

長野県霧ヶ峰地域における黒曜石原産地試料の元素分析と 広原遺跡群の黒曜石製石器の原産地解析（予報）

隅田 祥光^{1*}・土屋 美穂²

要 旨

2011年度から2013年度にかけて長野県霧ヶ峰地域に位置する広原遺跡群周辺の黒曜石原産地調査を実施した。調査では地質学的に露頭と判断できる原地性の原産地と、それを供給源とする河床礫などの異地性の原産地を区別しながら試料採取を行い、持ち帰った試料は地理的・地質学的な産状の情報を取りまとめたうえで、黒曜石原産地試料のアーカイブとして明治大学黒曜石研究センターにて整理・保管した。次に、原産地ごとの代表的な試料を一点抽出し、波長分散型蛍光X線分析装置を用いたガラスビード法（破壊法）による定量分析を実施し、それらの元素組成のデータベースを構築した。元素組成に基づく分類では、原産地試料は大きく7つのタイプに分けられ、さらに幾つかのタイプに細分できることが明らかとなった。これら結果をもとに広原II遺跡から出土した1点の黒曜石製石器（剥片）の原産地解析を試みた。分析は原産地試料と同様、波長分散型蛍光X線分析装置を用いたガラスビード法で実施した。結果、この黒曜石製石器の原産地は、原地性の原産地に限ると、霧ヶ峰地域内の鷹山もしくは東餅屋であることが示された。

キーワード：霧ヶ峰地域、広原遺跡群、黒曜石原産地、波長分散型蛍光X線分析装置、定量分析

1. はじめに

明治大学黒曜石研究センターでは、2011年度から2013年度にかけて広原遺跡群の発掘調査を実施した（明治大学黒曜石研究センター2013, 2014）。広原遺跡群は長野県霧ヶ峰地域の広原湿原の周辺に位置する後期旧石器時代から縄文時代にかけての遺跡群であり、この周辺地域からは30カ所を超える黒曜石原産地が報告されている（例えば、和田村教育委員会1996; 及川ほか2013, 2014）。素材・半製品・完成形態の石器の起点と終点の明示は、黒曜石の獲得・製作・流通をめぐる人類集団の活動史を明らかにしていく上での重要な情報源となる（小野2011）。このため、広原遺跡群から出土した黒曜石製石器の原産地解析は、本州中部高地を中心とした先史時代における人類の黒曜石原産地の開発から石器製作と消費に至る背景となる、社会・文化・環境を明らかに

する上での重要な要素となる（明治大学黒曜石研究センター2013; 及川ほか2014）。

本研究では、霧ヶ峰地域における黒曜石原産地の野外調査を実施し、地理的・地質学的な状況を把握したうえで、黒曜石の原石試料の採取と収集を実施した。そして、明治大学黒曜石研究センター設置の波長分散型蛍光X線分析装置による定量分析法を更新したうえで、原産地ごとに代表的な石質試料を選び出し、元素分析を実施した。さらに、同じ分析手法で、広原遺跡群の発掘調査により出土した黒曜石製石器（1点）の定量分析を実施し、地球化学的な手法に基づいた原産地解析を試みた。

2. 霧ヶ峰地域における黒曜石原産地の産状

霧ヶ峰地域における黒曜石原産地は、和田峠流紋岩と鷹山火山岩類の分布と密接に関連し、これらは、0.85Ma～1.15Ma（Kaneoka and Suzuki 1970; 北田ほか1994）

1 長崎大学教育学部地学教室
〒852-8521 長崎県長崎市文教町1-14
2 明治大学黒曜石研究センター
〒386-0601 長野県小県郡長和町大門3670-8
* 責任著者：隅田祥光（geosuda@nagasaki-u.ac.jp）

