

【土器】

アルカリ長石抽出—鉛同位体比法による 縄文土器のグルーピング

A Grouping of Jomon Pottery Based on the Lead Isotopes of
Extracted Alkali Feldspar

坂本 稔・西谷 大・齋藤 努

はじめに

① 原理

② 資料

③ 実験

④ 結果と考察

おわりに

【論文要旨】

縄文土器産地の自然科学的な推定法として、青銅製遺物中の鉛の産地推定に成果をあげている鉛同位体比の適用を試みた。土器胎土に含まれるアルカリ長石は鉛の濃度が高く、その同位体比は初生時の値を保持しているため、地質学的な情報を反映している。土器の胎土から重液分離法によりアルカリ長石を抽出し、高周波加熱分離—鉛同位体測定法により鉛同位体比を測定した。

九州・南西諸島で出土した縄文時代前期の土器計39点を用いた。分析結果は土器型式との相関を示さなかったが、出土地との間には緩やかな相関が見られた。轟貝塚（熊本）出土の土器と沖縄本島出土の土器とは、鉛同位体比から明瞭にグルーピングすることができた。他方、南西諸島の島々から出土した土器はグループを形成しなかった。有力な粘土層を持たない島では島外から胎土や土器の流入を受け、種々の地質学的性質を有した土器が出土した結果と考えることができる。

はじめに

日本列島およびその周辺で出土する縄文土器は、型式や文様に基づいた精緻な分類が行われている。考古学的手法である土器型式の分類は、土器編年として縄文時代の年代観形成の礎となっている。また、当時行われたであろう地域間の交流を推測する手がかりにもなる。ただし、土器型式だけで交流の詳細を判別することは容易ではない。同じ型式の土器が広範囲にわたって出土する背景には、土器そのものの搬送、土器製作者の移動、見聞による型式の伝播などの可能性が挙げられるからである。加えるに、土器の材料となる胎土そのものの流通については情報を得ることができない。縄文土器の製作地や胎土の採取地を推定することができれば、交流の詳細についての束縛条件を与えることが可能になるだろう。

他方、胎土の化学組成⁽¹⁾や鉱物組成⁽²⁾を分析して土器を特徴づける試みは、これまでもしばしば行われてきた。自然科学的手法による土器の分類は、しかしながら縄文土器については十分な成果に結びついていないことが多い。胎土が由来する粘土層は複雑な地質学的条件下に置かれているため、組成をグルーピングしても解釈が難しいからである。さらに、別に加えられている混和材や、土器の焼成温度が低いために製作後に起こりうる風化も胎土の組成に影響する。土器の産地、すなわち胎土の採取地の推定には、このような要因に左右されない「指標」が必要である。

本稿では、青銅製の遺物に含まれる鉛の産地推定に一定の成果を上げている鉛同位体比法の縄文土器への適用について検討する。試料が風化、劣化、錆化などを経験すると、化学的性質が異なる各元素の組成比（濃度比）は大きく変動しうるが、同一の元素であり化学的性質が等しい同位体の組成比（同位体比）はその影響を受けにくい。ただし同位体比は、もとの値が異なる様々な成分が混合することで値が変わりうる。そこで今回、胎土に含まれる鉱物の一種であるアルカリ長石を抽出し、その鉛同位体比を測定してグルーピングを試みた。

①……………原理

長石は造岩鉱物の主成分として地殻中に広く分布していて、火成岩や変成岩には普遍的に含まれている。土器胎土である粘土層は岩石の風化および堆積作用を経て生成するので、母岩に由来する長石を含むことになる。長石はカリウム長石成分 (Or)、ソーダ長石成分 (Ab)、カルシウム長石成分 (An) の3成分が混合した固溶体であるが、マグマから分化する際の温度条件などによりその割合は任意ではない。大別して、An と Ab とを端成分とする斜長石と、Or と Ab とを端成分とするアルカリ長石とに分類できる。

長石の化学組成には、分化時の化学的条件の違いが反映される。微量成分に着目すると、アルカリ長石には鉛が比較的多く含まれ、かつウラン・トリウムの濃度が低い。ウランやトリウムは放射壊変により鉛に変化することから、アルカリ長石中の鉛の同位体比は初生時の値を保持し、その後の放射壊変による値の変動が小さいことが地球化学的な研究から知られている⁽³⁾。

