

【土器】

## 鉛同位体比による土器産地決定の可能性

On the Applicability of Lead Isotopes for Provenancing Pottery

中井俊一

### 【論文要旨】

同位体を用いた考古学資料の産地推定はこれまで主に金属資料やガラス資料に対して応用されてきた。今回の歴史民俗博物館での共同研究「同位体を用いた産地決定法の研究」では、鉛同位体比を用いて土器の産地推定が可能であるかについて、坂本達を中心に初期的な調査が行われた。ここではその原理について簡単に紹介する。

産地推定が可能になるためには(1)同位体比が鉱床の形成した場所の地質学的な違いを反映して鉱床毎に異なるということと、(2)鉱物がウラン・トリウムを含まず鉛に富むことと、鉱物の形成後鉛に関して閉鎖系に保たれ、鉱物の鉛同位体比が形成後変化しないということが必要である。この条件が土器の原料である粘土鉱物に対して成り立っているかについてこれまでの報告から検討する。

土器資料の産地推定は金属器資料に比べ、困難な点が数多くあると思われるが、大きな地域間の区別は可能性がある。さらに鉛の局所同位体比分析技術により、微小部分に残されたより本質的な情報を得られる可能性があり、今後の進展に期待が持てる。

珪酸塩鉱物からなる考古学資料には石器や土器などがあるが、化学成分や元素の同位体組成が、資料の産地によって変化する場合、それらを産地推定のトレーサとして用いることが可能となる。黒曜石や斧などの打製石器資料に対しては、地球化学の手法を用いた産地推定が既に試みられており、ある程度の成果を上げている。最近の成功例としては南太平洋の火山諸島の石器資料の産地推定で、島毎の火山岩の鉛同位体比が異なることを利用した例が Weisler and Woodhead[1995]によって報告されている。

ポリネシアの島は多くが火山島であり、諸島間の交易についての考古学的な興味を引くフィールドである(図1)が、交易の研究によく用いられる黒曜石や土器や貝の装飾品などの考古学資料が非常に乏しい。そこで Weisler and Woodhead は斧などの切断用の石器に用いられた玄武岩の鉛同位体比によって、石器の産地の同定と交易範囲の限定を試みた。石器は火山岩を直接加工したものであり、加工時の同位体変化は無いと考えられる。南太平洋の火山島を構成する火山岩の鉛同位体比は島毎に異なる(図2)。彼らはポリネシアの七つの島の石切り場で採取した岩石の鉛同位体比を分析し、これまで報告されている各島の同位体比の領域に入ることを確認した。また Pitcairn 諸島の Henderson 島で採取された考古学資料を分析している。この島は隆起した石灰岩の島で打製石器の原料となる火山岩は得られない。鉛同位体比の分析の結果6個中5個の資料が隣の Pitcairn 起源のものと産地推定できる。ところが驚くべきことに、一つの資料は400km西の Gambier 島の鉛同位体比と一致する(図2)。

火山岩を直接利用した考古学資料の場合、特に黒曜石や打製石器など新鮮な火山岩を利用している場合では、資料の地球化学的情報の解釈は比較的単純である。しかし土器などの粘土鉱物を利用している資料の場合問題は難しくなる。粘土は岩石が風化を受けてできた二次的なものであり、元素の移動について閉鎖系でなく物の出入りがあり、もとの物質と化学的な差があることや、起源の異なる風化鉱物が混合することが考えられ、一次的な火成岩や鉱床鉱物を利用した資料に比べて化学成分・同位体比組成ともに解釈が難しくなることが予想される。

過去の研究例をあげると、馬淵と川上[1984]はストロンチウム同位体比による土器と瓦の産地推定の有効性について検討した。宮城県、奈良県、群馬県、茨城県の瓦、土器を分析したところ、Sr 同位体比だけでは産地による分離が不可能なことが明らかになった。しかし Rb/Sr 濃度比と Sr 同位体比を組み合わせることにより、産地推定の可能性がでてくることを彼らは指摘している。