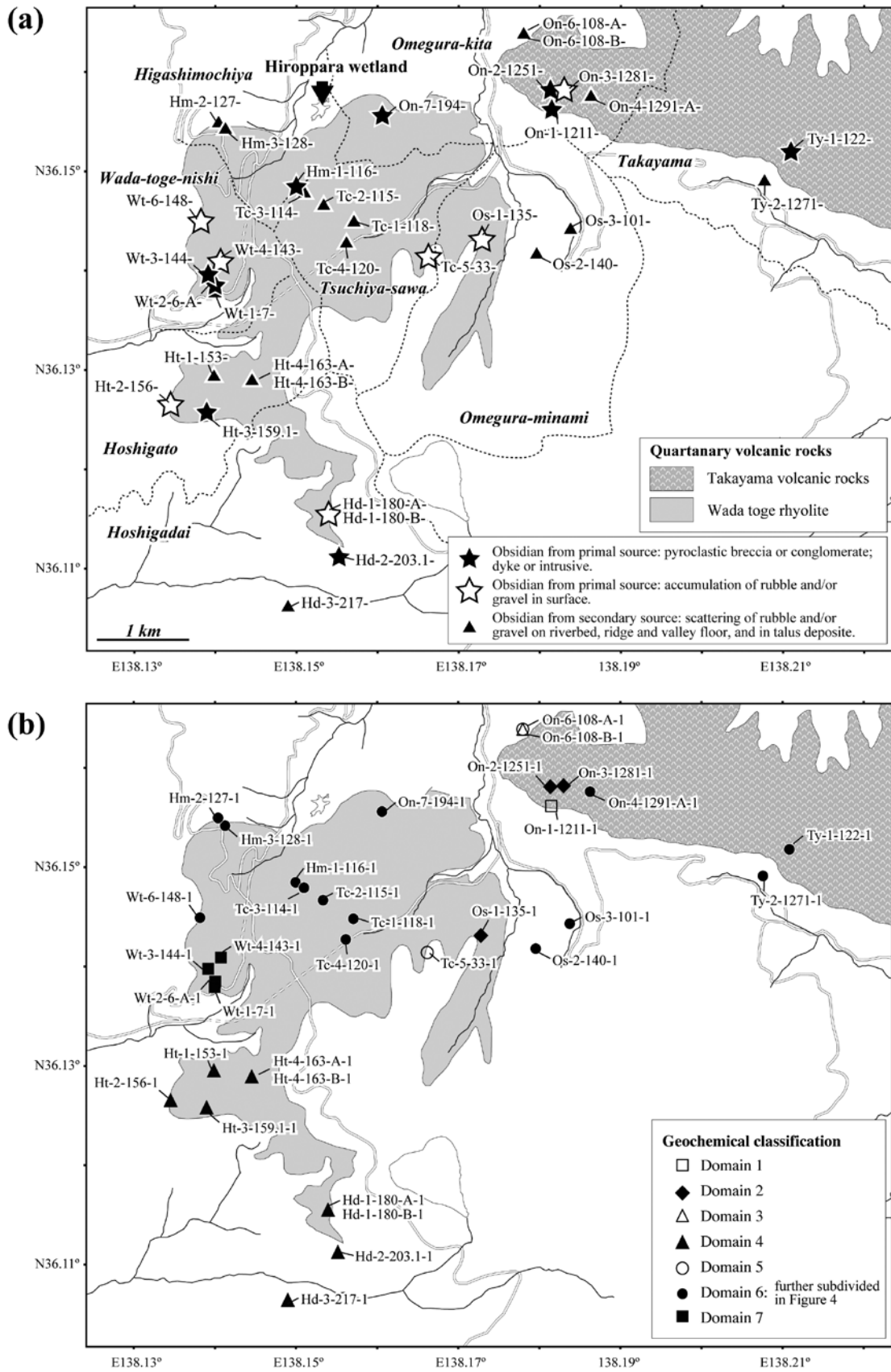


図1 (a) 本研究における霧ヶ峰地域の地域区分と黒曜石原産地の分布。

(b) 元素組成に基づいて分類された原産地試料のタイプ (Domain: 図2) ごとの分布の様子。

鷹山火山岩類・和田峠火山岩類の分布範囲は、沢村・大和 (1953), 諏訪教育会編 (1975), 山崎ほか (1976), 熊井ほか (1994), 中井ほか (2000), Oikawa and Nishiki (2005) を取りまとめた。

の第四紀における火山活動により形成された流紋岩を主とした、溶岩・火山砕屑岩に由来するとされる（図 1a: 沢村・大和 1953; 諏訪教育会編 1975; 山崎ほか 1976; 熊井ほか 1994; 中井ほか 2000; Oikawa and Nishiki 2005）。黒曜石は一般的にガラス質な石基が卓越した流紋岩質組成を持った火山岩であり火道、岩脈、溶岩、火山砕屑岩中に産する。霧ヶ峰地域において火道や岩脈として産するものは林道の切り通しや採石場において確認され（図 1a: On-1-1211, Hm-1-116, Wt-2-6-A, Wt-3-144, Ht-3-159.1）、黒曜石の礫を含む火山砕屑性の角礫岩や礫岩の露頭もいくつか確認することができる（図 1a: Ty-1-122, On-2-1251, On-7-194, Hd-2-203.1）。また、表層の転石として産するものの中にも、特に尾根の斜面や鞍部に数百点以上の細礫から大礫が集中して分布するような地点は、火道や岩脈の露頭の直下もしくは直上であると判断され、これらは全て地質学的な黒曜石の原産地（原地性原産地）と判断できる（図 1a: On-3-1281, Os-1-135, Tc-5-33, Wt-4-143, Wt-6-148, Hd-1-180-A, Hd-1-180-B）。地質図は、基本的にこのような原地性の岩石の分布範囲を示すものである。一方、河床礫、谷や山の斜面における表層上の転石、崖錐中の礫は、原地性のものを供給源とした異地性の岩石であり、このようなものの分布範囲は、通常、地質図上には反映されない。