鉛同位体比法による青銅製遺物中の鉛の産地推定は、鉛鉱床の生成年代および地質学的な性質の

違いが同位体比に反映されることを応用したものである。東アジアにおいては中国大陸、朝鮮半島、および日本列島においてそれぞれ製造された青銅製品中の鉛同位体比が明瞭にグルーピングできることが報告されている⁽⁴⁾。異なった地質学的条件下における粘土層が各々特徴的な鉛同位体比を有するとすれば、同じ粘土層に由来する胎土のアルカリ長石は一つのグループを形成することと思われる。

②……………資料

本研究で分析したのは、九州本土から南西諸島にかけて出土した縄文時代前期の土器 39 点である。出土地を図 1 に示した。島嶼部は地質学的条件に差があると予想され、各々の地域に由来する胎土のグルーピングが比較的容易であると考えられる。さらに、海洋に隔てられたこの地域では、当時広範な交流が図られていたことが出土遺物から推定されている。なかでも、同じ型式の土器が異なる島々で出土したり、有力な粘土層を持たない島々からも土器が出土することは有力な証拠とされる。

分析された土器は、轟式(条痕系)、曾畑式、押引列点文土器、室川下層式系土器の各型式である。轟式土器は縄文時代前期に九州から南下したと考えられている土器の一つである。次いで九州本土から南西諸島ほぼ全域に拡散したのが曾畑式土器である。星塚遺跡(鹿児島)で出土した押引

列点文を有する土器は、層的に曾畑式土器であることが確かめられている。一方で、室川式土器は南西諸島内でのみ分布するいわゆる「南島土器」である。神野貝塚(沖永良部島)出土の神野A式はこれに含まれる。室川下層式土器は時期的に押引列点文土器とほぼ同時期かそれに続くものとされる。

分析試料の多くは、土器胎土のベリリウム同位体について今村等が報告したものと共通しており、土器型式の詳細については同報告を参照されたい。

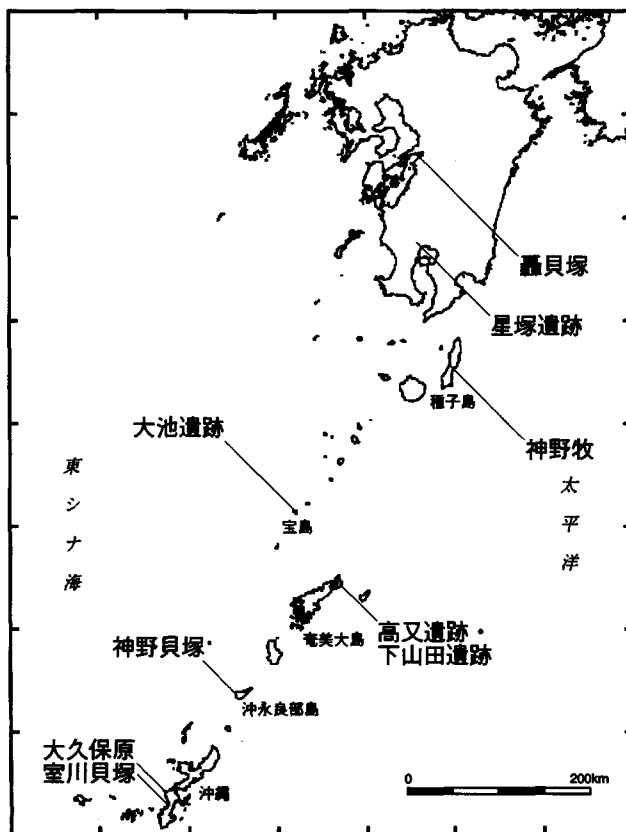


図 1 分析した縄文土器の出土地

③……………実験

1 鉱物の分離

胎土に含まれる他の鉱物からアルカリ長石を抽出するために、任意の比重に調整した液体中に試料を投じて、その比重の違いを利用して鉱物を分離する重液分離法を適用した。アルカリ長石の比重は、端成分であるカリウム長石とソーダ長石の比重がそれぞれ 2.56, 2.62 であることから、その中間の値を採用した。

ステンレス製の粉碎機で一辺が 1 cm～数 cm の土器片をミリメートルサイズまで粉碎し、さらにめのう乳鉢を用いて微粉化した。粒径による沈降速度の差異を避けるため、試験用ふるいを用いて粒径が 106～180 μ m の成分を分取した。さらにアセトン中で超音波洗浄を行い、付着する粘土成分を鉱物から除去した。