今回の歴史民俗博物館での共同研究「同位体を用いた産地決定法の研究」では、鉛同位体比を用いて土器の産地推定が可能であるかについて、坂本達を中心に初期的な調査が行われた。ここではその原理について簡単に説明する。本報告書の別章で紹介した銅製品や青銅器の産地推定の場合、(A) 同位体比が鉱床の形成した場所の地質学的な違いを反映して鉱床毎に異なるということと、(B) 鉛や銅の鉱床を構成する鉱物がウラン・トリウムを含まず鉛に富むことと、鉱物の形成後鉛に関して閉鎖系だったことから、鉱床鉱物の鉛同位体比が鉱床が形成後変化しないということを利用した。これら二つの条件が土器の材料鉱物にも当てはまれば産地推定が可能となる。

最初に長石などの鉱物の鉛同位体比が場所により異なるかについて検討する。粘土鉱物の産地の場合、鉛鉱床のように分布が限定されることはない。したがって地域毎の分離が可能になるかという議論になる。

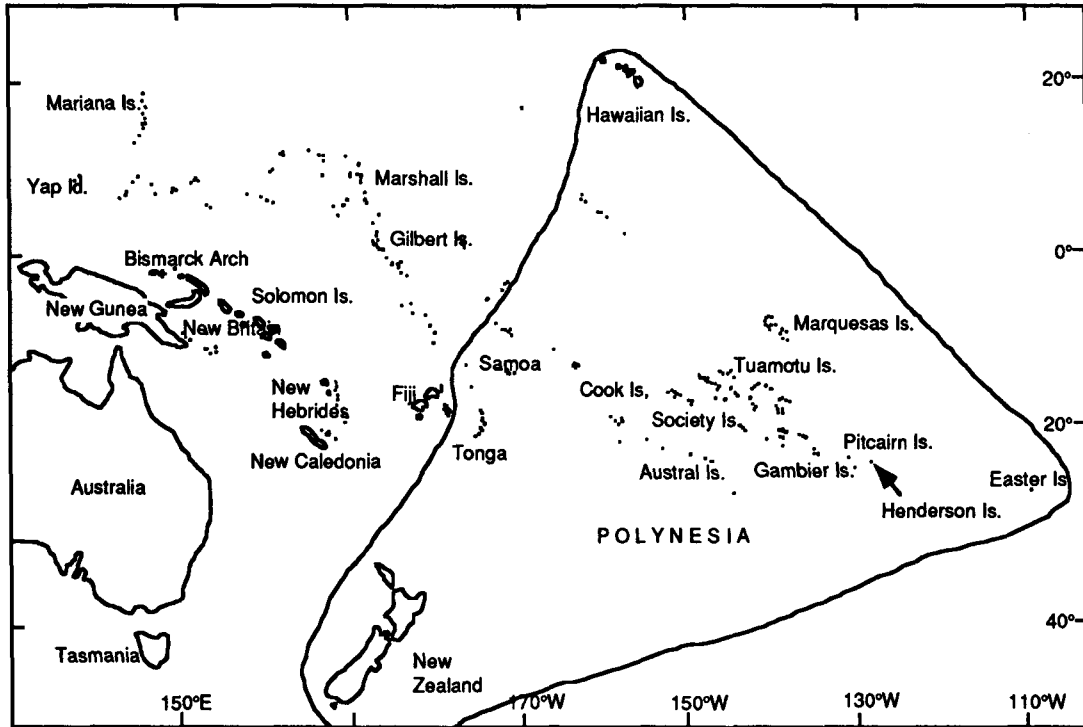


図1 ポリネシアの島の位置関係

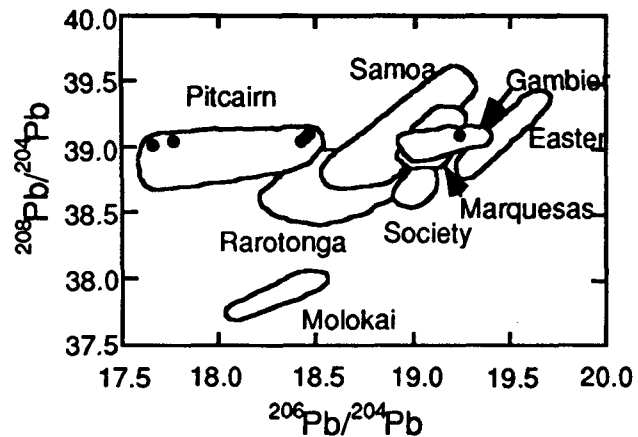
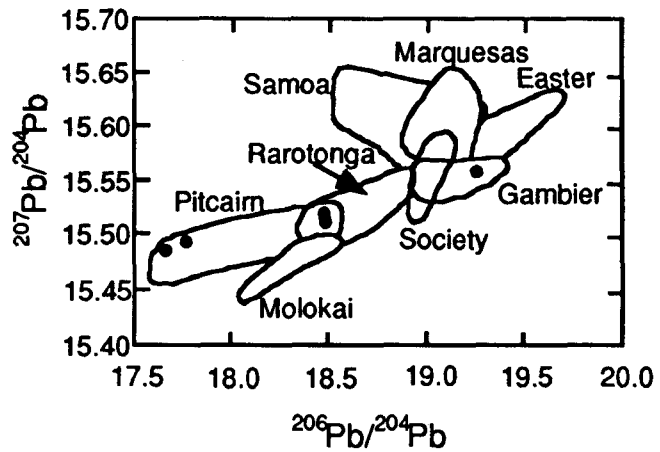


図2 ポリネシアの各島の火山岩の鉛同位体比と Henderson 島で採取された打製石器の鉛同位体比(黒丸) 各島の鉛同位体比は  $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ ,  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  の三次元空間で別れ、産地推定に有効であることがわかる。Henderson 島の石器資料は 5 資料 ( $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  が 18.5 の付近に 3 資料がかたまっている) が近くの Pitcairn 島の同位体比領域に入り、近隣の島からの供給を示す。