石器の原材料を獲得することのできる原産地は、考古学的には原地性の岩石、異地性の岩石の両方が含まれる。このため、本研究では、地質学的な原地性原産地に対し、異地性の岩石から成る原産地のことを異地性原産地と呼ぶこととした。ただし、異地性原産地において注意しなければならないことは、例えば現在の河床で黒曜石の礫の集中が見られるとしても、それが近代・現代の採掘現場や道路工事現場から流出したものであれば、旧石器時代から縄文時代にかけての原産地とはもちろん言えない。さらに、地質学的に原地性に近いものと判断できる尾根や鞍部における数百点以上の黒曜石の集中地点においても、しばしば、剥片や石核などの石器が同時に確認され、石器だけでなく原石試料の全てを原地性とす

る訳にはいかない（図 1a: Tc-5-33 など）。

これらのことから、本研究ではまず黒曜石の産状を地質学的に原地性と判断できるものと、異地性と判断でき

るものとに区別したうえで、原地性のものはさらに露頭と表層集中（石器有り、石器無し）に区別し、石器を含む表層の黒曜石集中の地点においては、その地点で最も卓越した石質の原石のみを取り扱うこととした。なお、野外調査において採取された石器については、及川ほか（2014, 2015）で詳しく報告されている。

3. 黒曜石原産地試料の収集と整理の方法

霧ヶ峰地域における黒曜石原産地名については、これまでの研究において既に様々な名称がつけられているが（例えば、和田村教育委員会 1996）、それらが本研究の図 1 に示す原産地のどの地点に相当するものであるかを正確に把握することは難しい。また、野外調査により新たな原産地が発見された場合、そのたびに地点の名称つけていくことは、将来的に大きな混乱を招く恐れがある。よって、本研究では、原産地の地点や試料は、以下のルールに従って整理していくこととした。

黒曜石原産地は、数 m から数十 m 四方のおおよそのまとまりを持った分布範囲、露頭に対して決定し、図 1a に示す地域（鷹山: Takayama, 男女倉北: Omegura-kita, 男女倉南: Omegura-minami, 東餅屋: Higashimochiya, ツチャ沢: Tsuchiya-sawa, 和田峠西: Wada-toge-nishi, 星ヶ塔: Hoshigato, 星ヶ台: Hoshigadai）ごとに原産地の確認が完了した順に番号をつけた。そして、地域名のアルファベットを用いた略記号（鷹山: Ty, 男女倉北: On, 男女倉南: Os, 東餅屋: Hm, ツチャ沢: Ts, 和田峠西: Wt, 星ヶ塔: Ht, 星ヶ台: Hd）の後に、ハイフンでその番号をつないだ。例えば、図 1a に示す Hd-1-180-A- は Hd-1 までが原産地を表し、星ヶ台において一番目に確認した原産地であるということの意味する。その後の -180-A- は、以下の GPS 番号と石質の多様性を意味する。

原産地の確認地点では、携帯型 GPS (Garmin eTrex20J) を用いた経度緯度の測定を実施し、そこで 1 点以上の試料を採取した。試料の採取地点では、同時に経度緯度の測定時に格納される番号 (GPS 番号) を記録し、また、原産地が広範囲に及ぶ場合は、数カ所で、経度緯度を測定しながら試料採取を行い、GPS 番号ご

とに試料を小袋に入れ持ち帰った。さらに、同じ GPS 番号の小袋の中で、複数種の石質が確認される場合（例えば、透明、漆黒など）は、A、B という記号をつけて区別した。例えば On-6-108-A という番号の試料は On-6 という原産地に帰属するもので、試料採取を行った場所の GPS 番号が 108 である。さらに、この採取場所では複数の石質の黒曜石がみられ A と区別したものであることを意味する。なお、この手法では GPS 番号で、採取した試料を地点ごとに区別していくことができるため、採取した全ての試料個体には採取地点を示す GPS 番号を可能な限り注記し、番号ごとに小箱に入れ保管することとした。

次に、GPS 番号が記された小箱から、それぞれの原産地における代表的な石質試料を 1 個体以上抽出し、黒曜石製石器の原産地解析を実施するための基準試料とした。なお、基準試料には、抽出した個体順に番号をつけ、専用の小箱で保管することとした。例えば、図 1b に示す On-6-108-A-1 は、On-6-108-A と整理された複数の試料個体から、基準試料として一番目に抽出した個体であることを意味する。