重液は、プロモホルム（比重 2.85）にアセトンを加えて比重を調節したものを用いた。初めに比重 2.62 の重液中に試料を投じ、遠心分離機を用いて比重の大きい成分を沈降させた。沈降成分の中にはウラン・トリウム濃度が比較的高い鉱物であるジルコンが含まれる可能性があり、除去が不十分な場合は鉛同位体比の測定に影響する恐れがある。次いで比重 2.56 の重液を用いて、アルカリ長石の比重に相当する成分を沈降させた。回収したアルカリ長石をアセトン溶液中で超音波洗浄し、残存するプロモホルムを除いた。目視で確認できる不純物はハンドピッキングにより、また磁鉄鉱は磁石を用いてこれを取り除いた。

2 鉛同位体比の測定

鉛同位体比の測定は、国立歴史民俗博物館において開発された「高周波加熱分離—鉛同位体測定⁽⁶⁾」を適用した。この方法の利点は、極めて短時間で鉛の抽出ができること、実験操作が単純であらかつ乾式法であるためブランクを低く押さえて高精度の測定が可能になることである。

試料を、壁内に炭素を密封した石英製の小るつぼに入れ、石英製のふたで覆う。高周波炉で 15 分間加熱すると試料中の鉛が揮発し、ふたの内面に蒸着する。これを希硝酸約 1ml で溶解し、回収された鉛量を ICP 質量分析装置などで定量する。同位体測定に必要な鉛量（300ng）に相当する溶液を採取し、リン酸、シリカゲルとともにレニウム・シングル・フィラメント上に塗布し、表面電離型質量分析装置で鉛同位体比を測定する。

胎土に含まれるアルカリ長石の量は試料によって異なるものの、長石の標準岩石の鉛濃度はおよそ数 10 ppm と報告されている⁽⁷⁾。本実験では一辺が 1～数 cm の土器片から鉛同位体測定に必要なアルカリ長石を抽出した。

④……………結果と考察

分析した縄文土器試料の一覧と、胎土中のアルカリ長石の鉛同位体比の測定結果を、出土地と土器型式に分類して表 1 に示す。図 2 には、鉛同位体比のうち $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比と $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比との関係を出土地ごとに示す。また図 3 は $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 比と $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 比との関係を示した、いわゆる B 式図

