〔研究紹介〕

縄文土器の放射化分析

富沢　威*　庄司　克**
薬袋佳孝***　富永　健***

Ⅰ　はじめに

放射化分析は、同一試料について非破壊法で多元素同時分析が可能であることや、感度が核的性質に依存するために、他の分光化学的手法や化学的手法では分析が困難である元素についても容易に定量が可能であるなどの特徴を有している。放射化分析法は、少量の試料で多数の元素を定量することができるから、分析に供しうる試料の量に制限が加えられる場合が多い考古遺物の分析には適した手法である。この点に着目して、筆者らは縄文土器の分析を行った。

土器は、重要な考古学資料である。土器中の微量元素の存在度は、産地の推定や技法を解明する際の手がかりのひとつであり、考古学上重要である文化の伝播や交易などについての知見をあたえる。加曽利遺跡出土の縄文土器についての基礎的研究として、中性子放射化分析を応用して同一遺跡の製作年代が異なる土器間や、出土遺跡が異なる土器間での微量元素の濃度変動について検討した。中性子放射化分析は、分析感度が高く微量元素の定量には特に優れた分析法といえるが、実験の実施に当たっては、原子炉を利用するなど放射能の取り扱いに関する知識や技術を必要とすることなどから、多数の土器試料の測定に応用されることは少ない。本研究では、中性子放射化分析により非破壊的に土器中の微量元素の含有量を求めて、産地の推定や技法の解明を行うことを目的とする。

Ⅱ　実　　験

(1)　土器試料

前回（本紀要第１３号）に引き続いて加曽利遺跡の南貝塚出土の縄文土器と、比較的加曽利遺跡の付近の遺跡である荒屋敷遺跡（貝塚町）、芳賀輪遺跡（野呂町）、餅ケ崎遺跡（源町）、文六第一遺跡（土気町）で出土した主に加曽利ＥⅡ式、加曽利ＥⅢ式の３０点の縄文土器片を分析した。

＊東京国立文化財研究所　＊＊千葉市立加曽利貝塚博物館　＊＊＊東京大学理学部

土器の形式と製作年代の関係を簡単に示しておこう。加曽利遺跡で出土する縄文土器は、茅山式（紀元前5000年）、関山式（紀元前3500年）、黒浜式（紀元前3500年）、加曽利E式（紀元前2700年）、加曽利B式（紀元前1700年）、安行Ⅱ式（紀元前1000年）、安行Ⅲ式（紀元前1000年）の7つの型式に編年分類されている。

(2) 実験の方法

土器片をメノウ乳鉢で粉末にし風乾した後、100㎎を秤取しポリエチレンシートに封入して照射に供した。中性子の照射は、武蔵工業大学原子力研究所の照射孔を用いた。武蔵工業大学原子力研究所のTRIGA－Ⅱ型原子炉では、気送管（熱中性子束 1.5×10^{12} n・cm^{-2}・sec^{-1}）と照射溝（熱中性子束 7×10^{11} n・cm^{-2}・sec^{-1}）を用いた。短寿命核種は、土器試料を気送管で1分間照射し、7分冷却後、Ge(Li)半導体検出器と4096チャネル波高分析器を用いて5分間γ線スペクトルの測定を行った。長寿命核種は、試料を照射溝で15時間照射し、7日間冷却後、Ge(Li)半導体検出器と4096チャネル波高分析器を用いて3000秒分間γ線スペクトルの測定を行い、1ケ月冷却後、Ge(Li)半導体検出器と4096チャネル波高分析器を用いて30000秒間γ線スペクトルの測定を行った。

短寿命核種、長寿命核種の定量には、工業技術院地質調査所で調製した岩石標準試料のJB－1やJG－1および米国地質調査所のG－2などを標準に用いた。定量に用いた核種のγ線のエネルギーと半減期を表1に示す。