4. 波長分散型蛍光 X 線分析装置を用いた定量分析

4-1 分析法と基準試料

明治大学黒曜石研究センター（長野県長和町）設置の波長分散型蛍光 X 線分析装置（WDXRF; Rigaku Primus III+）を用い、霧ヶ峰地域の黒曜石原産地において採取した試料から抽出した基準試料についての元素分析（定量分析）を実施した。分析は、隅田（2013）に示される、希釈率 5.0000 のガラスビードを用いた FP 法（Fundamental Parameter method）を適用した。分析元素は主要元素（Si, Ti, Al, Fe, Mg, Mn, Ca, Na, K, P）、微量元素（Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Th）とした。なお、主要元素の分析法は、隅田（2013）に示されるものと同じであるが、本研究では、主要元素・微量元素を一度に測定する新たなルーチン（分析装置への格納コード：SobMT5.0FP）を立ち上げたため、その分析法について解説する。

定量分析を実施するための標準試料（SRM：Standard reference material）として、産業技術総合技術研究所（AIST）発行の JA-1, JA-2, JA-3, JG-1a, JG-2, JG-3, JR-1, JR-2, JR-3, JF-1, JF-2、および United States Geological Survey（USGS）発行の GSP-2 と AGV-2 を用いた。分析値の信頼性（正確度）を評価する標準試料として、National Institute of Standards and Technology（NIST）発行の SRM278（obsidian）を用いた。これら標準試料の推奨値は Imai et al. (1995), および Potts et al. (1992) に従った。また、本分析法は、黒曜石試料を分析対象とするため二酸化ケイ素（SiO₂）が 56wt.% 以上の安山岩質から流紋岩質組成の標準試料のみを用いることとした。

4-2 試料調整

4-2-1 粉末化

元素分析では分析を行う前に何を目的に何の分析値を得ようとしているのかを明確にし、適切な試料処理を実施する必要がある。例えば、岩石の全岩分析を実施する場合、粉末化した試料が分析対象とする岩石の全岩という条件を十分に満たすものであるか、特に不均質な試料、粗粒鉱物により構成される花崗岩などを対象とする際は十分に注意し、試料の状態に応じた処理法を考える必要がある。黒曜石は、主にガラス質な石基、球顆、斑晶（鉱物）により構成され、特に斑晶や球顆は黒曜石中ではきわめて不均一に含まれている場合が多い。このため、斑晶や球顆を多く含む試料の全岩という条件を満たした粉末試料を作製するためには、数百 g 程度の個体試料が必要であろうと考える。一方で、ガラス質な石基を分析対象とする場合は、基本的にこの部分の組成は均質であると考えられるため数十 g 程度の個体試料があれば十分であろうと考える。

本研究では、試料個体によっては十分な全岩を満たすだけの量がないため、また、黒曜石の非破壊法でのエネルギー分散型蛍光 X 線分析装置（EDXRF）を用いた元素分析においては、可能な限り斑晶を含まない石基の部分进行分析対象としてさえいけば、本研究で示す分析結果とも、対比していくことができるため、ここではガラス質な石基のみを分析対象とすることとした。

分析対象とした試料は、球類や斑晶が含まれるか含まないかに関わらず、石質・形・礫面・大きさなどを記録した後、WDXRFによる定量分析を破壊法で実施するために、岩石カッターやハンマーを用い分割した。分析に必要な量を確保した後に残った試料個体は、小箱に戻し、保管することとした。これら試料個体は、EDXRFを用いた非破壊法での元素分析に基づいた原産地解析法を立ち上げるために必要な、黒曜石原産地の基準試料として使用することができる。

球類や斑晶をほとんど含まない試料の場合、分割した試料は、表面を#600のグラインダーで研磨し、風化面や切断ブレードの塗料を削り落とした状態にし、その全てを分析対象とした。一方、球類や斑晶を含む試料の場合、合計100g程度、試料を分割し、表面を#600のグラインダーで研磨した後、鉄乳鉢を用いて粗砕きした。砕いた試料は、ふるいで3.5～12 meshの破片と12 mesh未満の粉に分け、3.5～12 meshの破片の中から、分析対象とする破片を合計10g程度になるまで、実体顕微鏡下で球類、風化（水和）面が含まれないことを確認しながら拾い集めた。

分析対象として分割、ないし集められた破片は、テフロンビーカーに入れ水道水で2～3回、RO（Reverse Osmosis）水で1回、超純水で1回、それぞれの過程で最低3回濯ぎながら超音波洗浄機を用い洗浄した。そして、テフロンビーカーとともに定温乾燥機に入れ110℃で1～2時間程度乾燥させた。完全に乾いたことを確認し、粒径が5mm以上のものは、さらに、高純度アルミナ乳鉢（ $Al_2O_3 > 99.9\%$ ）で粗砕きをした後、瑪瑙製の電磁式実験用微粒粉碎機（振動ミル：Fritsch P-0）で2～3分、瑪瑙製の石川式攪拌搗潰機（AGB型）で2～3分粉碎し、完全に粉末化させた。粉末試料は超純水で洗浄したガラス製の試料瓶に入れ保管した。

