. Brill and J. M. Wampler, 1967, Isotope studies of ancient lead, American Journal of Archaeology, vol. 71, pp. 63-77.
- (6)——Z. A. Stos-Gale, 1992, Isotope archaeology: reading the past in metals, minerals, and bone, Endeavour, vol. 16, pp. 85-90.
- (7)——Z. A. Stos-Gale, G. Malotis, N. H. Gale and N. Annetts, 1997, Lead isotope characteristics of the Cyprus copper ore deposits applied to provenance studies of copper oxhide ingots, Archaeometry, vol. 39, pp. 83-123.
- (8)——P. Budd, A. M. Pollard, B. Scaife and R. G. Thomas, 1995, Oxhide ingots, recycling and the Mediterranean metals trade, Journal of Mediterranean Archaeology, vol. 8, pp. 1-32.
- (9)——都城秋穂, 1979, 造山帯に関連した岩石学的問題, 岩波講座地球科学第12巻, 第3章.
- (10)——P. Budd, A. M. Pollard, B. Scaife and R. G. Thomas, 1995, The possible fractionation of lead isotopes in ancient metallurgical processes, Archaeometry, vol. 37, pp. 143-150.

(東京大学地震研究所, 国立歴史民俗博物館共同研究員)

(1999年7月6日 審査終了受理)

Provenancing Metals Using Lead Isotopes: Its Applications to the Mediterranean Area and Japan

NAKAI Shun'ichi

Lead isotopes have been used as a tracer for provenancing metals since Brill first applied this method in 1960s. Recently, Budd et al. (1995) proposed doubts on the validity of this approach. This section reviews the discussions on the provenance of Late Bronze Age oxhide ingots excavated around the Mediterranean. In addition, the author will consider how accurate provenance studies are possible for Japanese archaeological metals.

Since large data base of lead isotopic compositions for copper and lead ores around the Mediterranean were accumulated, it seems to be possible to put accurate geochemical constraints on the provenance of the ingots. Gale et al. (1997) concluded that the ingots were made of copper consistent with only one mining region in north Cyprus.

As for Japan, ore lead shows rather limited isotopic variations judging from data so far reported. Thus, it may be more difficult to identify individual ores. However available data are still limited and further accumulation of isotopic data is required to clarify if lead isotopes can distinguish individual ores. Separation of Japanese ores from Asian continental ores is possible except a few cases. It is important to accumulate lead isotopic database for Japanese archaeologically important ores to achieve the two purposes.