Ⅲ 結果と考察

加曽利遺跡とその付近の遺跡で出土した縄文土器について中性子放射化分析を行い、いくつかの有用な結果を得ることができた。

(1) 縄文土器の化学組成

表2に、今回分析した加曽利EⅡ式、加曽利EⅢ式に属する縄文土器の化学組成の平均値を示す。微量元素の存在度は、土器の胎土原料や製造技術について有用な知見をあたえる。ここでは、まず中性子放射化分析で精度よく定量できる希土類元素について検討してみよう。原子番号57のランタン Laから71のルテチウム Luまでの連続した15の元素を狭義で希土類元素と呼ぶが、これらは化学的性質が極めてよく類似している特徴がある。核的手法を用いる放射化分析では、化学的な性質が類似した元素を化学分離せずに分析できる。化学的効果をみるためにLeedeyコンドライトの値で、土器試料中のそれを割り規格化した。コンドライトで規格化した希土類元素の分布パターンは、土器胎土の原材料である粘土の成因の違いを反映して特徴的な分布を示す場合もあり、土器を出土した遺

表１　定量に用いた核種のエネルギーと半減期

元素	核種	半減期	γ線エネルギー(keV)
Na	^{24}Na	15.0 h	1369
La	^{140}La	40.2 h	1596
Sm	^{153}Sm	47.1 h	103
U	^{239}Np	2.35d	106
Yb	^{175}Yb	4.20d	396
Lu	^{177}Lu	6.7 d	208
Ba	^{131}Ba	12.0 d	496
Rb	^{86}Rb	18.7 d	1076
Th	^{233}Pa	27.0 d	312
Ce	^{141}Ce	32.5 d	145
Hf	^{181}Hf	42.3 d	482
Fe	^{59}Fe	45.0 d	1292
Sc	^{46}Sc	83.8 d	1121
Cs	^{134}Cs	2.10y	795
Co	^{60}Co	5.26y	1333
Eu	^{152}Eu	12.2 y	1408

表２　縄文土器の化学組成

遺跡名称	南貝塚遺跡 加曽利貝塚	文六第一遺跡 土気町	餅ケ崎遺跡 源町	芳賀輪遺跡 野呂町	荒屋敷遺跡 貝塚町
点数	10	5	5	5	5
Na_2O (%)	0.97	0.79	0.40	0.79	1.11
Fe_2O_3	6.56	5.44	4.62	4.52	5.16
Sc(ppm)	31	28	28	27	31
Co	18	11	9.6	11	16
Rb	52	31	70	43	58
Cs	2.2	2.2	1.4	1.5	2.2
Ba	630	330	350	470	470
La	12	12	13	12	17
Ce	34	30	31	28	40
Sm	2.8	2.8	3.2	3.0	3.3
Eu	1.1	0.95	1.0	0.91	0.88
Yb	1.7	1.7	1.6	1.8	1.6
Lu	0.30	0.30	0.27	0.21	0.29
Hf	4.5	3.7	4.1	3.1	3.8
Th	6.0	5.3	5.6	4.4	6.3
U	1.2	1.7	1.3	1.2	1.6

跡の識別や原料粘土の産地の推定に有用な情報を与える可能性が期待されている。第1図にこれら縄文土器の希土類元素の分布パターンを示す。縄文土器の希土類元素の分布パターンは、ランタン Laやセリウム Ceなどの軽希土に富む分布型を示していることが分かる。土器間で濃度差を示す微量元素には、コバルト Coなどがある。

土器の主成分は、ケイ素Si、ナトリウムNa、カリウムK、カルシウム Ca、マグネシウム Mg、アルミニウムAl、チタン Ti、鉄 Fe、マンガン Mnであり、化学組成は慣習として酸化物で表現される。土器の元素濃度の変動を、原材料の相違という観点から眺めてみよう。前回、縄文土器の原材料の組成の相違を検討する目的で、加曽利貝塚博物館で縄文土器の再現実験に用いられている再現土器の胎土の分析を行った。再現土器の胎土の原材料である粘土や、砂、土壌などの分析では、腐植土や赤色粘土は鉄 Feに富み、砂はナトリウム Naに富んでいることが分かる。今回分析した縄文土器では、主成分であるナトリウム Naや鉄 Feの元素濃度の変動は大きい。これは、土器の胎土の粘土の種類の相違や原材料の配合率の違いを表わしているものと考えることができる。また第2図に示すように、鉄 Feとコバルト Co間には正の相関が認められている。