4-2-2 ガラスビードの作製

ガラスビードを作製するための前処理として、粉末試料は定温乾燥機を用い110℃で6時間以上加熱し吸着水（ H_2O ）を取り除いた。また、試薬類も同様、融剤（Merck Spectromelt A12）はマッフル炉を用いて450℃で4時間以上、酸化剤（ $LiNO_3$ ：和光純薬特級）は110℃で6時

間以上加熱し、吸着水を完全に取り除いておくこととした（柚原・田口2003）。さらに、秤量作業を実施する室内が乾燥している場合（特に湿度が35%以下の場合）は、イオナイザー（A&D: AD-1683）を用い、粉末試料と秤量皿上の静電気を取り除く処理をした。

秤量皿を分析用電子天秤にセットし、まず、粉末試料を0.9000～0.9002g秤量した。次に秤量皿を取り替え、希釈率（試料の重量/融剤の重量）が5.0000（ ± 0.0001 ）になるよう融剤を秤量した。例えば0.9001gの試料を秤量した場合、融剤は4.5005g（ ± 0.0001 ）秤量する。さらに融剤上に、添加比（ $=0.217 \times \text{酸化剤の重量} / \text{試料重量}$ ）が0.065（ ± 0.001 ）になるよう酸化剤を秤量する。例えば、0.9000gの試料を秤量した場合、酸化剤は0.270g（ ± 0.005 ）秤量する。秤量された融剤と酸化剤は、秤量済みの試料が入った秤量皿に移し入れ、マイクロスパチュラで混ぜ合わせた後、その全てを白金のつぼに移し入れた。そして、ヨウ化リチウム（LiI：和光純薬特級）5%の剥離剤をスポイトで3滴入れ、高周波溶融装置にセットし溶融を行った。溶融条件は、隅田（2013）に従った。また、ガラスビードが三日月状になった場合や、冷却中に亀裂が入った場合は同じ条件で再溶融を行った。白金のつぼは10回程度の使用ごとにクエン酸溶液で洗浄し、その度に高周波溶融装置で空焼きした。

4-3 測定条件の設定

主要元素と微量元素についての各測定線における分析装置の設定条件を表1に示す。全ての測定線で、管球への印加電圧は50kV、電流は50mAとし、測定位置の設定、測定時間（Dwell time）の設定、測定線の重なりスペクトルによる測定強度・分析値の補正は、隅田ほか（2010, 2011）、Suda（2012, 2014）、隅田・本吉（2011）、隅田（2013）、Suda et al.（2014）を準用した。測定時間はいち試料あたり約45分である。

4-4 分析値の評価

本分析法による標準試料の分析値と検出限界を表2に示す。検出限界は、隅田（2013）と同様、リガク（1982）に従い標準試料の測定値、標準値、測定時間から算出した。正確度（Accuracy）は、Rbにおいて5ppmを越え、

表1 測定スペクトルと蛍光X線分析装置の設定条件

Line	Overlap	Filter	Crystal	Slit	Counter	Angle (deg)			PHA			
						Dwell time (sec)			lower	upper		
						Peak	BG1	BG2				
Si-Kα	-	out	PET	S4	PC	109.070 8	106.080 2	111.900 2	100	450		
Ti-Kα	-	out	LiF1	S2	SC	86.134 60	87.978 30	84.904 30	90	385		
Al-Kα	-	out	PET	S4	PC	144.800 8	147.960 2	139.140 2	100	450		
Fe-Kα	-	Al125	LiF2	S2	SC	85.744 10	83.080 4	- -	100	345		
Mn-Kα	-	Al125	LiF1	S2	SC	62.960 60	62.182 30	63.664 30	105	310		
Mg-Kα	-	out	RX25	S4	PC	37.956 80	39.696 40	40.982 40	115	410		
Ca-Kα	-	out	LiF1	S4	PC	113.102 10	109.760 4	- -	110	490		
Na-Kα	-	out	RX25	S4	PC	46.128 60	43.990 10	48.230 10	100	400		
K-Kα	-	out	LiF1	S4	PC	136.666 10	129.240 4	144.590 4	100	445		
P-Kα	-	out	Ge	S4	PC	141.104 80	137.932 40	143.238 40	155	440		
Zn-Kα	-	Al125	LiF1	S2	SC	41.780 140	41.418 70	42.150 70	100	300		
Rb-Kα	-	Ni40	LiF2	S2	SC	37.980 80	37.568 40	38.866 40	100	270		
Sr-Kα	-	Ni40	LiF2	S4	SC	35.844 80	35.348 40	36.356 40	100	300		
Y-Kα	Rb-Kβ1	Ni40	LiF2	S4	SC	33.884 120	33.512 60	34.298 60	100	295		
Zr-Kα	Sr-Kβ1	Ni40	LiF2	S4	SC	32.084 80	29.888 40	30.926 40	31.592 40	32.876 40	100	300
Nb-Kα	Y-Kβ1; Nb-Lβ1	Ni40	LiF2	S4	SC	30.424 80	29.888 40	30.926 40	31.592 40	32.876 40	100	300
Th-Kα	-	Ni40	LiF2	S4	SC	39.214 280	38.882 140	39.966 140	100	290		