表1 分析した縄文土器試料および胎土中のアルカリ長石の鉛同位対比測定結果一覧

試料ID	遺跡・出土地	土器型式	$^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$
NST6	轟貝塚 (熊本)		0.8465	2.0910	18.428	15.599	38.531
NST7	轟貝塚 (熊本)		0.8507	2.0999	18.318	15.585	38.473
NST8	轟貝塚 (熊本)		0.8511	2.0995	18.297	15.573	38.423
NST9	轟貝塚 (熊本)		0.8518	2.1007	18.288	15.581	38.429
NST10A08	星塚遺跡 (鹿児島)	押引	0.8473	2.0994	18.404	15.596	38.641
NST10A09	星塚遺跡 (鹿児島)	押引	0.8454	2.0926	18.428	15.580	38.569
NST10B03	星塚遺跡 (鹿児島)	曾畑	0.8561	2.1054	18.117	15.510	38.142
NST10C03	星塚遺跡 (鹿児島)	曾畑	0.8480	2.0913	18.362	15.571	38.400
NST12A01	神野牧 (種子島)	曾畑	0.8494	2.0983	18.363	15.599	38.532
NST12A02	神野牧 (種子島)	曾畑	0.8472	2.0896	18.400	15.588	38.448
NST5C-1	大池遺跡 (宝島)	轟系	0.8509	2.1010	18.350	15.614	38.550
NST5C-2	大池遺跡 (宝島)	轟系	0.8489	2.0971	18.409	15.626	38.605
NST5A-1	大池遺跡 (宝島)	室川下層	0.8488	2.0956	18.387	15.607	38.533
NST5A-2	大池遺跡 (宝島)	室川下層	0.8489	2.0942	18.363	15.586	38.450
NST5B-1	大池遺跡 (宝島)	室川下層	0.8483	2.0947	18.395	15.604	38.532
NST5B-2	大池遺跡 (宝島)	室川下層	0.8522	2.1069	18.331	15.622	38.621
NST13A01	大池遺跡 (宝島)	室川下層	0.8476	2.0946	18.415	15.608	38.569
NST13B02	大池遺跡 (宝島)	室川下層	0.8467	2.0927	18.417	15.593	38.540
NST4-1	下山田遺跡 (奄美大島)	轟系	0.8488	2.0955	18.386	15.606	38.527
NST4-2	下山田遺跡 (奄美大島)	轟系	0.8507	2.0969	18.286	15.555	38.346
NST4-3	下山田遺跡 (奄美大島)	轟系	0.8473	2.0911	18.396	15.588	38.468
NST4-4	下山田遺跡 (奄美大島)	轟系	0.8432	2.0847	18.501	15.600	38.570
NST4-5	下山田遺跡 (奄美大島)	轟系	0.8496	2.0944	18.375	15.612	38.484
NST3-0	高又遺跡 (奄美大島)	曾畑	0.8485	2.0966	18.429	15.637	38.640
NST3-1	高又遺跡 (奄美大島)	曾畑	0.8474	2.0901	18.391	15.585	38.440
NST3-2	高又遺跡 (奄美大島)	曾畑	0.8475	2.0905	18.395	15.590	38.454
NST2B	神野貝塚 (沖永良良島)	神野A	0.8497	2.0988	18.370	15.609	38.554
NST2C	神野貝塚 (沖永良良島)	神野A	0.8488	2.0957	18.391	15.610	38.542
NST2A-1	神野貝塚 (沖永良良島)	室川下層	0.8497	2.0984	18.353	15.595	38.512
NST2A-2	神野貝塚 (沖永良良島)	室川下層	0.8482	2.0935	18.417	15.622	38.550
NST14A02	神野貝塚 (沖永良良島)	室川下層	0.8477	2.0911	18.391	15.591	38.458
NST14A06	神野貝塚 (沖永良良島)	室川下層	0.8475	2.0942	18.386	15.582	38.502
NST1	室川貝塚 (沖繩本島)	室川下層	0.8441	2.0931	18.548	15.657	38.820
NST15A03	舟越第一 (沖永良良島)	室川下層	0.8489	2.0961	18.408	15.625	38.581
NST15A09	舟越第一 (沖永良良島)	室川下層	0.8419	2.0861	18.552	15.619	38.702
NST16A01	北谷 (沖永良良島)	室川下層	0.8468	2.0924	18.410	15.620	38.522
NST17A01	大久保原 (沖永良良島)	室川下層	0.8488	2.0961	18.390	15.609	38.549
NST17B01	大久保原 (沖永良良島)	室川下層	0.8467	2.0936	18.477	15.644	38.683
NST17C01	大久保原 (沖永良良島)	室川下層	0.8452	2.0904	18.471	15.612	38.613