(2) 産地の推定

近年土器に関する考古学の分野の重要な取り組みのひとつに、土器が作られた場所を自然科学の手法を用いて特定しようとする、いわゆる産地の推定と呼ばれている試みがある。土器の産地推定の方法には、同位体比測定に基づく方法と、元素濃度の差異に基づいて識別しようとする方法とがある。

元素濃度の差異に基づいて土器の産地を推定する方法では、検討すべきいくつかの問題点がある。元素の存在度に関しては、人工遺物である土器は天然に産出する物質のようには自然法則の完全な支配を受けている訳ではないということである。したがって、同一遺跡で出土する土器間での元素濃度は必ずしも均質であるとはかぎらない。同一遺跡で出土する土器間の元素濃度が変動を示す理由を考えてみよう。いくつかの理由があげられるが要約すると、次のようになる。

1) つくり手の個性で胎土中の粘土や砂などの原料の配合率が微妙に異なる場合があること。
2) 砂や土壌の胎土中の配合率が土器が製作された時期毎に異なる場合があること。
3) 遺跡毎に必ずしも粘土の採取地が特定場所に定まっている訳ではない。
4) 原料粘土が他の地域から運搬された可能性があること。
5) 土器自体が運搬されてきた可能性があること。

などが考えられる。

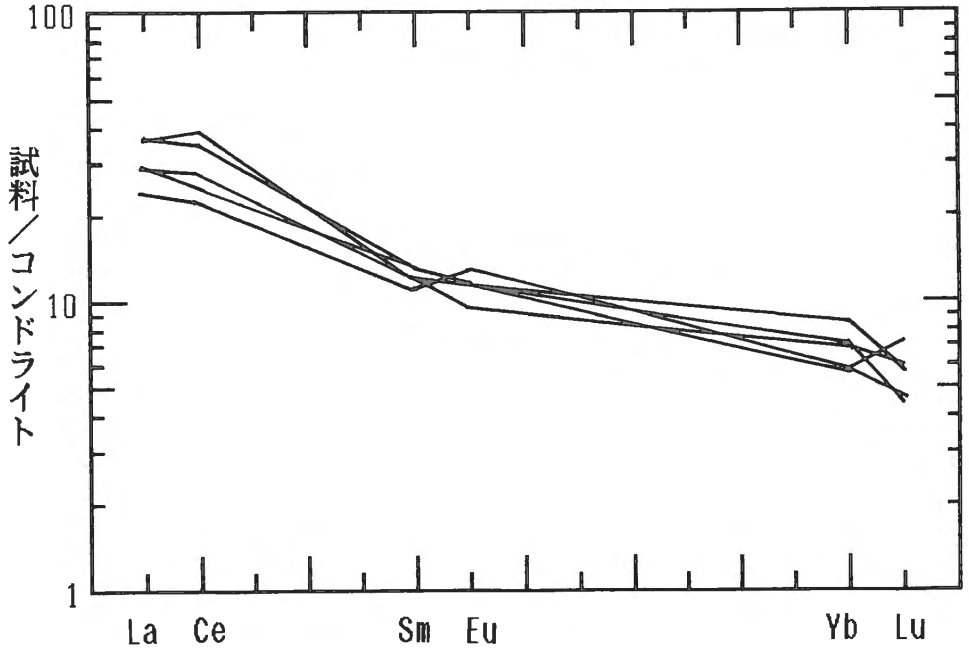

図１　縄文土器の希土類元素の分布パターン

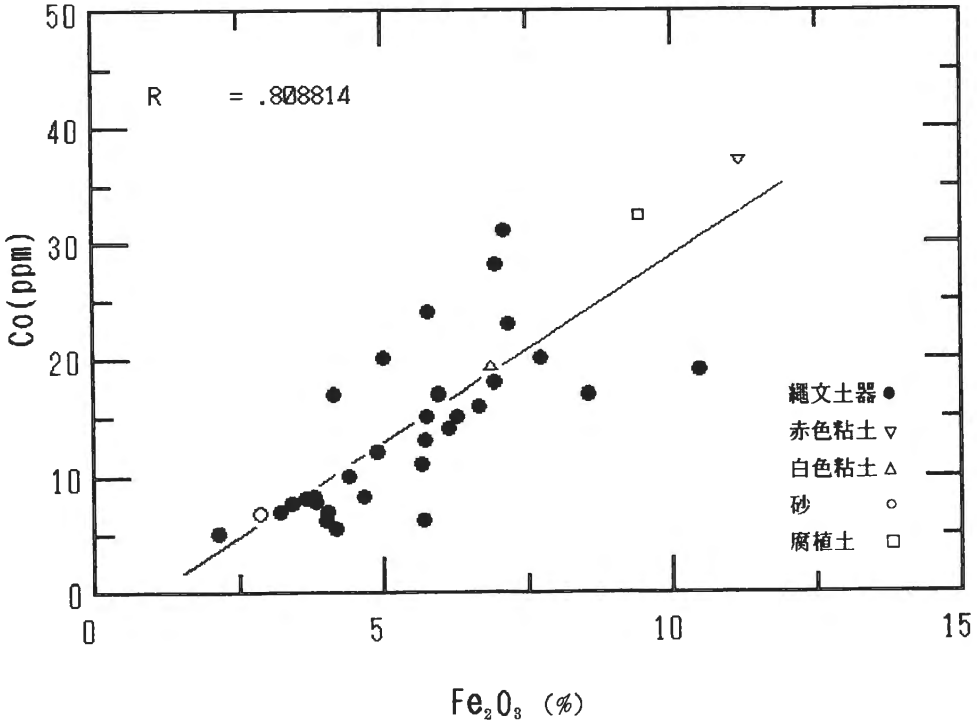

図２　縄文土器のFe－Coの散布図