他の一つは 400 km 西の Gambier 島の同位体比領域に入る。Weisler (1995) より。

日本の各地域で地殻の岩石の同位体比がどの程度変化するか体系だった研究は行われていないが、Kerstingら [1996] は東北日本の第四紀（最近 200 万年）火山の鉛同位体比を測定・比較している。彼女らの結果をみると鉛同位体比によって火山毎の分離は出来ないことがわかる（図3）。個々の火山の産出する火山岩が比較的大きな同位体変動を示し、異なる火山間で同位体比の重複が見られる。しかし彼女らの結果で注意を引くのは  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ - $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ - $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  の両プロットで福島県を南北に走る棚倉構造線の東西で火山が異なる二つのトレンドを示すことである（図3, 図4）。日本列島は起源の異なる大陸の断片、島弧、火山島などが衝突・付加して現在の形になったと考えられている。棚倉構造線は異なる地塊が衝突した時の境界線と考えられており、これを境に東北日本を構成する地殻物質の年代が異なることが知られている。この構造線の東西の鉛同位体比の差はマグマが上昇する際に相互作用する地殻物質の差により生じたと解釈することが可能である。これらの試料は火山岩であり、粘土よりは単純な生成過程を経ているため粘土との単純な比較はできないが、この研究は鉛同位体比が地域によりある程度の差を持つことを示唆していると考えられる。