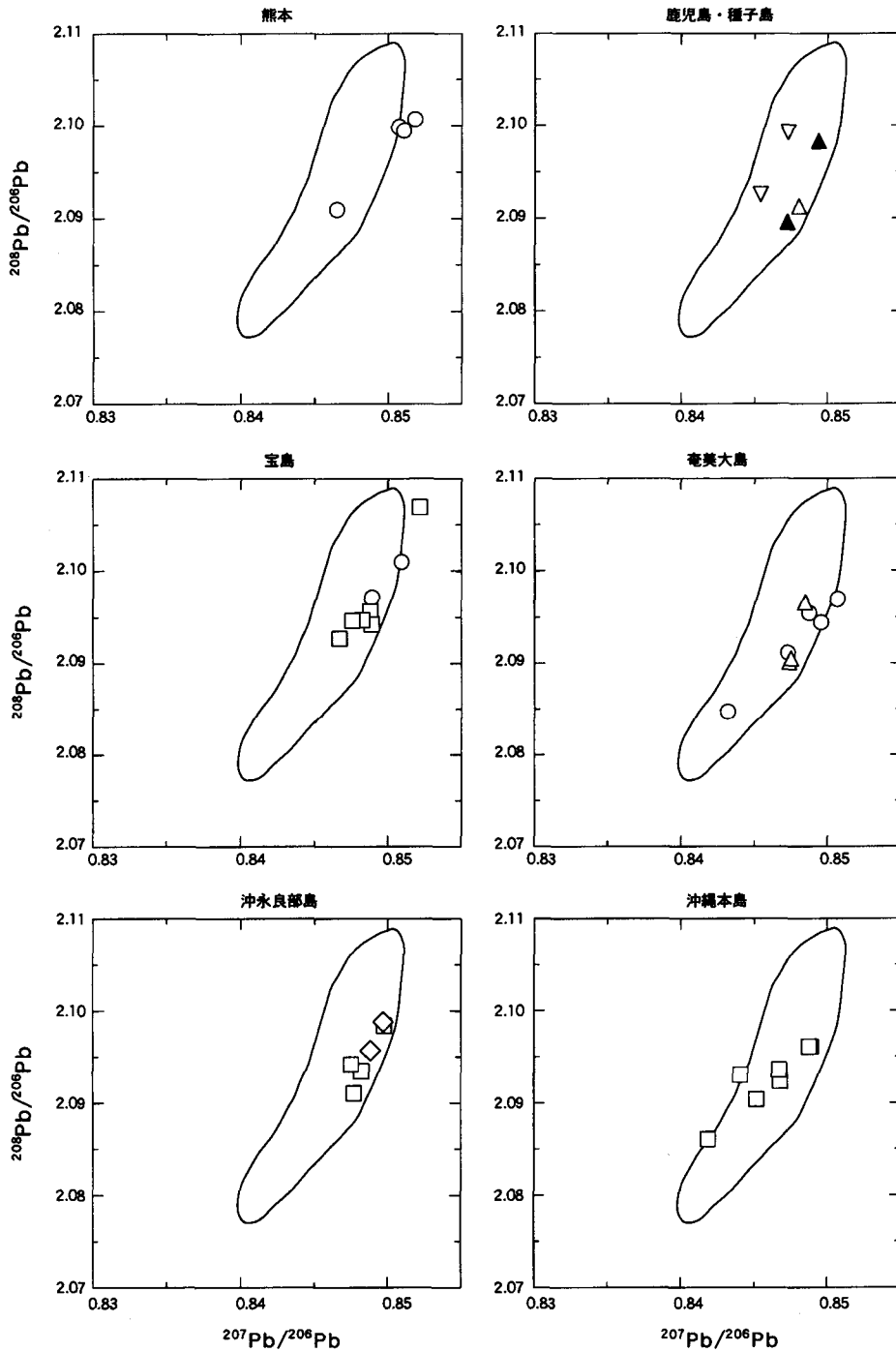


図2 九州・南西諸島で出土した縄文土器胎土中のアルカリ長石の鉛同位体比(A式図)
土器型式はシンボルで分類：轟 (○), 曾畑 (△, ▲), 押引 (▽), 室川下層 (□),
神野A (◇)。