表2 標準試料の分析値, 正確度, 検出限界

	JA-1	JA-2	JA-3	JG-1a	JG-2	JG-3	JR-1	JR-2	JR-3	JF-1	JF-2	JSy-1	AGV-2	GSP-2	*Acc.	**lld
<i>in wt.%</i>																
SiO ₂	64.33	56.72	62.28	72.39	77.26	67.41	75.50	75.51	72.62	67.05	65.71	60.17	59.28	66.53	0.244	0.0108
TiO ₂	0.85	0.67	0.69	0.25	0.05	0.48	0.11	0.06	0.22	0.01	0.01	0.00	1.05	0.67	0.006	0.0008
Al ₂ O ₃	15.24	15.48	15.75	14.22	12.59	15.45	12.84	12.69	11.99	18.19	18.66	23.17	16.77	14.89	0.098	0.0078
T-Fe ₂ O ₃	7.00	6.34	6.57	2.00	0.95	3.67	0.90	0.76	4.71	0.09	0.07	0.09	6.74	4.92	0.037	0.0016
MnO	0.16	0.11	0.11	0.06	0.02	0.07	0.10	0.11	0.08	0.00	0.00	0.00	0.10	0.04	0.003	0.0002
MgO	1.52	7.75	3.64	0.71	0.05	1.77	0.14	0.06	0.06	0.03	0.03	0.02	1.75	0.96	0.038	0.0011
CaO	5.67	6.35	6.28	2.13	0.69	3.73	0.69	0.51	0.09	0.91	0.10	0.26	5.17	2.09	0.023	0.0020
Na ₂ O	3.86	3.09	3.22	3.39	3.57	4.03	3.97	4.00	4.76	3.25	2.45	10.74	4.19	2.80	0.054	0.0203
K ₂ O	0.72	1.72	1.37	3.99	4.69	2.61	4.48	4.52	4.33	10.30	12.68	4.88	2.87	5.43	0.130	0.0015
P ₂ O ₅	0.16	0.15	0.12	0.08	0.01	0.13	0.02	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.48	0.29	0.005	0.0005
total	99.50	98.38	100.02	99.21	99.88	99.35	98.74	98.22	98.87	99.85	99.71	99.35	98.39	98.61		
<i>in ppm</i>																
Zn	92.6	62.6	68.0	36.7	12.1	45.6	29.8	27.5	210	4.3	1.9	5.6	90.3	117	2.01	0.15
Rb	14.1	71.4	39.2	182	295	71.1	257	308	457	269	201	65.5	70.4	249	5.97	0.52
Sr	270	251	294	188	17.5	373	29.8	9.1	11.1	164	193	19.7	658	246	4.86	1.02
Y	29.3	17.7	20.8	32.5	85.4	17.2	44.1	48.2	168	5.1	2.1	3.7	21.8	29.5	1.56	0.06
Zr	87.4	112	116	123	106	149	94.6	92.3	1498	39.6	13.1	68.2	228	544	4.78	0.48
Nb	2.1	8.8	4.4	11.4	15.6	6.5	15.2	16.9	511	1.3	0.4	1.5	12.8	27.3	1.06	1.05
Th	0.8	3.8	1.8	15.1	32.5	9.7	25.1	31.0	111	n.d.	0.6	0.7	7.1	106	1.26	0.03

*: accuracy; ** lower limit of detection

Sr と Zr において 4ppm を超えるが標準試料の平均の値 (Sr: 195ppm; Zr: 234ppm) に対しては、いずれも 5% 以下であるため、本分析法に問題があるとは判断しない。また、得られた分析値が検出限界の値よりも低い場合は、<lld (lld: lower limit of detection) と表記することとした。標準試料である SRM2748 と JR-1 の繰り返し測定によ

る分析値 (Average) と推奨値 (Potts et al. 1992; Imai et al. 1995) の差 (diff.%), および分析値の分散の程度 (CV%: Coefficient of variation) を表 3 に示す。MgO では推奨値との差が 10% を越え、分散の程度も 5% を超える。また、Zr では推奨値との差が 5% を超えるものの分散の程度は 2% 以下である。すなわち、本手法で特