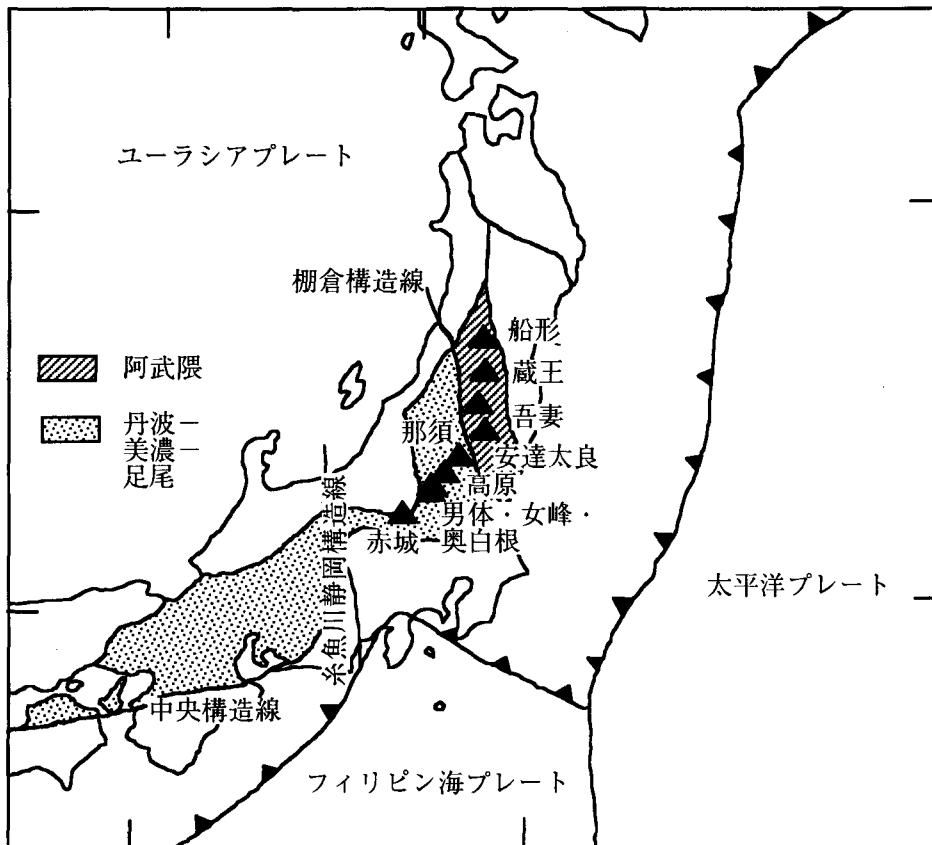


図3 東日本の地殻構造と火山の位置を示す図 日本列島は多くの小さな地殻断片が衝突により集まってできたと考えられている。特に福島県を走る棚倉構造線の東西で地殻の年代に差があることが知られている。Kersting (1996) を改変。