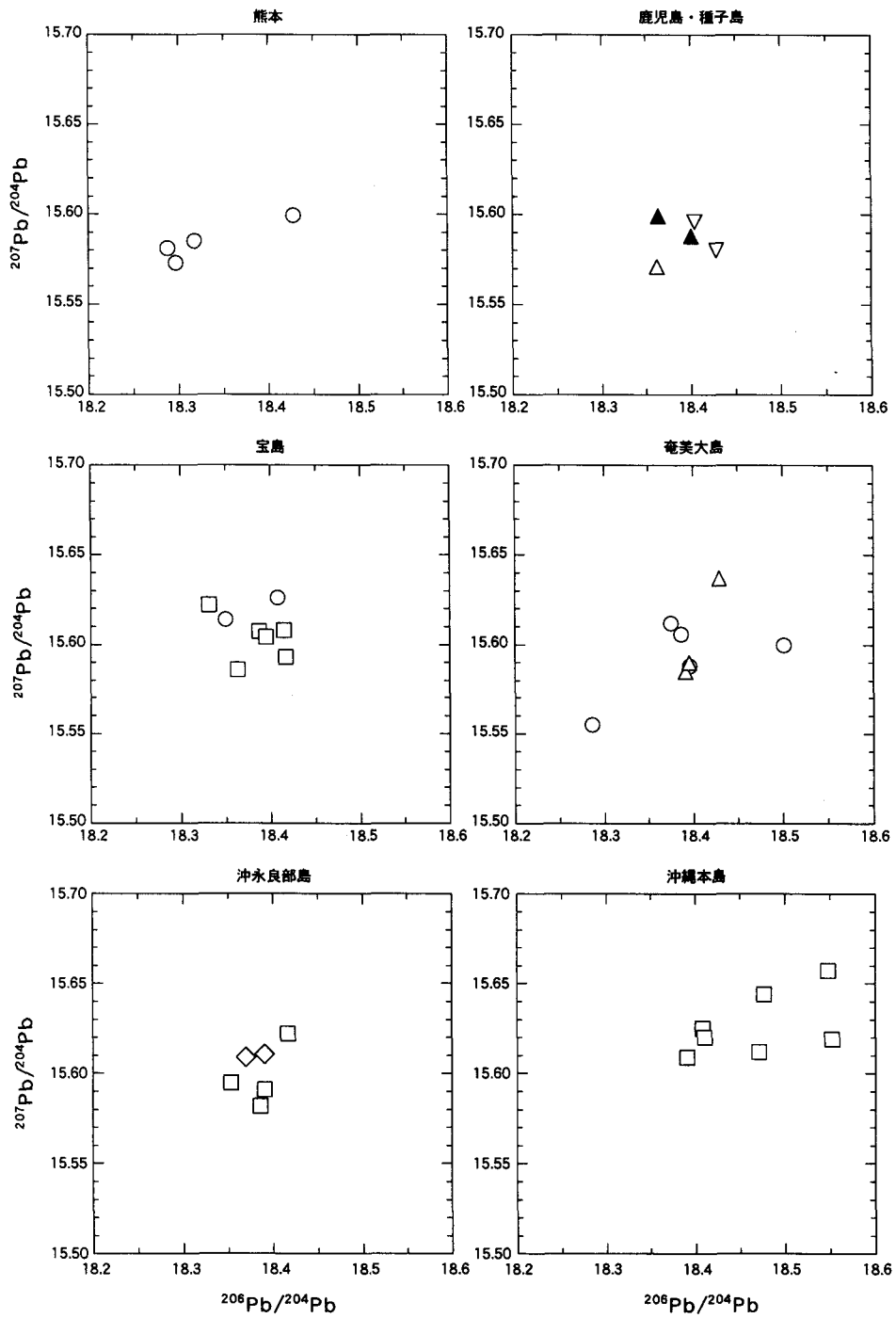


図3 九州・南西諸島で出土した縄文土器胎土中のアルカリ長石の鉛同位体比(B式図) シンボルは図2と共通: 轟(○), 曾畑(△, ▲), 押引(▽), 室川下層(□), 神野A(◇)。

である。土器型式の違いはシンボルの違いに対応する。

図2中にある扁平の楕円は、日本列島で産出される鉛鉱石が示す同位体比の範囲として通常用いられているものである⁽⁶⁾。測定結果はいずれもこの楕円の近傍に位置し、アルカリ長石を抽出して行った本研究の分析が妥当なものであったことを示す。ただし、測定結果のグルーピング自体は必ずしも明らかなものになるとは限らなかった。

土器型式と鉛同位体比との間の相関は明瞭なものではない。ある型式の土器に限られた地域で産出され、胎土の採取地も狭い範囲に限定されるのであれば、胎土の示す地質学的な性質は類似することが考えられる。しかしいずれの土器型式に注目しても分析結果は比較的分散し、限られた産地を支持できるものではない。出土地別にグラフ化した図2ではむしろ、九州から沖縄本島に至る出土地と図中右上から左下に分布する鉛同位体比との間に緩やかな相関が認められる。

図2において、轟貝塚で出土した土器のうち1点は比較的離れているが、3点は一つのグループを形成している。この傾向は図3においても認められる。一方沖縄本島で出土した土器はグループとしては集合しないものの、その分布は図2中の左方に位置している。B式図である図3ではその傾向が図中右方に位置することでより明瞭に示されている。本研究で分析した轟貝塚および沖縄本島で出土した土器については、鉛同位体比による胎土のグルーピングが有効に機能したと思われる。

それ以外の出土地については、上で指摘したような傾向が本研究の分析結果から認められるものの、グルーピングによる分類は図2・図3両図を用いても困難である。地理的に近接する星塚遺跡(鹿児島)と神野牧(種子島)とを一つの図にまとめ、後者から出土した土器を▲で示したが、分析数が少ないこともあり出土地によるグルーピングは明らかにならなかった。図2ではグルーピングできるように見える土器型式による分類も、図3ではそれほど離れては位置していない。