表 3 分析管理に使用する試料の分析値

	SRM278					JR-1				
	Potts et al. (1992)	Average (n=5)	2σ (n=5)	CV% (n=5)	*diff.%	Imai et al. (1995)	Average (n=6)	2σ (n=6)	CV% (n=6)	*diff.%
<i>in wt.%</i>										
SiO ₂	73.05	72.36	0.15	0.21	0.94	75.41	75.44	0.17	0.22	0.04
TiO ₂	0.25	0.24	0.00	0.00	4.00	0.10	0.11	0.00	0.00	10.00
Al ₂ O ₃	14.15	14.08	0.07	0.53	0.49	12.89	12.86	0.09	0.67	0.23
T-Fe ₂ O ₃	2.04	2.08	0.01	0.68	1.96	0.96	0.90	0.02	1.67	6.25
MnO	0.05	0.05	0.00	0.00	0.00	0.10	0.10	0.00	0.00	0.00
MgO	0.23	0.26	0.02	6.88	13.04	0.09	0.14	0.02	10.75	55.56
CaO	0.98	0.99	0.00	0.00	1.02	0.63	0.69	0.01	1.50	9.52
Na ₂ O	4.84	4.77	0.02	0.48	1.45	4.10	3.99	0.07	1.69	2.68
K ₂ O	4.16	4.13	0.01	0.34	0.72	4.41	4.47	0.03	0.72	1.36
P ₂ O ₅	0.04	0.04	0.00	0.00	0.00	0.02	0.02	0.00	0.00	0.00
total	99.79	99.00			0.79	98.71	98.72			0.01
<i>in ppm</i>										
Zn	54.0	48.9	0.4	0.7	9.44	30	29.2	1.7	5.9	2.67
Rb	127	131	1.4	1.1	3.15	257	258	3.7	1.4	0.39
Sr	63.5	66.3	0.4	0.5	4.41	30	30.0	1.0	3.4	0.00
Y	41	40.1	1.0	2.6	2.20	46	43.9	0.8	1.9	4.57
Zr	295	274	0.9	0.3	7.12	102	95.1	1.8	1.9	6.76
Nb	16	16.3	1.2	7.1	1.88	15.5	15.2	0.8	5.3	1.94
Th	12.4	11.9	0.4	3.0	4.03	26.5	25.9	1.2	4.5	2.26

*: | Potts et al. (1992); Imai et al. (1995) - Average (n=5; 6) | / Potts et al. (1992); Imai et al. (1995)

	RGr					RGr				
	Suda & Motoyoshi (2011)	Average (n=5)	2σ (n=5)	CV% (n=5)	**diff.%	Suda & Motoyoshi (2011)	Average (n=5)	2σ (n=5)	CV% (n=5)	**diff.%
<i>in wt.%</i>										
SiO ₂	58.27	58.27	0.14	0.24	0.00	71.81	71.61	0.15	0.21	0.28
TiO ₂	0.11	0.11	0.00	0.00	0.00	0.04	0.04	0.00	0.00	0.00
Al ₂ O ₃	15.50	15.56	0.06	0.37	0.39	15.51	15.40	0.04	0.25	0.71
T-Fe ₂ O ₃	7.84	7.83	0.02	0.26	0.13	2.14	2.14	0.01	0.42	0.00
MnO	0.22	0.22	0.00	0.00	0.00	0.19	0.19	0.00	0.00	0.00
MgO	7.98	7.81	0.04	0.46	2.13	0.11	0.13	0.01	10.88	18.18
CaO	5.40	5.35	0.01	0.20	0.93	2.07	2.07	0.00	0.00	0.00
Na ₂ O	2.01	2.03	0.02	1.08	1.00	3.64	3.61	0.03	0.88	0.82
K ₂ O	2.03	1.99	0.01	0.45	1.97	3.92	3.91	0.00	0.00	0.26
P ₂ O ₅	0.05	0.04	0.00	0.00	20.00	0.06	0.06	0.00	0.00	0.00
total	99.41	99.21			0.20	99.49	99.16			0.33
<i>in ppm</i>										
Zn	50.4	49.2	0.6	1.2	2.38	8.7	9.0	0.9	9.9	3.45
Rb	37.8	40.5	0.9	2.2	7.14	72.8	75.5	0.2	0.2	3.71
Sr	333	343	0.9	0.3	3.00	270	272	0.9	0.3	0.74
Y	60.1	59.2	0.5	0.9	1.50	98.8	94.0	0.7	0.7	4.86
Zr	131	131	1.1	0.8	0.00	251	264	0.9	0.3	5.18
Nb	n.d.	1.8	0.9	47.5	-	n.d.	2.4	0.7	28.0	-
Th	11.2	12.7	1.1	9.0	13.39	26.1	26.3	0.9	3.5	0.77

** : | Suda & Motoyoshi (2011) - Average (n=5) | / Suda & Motoyoshi (2011)

に流紋岩質組成の試料を分析する際、MgOの分析値については、その信頼性に関して注意が必要である。一方、Zrの分析値は、正確度 (*diff.*%) は5%を超えるが、精度 (分散の程度) に関しては2%以下と信頼性が高い。