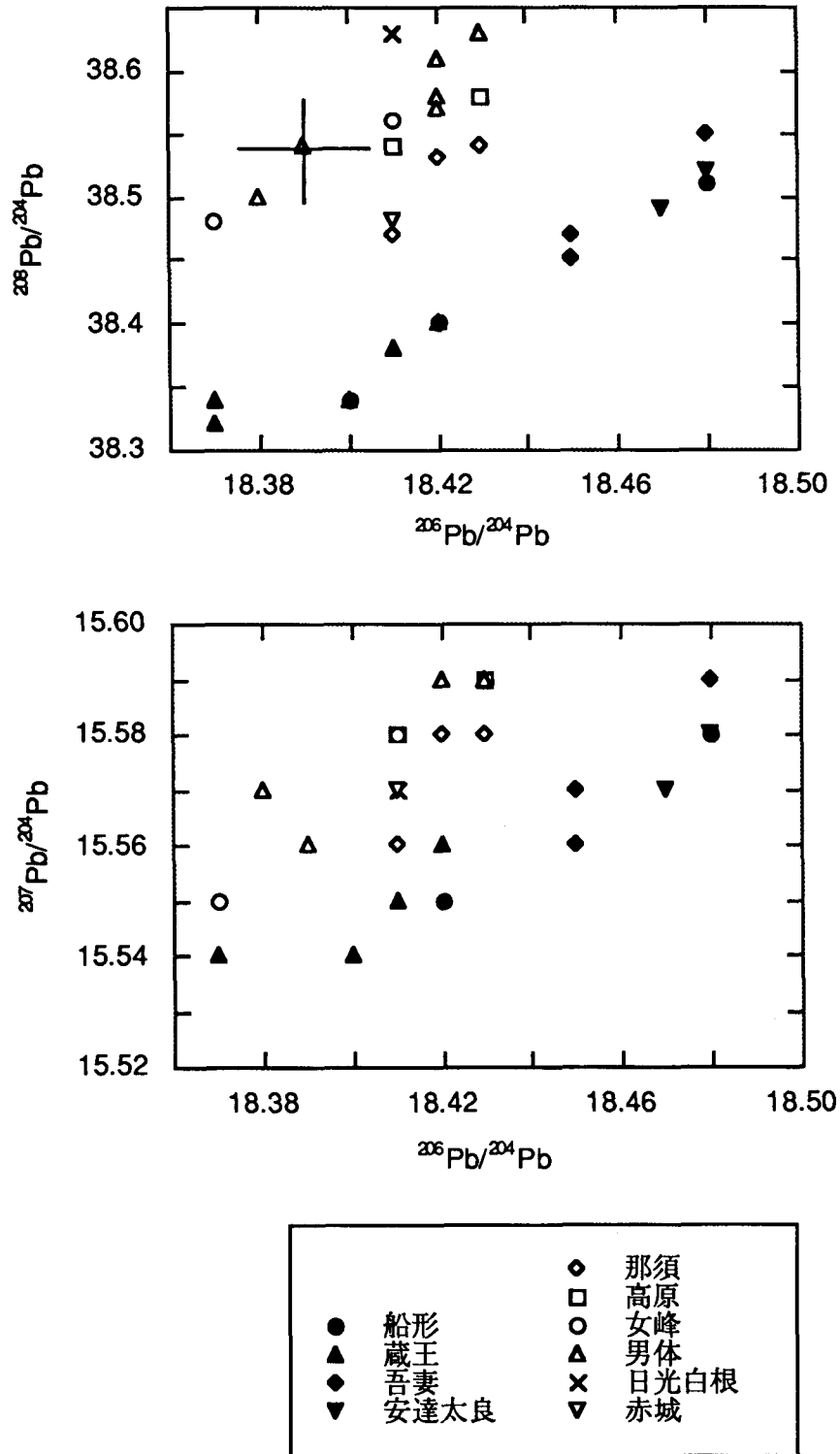


図4 東北、関東の火山岩の鉛同位体比 棚倉構造線の東に位置する火山を黒丸で、西を白丸で表示する。個々の火山からの岩石は同位体比が重複することがあり、鉛同位体比による産地推定は困難である。棚倉構造線の東西で鉛同位体比は異なるトレンドを示し、鉛同位体比からある程度の地域の制約を付けることが可能である。Kersting (1996) を改変。

二つ目に粘土鉱物中の長石の鉛同位体比がその地域の地殻物質の代表的な鉛同位体比を持つかについて検討する。

岩石中の鉛のうち放射壊変起源鉛 (radiogenic lead) は主にアパタイト, ジルコン, モナザイトなどの微量鉱物に含まれる。非放射壊変起源の鉛 (common lead) はウラン・トリウムに乏しいカリ長石や斜長石などに含まれる。長石には鉛が数十から数百 ppm 含まれるのに対し, ウラン・トリウム濃度が低く 1ppm 以下であり, 鉱物生成時の鉛同位体比を保持していることが知られている。したがって長石などが鉛鉱物のように岩石の形成時の同位体比を保持する可能性がある。今回の研究では土器を構成する長石を鉱物分離し, その同位体比を測定するため土器全体の鉛同位体比よりも解釈がしやすくなると考えられる。