こうしたことが元素濃度の差異に基づく土器の識別を比較的困難なものにしている。したがって、同一遺跡で出土する多数の土器間の多数の元素の濃度変動について詳細に検討しておくことは、産地推定の基本的な問題としてきわめて重要である。土器の胎土は遺跡の付近で産出する特定の場所からの粘土を用いている場合が多いという前提で、同一遺跡で出土する土器の化学組成が概して均質であるとして、産地推定の議論を進めることは錯誤する虞れすらある。元素濃度の差異に基づいて土器の産地を識別しようとする方法では、異なる遺跡で出土した土器間では有意な差を示すが同一遺跡の土器間では均一である指標元素を見出すことがその中心課題である。本紀要の第１３号に詳細に示したが、製作年代や出土遺跡が異なる縄文土器間で濃度差を示す元素には、土器の胎土原料の相違によって生じるものと推察される主成分の鉄Ｆｅ、ナトリウム Na 、アルミニウム Al 、微量元素のルビジウム Rbやセシウム Cs などのアルカリ金属、および希土類元素などがある。

原子番号が等しく質量数が異なる元素を同位体と呼ぶ。同位体比は、地球上ではきわめてよく一致しているが一部の元素で同位体変動が観測される。ストロンチウム Sr の同位体分析は土器胎土の粘土の起源について有用に情報を得ることができるので、土器の産地推定の問題を解明するのに期待できる手法である。これらは今後の課題のひとつであるが、ストロンチウム Sr の同位体分析を応用することで、土器の産地推定の研究は問題解明に向けてより進歩していくものと思われる。

＜参考文献＞

1) 富沢　威、庄司　克、薬袋佳孝、富永　健：貝塚博物館紀要**１３**、13(1986)

2) 富沢　威、佐藤春雄、富永　健：古文化財の科学**２７**、29(1982)

3) 富沢　威、薬袋佳孝、富永　健：第29回放射化学討論会講演（1985年5月、津田沼）

4) 富沢　威、富永　健：第28回放射化学討論会講演（1984年10月、神戸）