大池遺跡(宝島)・下山田遺跡・高又遺跡(奄美大島)、神野貝塚(沖永良部島)出土の土器の分析結果のグルーピングも明瞭にならない。しかしながら、胎土の採取地が広範に及んでいることを示すという解釈も可能である。島内に有力な粘土層が存在せず、出土する各型式の土器が様々な地域からもたらされたものとすれば、胎土の示す地質学的な性質は一つのグループに集合しないことが予想できる。ベリリウム同位体を用いた今村等⁽⁵⁾の研究からも、これら島々から出土した土器の分析結果が大きく分散することから、種々の地質学的性質を有する粘土層から採取された胎土、ないしそれを材料した土器が流通していた可能性が指摘されている。鉛同位体比によるグルーピングをより明らかなものにするためには、分析数を増やし、他の化学組成や同位体組成を用いたグルーピングを行い、さらに周辺の粘土層から粘土を直接採取して分析するなど、より多くの側面からの検討が必要になるだろう。

おわりに

縄文土器の産地推定を行うための新しい分析法として、胎土に含まれるアルカリ長石を抽出し、鉛同位体比を測定してグルーピングを試みた。九州・南西諸島で出土した縄文時代前期の土器を分析したところ、いずれも日本産の鉛鉱石が示す同位体範囲に分布した。

測定結果と土器型式との相関は明瞭ではなかったが、その出土地との間には緩やかな相関が認め

られた。特に、熊本と沖縄本島とで出土した土器については鉛同位体比によるグルーピングが有効であると思われる。しかしながら、南西諸島の他の島々については明瞭なグループが現れず、土器型式によらず大きく分散する結果が得られた。その理由として、土器が様々な地域からもたらされた可能性を指摘することができる。

本研究はグルーピングを議論するには分析数が少なく、試験的研究の域を出ていない。今後より多くの縄文土器や、胎土の候補とみなされる粘土層の分析を行い、他の組成分析と組み合わせた検討が必要になるだろう。

本研究の遂行にあたっては、鹿児島県教育委員会・熊本県考古学研究室・沖縄県北谷町教育委員会・沖縄県読谷町教育委員会からのご厚意により資料の提供を受けることができた。ここに記して深謝の意をあらわしたい。

註

- (1) — 三辻利一, 「古代土器の産地推定法」『考古学ライブラリー14』, ニューサイエンス社, 1983年。
- (2) — 上條朝宏・石川隆司, 「縄文土器の胎土分析ー常総粘土層と土器の胎土分析についてー」『国立歴史民俗博物館研究報告』, 38, pp.199-232, 1992年。
- (3) — 兼岡一郎, 「地球年代学」『新実験化学講座10』, 丸善株式会社, 1976年。
- (4) — 馬淵久夫・平尾良光, 「鉛同位体比法による漢式鏡の研究」『MUSEUM』, 370, p.4, 1982年。
- (5) — 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。
- (6) — 齋藤努・高橋照彦・田口勇, 「高周波加熱-鉛同位体比法による緑釉の産地決定法の研究」『第16回古文化財科学研究会大会講演要旨集』, pp.26-27, 1994年。
- (7) — A. Ando, H. Kamioka, S. Terashima, S. Itoh: "1988 values for GSJ rock reference samples, "Igneous rock series"", *Geochemical Journal*, 23, 1989, pp.143-148.
- (8) — 馬淵久夫・平尾良光, 「東アジア鉛鉱石の鉛同位体比-青銅器との関連を中心に-」『考古学雑誌』, 73(2), pp.71-82, 1987年。

坂本 稔 (国立歴史民俗博物館情報資料研究部)

西谷 大 (国立歴史民俗博物館考古研究部)

齋藤 努 (国立歴史民俗博物館情報資料研究部)

(1999年7月6日 審査終了受理)

A Grouping of Jomon Pottery Based on the Lead Isotopes of Extracted Alkali Feldspar

SAKAMOTO Minoru, NISHITANI Masaru and SAITO Tsutomu

Lead isotope measurement is a satisfying way in presuming provenances of bronze relics. We first applied this for Jomon pottery. Alkali feldspar contained in pottery sherd is rich in lead, and was extracted by the dense media separation method.

A total of 39 Jomon potteries excavated on Kyushu and Nansei-shoto islands, Japan, were measured. Although the result did not show the correlation with pottery type, loose correlation was seen between excavation kilns. The grouping of the potteries of Kumamoto and Okinawa was able to be clearly carried out. Other samples excavated from small islands did not form the group suggesting the inflow of clay or pottery from the outside.