しかし, 長石が他の起源を持つ鉛により汚染された例が Doe and Hart [1963] により報告されている。コロラド州の熱変成を受けた岩石から分離された長石の場合, 周囲の岩石から放射壊変起源の鉛を取り込んでいることが報告されている。変成作用の熱で, 同じ岩石中のジルコンなどの鉱物から放射壊変起源の鉛の移動が起こり, 同位体比の変化が起きたと考えられる。さらに Ludwig and Silver [1977] は変成作用を受けていないカコウ岩の長石が過剰の放射壊変起源の  $^{206}\text{Pb}$  を含んでいることを報告している。このようなことが起こると, 同一地域さらには同一岩石からの長石が, 異なる鉛同位体比を持つことになり産地推定は困難になると予想される。

最後に, 長石ができてからウラン・トリウム-鉛が閉鎖系状態を保っているかについて検討する。

これについても閉鎖系が成り立っていない例が報告されている。土器の原料となる粘土鉱物は岩石の風化で残留した成分と二次的にできた鉱物である。堆積岩中のカリ長石の研究により古い時代の岩石の風化で供給された部分を核とし, その周囲に二次的な長石が成長した例も知られている [Hearn et al., 1987]。またカリ長石自体風化には比較的強いが, 条件が厳しい場合完全に風化されてしまう場合もある。その中途では部分的な風化により, 鉛同位体比の変化なども予想できる。これらは土器資料の鉛同位体比の解釈を難しくすると予想される。

以上見てきたように, 長石の鉛同位体比による土器の産地推定は, 困難な点が数多くあると思われるが, 大きな地域間の区別は可能性があり, 今回の坂本達の試みがどのような結果をだすか興味深い。さらに鉛の局所同位体比分析技術が向上しているが, これにより微小部分に残されたより本質的な情報を得られる可能性があり, 今後の進展に期待が持てる。

#### 引用文献

- Doe, B.R. and Hart, S.R. (1963) The effect of contact metamorphism on lead in potassium feldspars near the Edora stock, Colorado, *Jour. Geophys. Res.*, 68, 3521-3530.
- Hearn, P.P.Jr., Sutter, J.F., and Belkin, H.E. (1987) Evidence for Late-Paleozoic brine migration in Cambrian carbonate rocks of the central and southern Appalachians: Implications for Mississippi Valley-type sulfide mineralization. *Geochim Cosmochim. Acta*, 51, 1323-1334.
- Kersting, A.B., Arculus, R.J. and Gust, D.A. (1996) Lithospheric contributions to arc magmatism: isotope variations along strike in volcanoes of Honshu, Japan, *Science*, 272, 1464-1468.
- Ludwig, K.R. and Silver, L.T. (1977) Lead-isotope inhomogeneity in Precambrian igneous feldspars. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 41, 1457-1472.
- 馬淵久夫・川上紀 (1984) ストロンチウム同位体比の土器・瓦の産地推定への応用, *古文化財の科学*, 29, 94-100.

---

Weisler, M.I. and Woodhead, J.D. (1995) Basalt Pb isotope analysis and the prehistoric settlement of Polynesia, Proc. Natl Acad Sci. USA 92, 1881-1885.

(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)

## **On the Applicability of Lead Isotopes for Provenancing Pottery**

**NAKAI Shun'ichi**

Provenance studies for relics using radiogenic isotopes have been mainly applied to metals. In this cooperative study titled "Collective Research: Provenance Studies of Cultural Properties with Isotope Analysis", Sakamoto et al. tried to use lead isotopes of alkali feldspar separated from pottery to determine their provenance. In this section, the author will review whether clay minerals, raw material for pottery, meet required conditions for determining their provenance with their lead isotopes based on previous literature.

Although pottery seems to be a more challenging target for provenance study compared with metals, it may be possible to put some constraints. Microanalyses that enable to extract geochemical information undisturbed by secondary processes will contribute to the development in provenance studies for pottery.