4-5 ドリフト補正・分析管理用試料

未知試料分析の直前には、試料から発生する特性 X線の測定強度を補正するためのドリフト補正用の試料と、得られた分析値の信頼性を管理するための分析管理用試料の分析を実施する。いずれの試料も定量分析値の算出に用いる標準試料の測定中・直前・直後に得られた測定値や分析値を基準とするため、必ずしも推奨値が公表された標準試料を用いる必要はない。よって、ここではSRM278, JR-1とともに、隅田ほか (2010, 2011) において使用されている粉末試料 (GRb: 生駒山斑れい岩; RGr: 三橋花崗岩と生駒山斑れい岩の混合) を使用した。

ドリフト補正はSRM278, RGr, RGrbの試料を用いて実施することとした。これら試料の補基準強度は合計5回の測定値を平均化して求めた (表4)。通常、X管球の経年劣化により、得られる測定強度は徐々に低下していくため、この基準強度をもとに測定強度を補正し定量

分析値を算出する。一方、分析管理はSRM278, JR-1, RGrb, RGrの試料を用いて実施することとした。評価の基準となるこれら試料の分析値 (Average) と分析誤差 (2σ) は、5~6回の分析値から求めた (表3)。なお、通常分析管理ではSRM278とRGrのみを未知試料の直前に分析し、いずれかの試料の分析値が、上述の分析誤差の範囲であれば問題なく、もし範囲を超えるようであればドリフト補正を再実行することとした。なお、ドリフト補正と分析管理は、それぞれ専用のガラスビードを用いて実施することとした。

4-6 原産地試料の分析結果

霧ヶ峰地域の黒曜石原産地における基準試料についての定量分析結果を表5に示す。なお、分析値はいち試料につき、ガラスビードを2つ作製し、それぞれのガラスビードを1回ずつ測定し、それらの分析値の平均値とした。この手法を用いることで2つのガラスビードから得られた分析値の差が、表3に示す分析誤差 (2σ) を超えるようであれば、試料の調整中にながしらの問題があったと判断することができる。

定量分析値に基づいた黒曜石製石器の原産地解析法は、基本的には石器の分析値と、黒曜石原産地の基準試料の分析値 (表5) を比較することにある。そして、黒曜石製石器の分析値と原産地の基準試料の分析値が、どの程度の範囲で同じであれば、両者は同じ元素組成を持つものと判断できるかというのは、表3に示す分析値の精度を基礎として評価することができる。また、たとえばある特定の元素が一致したとしても、測定していない元素や、評価に加えていない元素も一致するという保証は無く、元素組成に基づいた原産地解析法においては、どのような元素やパラメーターが試料全体の元素組成を特徴づけるかを、地球化学的な解析手法によって見出す必要がある。これを明確にして初めて、元素組成の散布図に基づいた原産地解析法を確立していくことができる。

5. 地球化学的手法による黒曜石原産地の分類

5-1 分類

火成岩岩石学的なマグマプロセスの基本に立ち戻って

表4 ドリフト補正に使用する試料の測定強度

n=5	Average in kcps	$\pm(2\sigma)$ in kcps	CV %
RGrb			
Si-K α	111.21587	0.10610	0.10
Ti-K α	0.54958	0.00633	1.15
Mg-K α	6.65088	0.02882	0.43
Ca-K α	83.86889	0.11285	0.13
Na-K α	0.61903	0.00455	0.74
P-K α	0.17329	0.00215	1.24
Zn-K α	0.50519	0.00518	1.03
Sr-K α	2.34915	0.01238	0.53
RGr			
Al-K α	31.40274	0.08546	0.27
Fe-K α	10.01320	0.02682	0.27
Mn-K α	1.82029	0.01058	0.58
K-K α	66.72183	0.08482	0.13
Y-K α	0.96067	0.01154	1.20
Th-K α	0.10637	0.00251	2.36
SRM278			
Rb-K α	0.88613	0.00656	0.74
Zr-K α	3.37747	0.02639	0.78
Nb-K α	0.18976	0.01582	8.34

表5 霧ヶ峰地域における黒曜石原産地の基準試料, および広原Ⅱ遺跡から出土の黒曜石製石器 (No.2014: 剥片) の定量分析結果

	Ty-1- 122-1	Ty-2- 1271-1	On-1- 1211-1	On-2- 1251-1	On-3- 1281-1	On-4- 1291-A-1	On-6- 108-A-1	On-6- 108-B-1	On-7- 194-1	Os-1-135- 1	Os-2-140- 1	Os-3-101- 1
<i>in wt.%</i>												
SiO ₂	76.68	76.59	76.21	76.06	76.40	76.52	76.57	76.49	76.15	76.21	76.36	76.39
TiO ₂	0.07	0.07	0.17	0.15	0.15	0.08	0.10	0.13	0.07	0.15	0.08	0.09
Al ₂ O ₃	12.68	12.63	12.81	12.68	12.60	12.62	12.63	12.58	12.61	12.61	12.61	12.57
T-Fe ₂ O ₃	0.68	0.68	0.99	0.91	0.91	0.79	0.81	0.88	0.80	0.92	0.78	0.79
MnO	0.10	0.10	0.07	0.07	0.07	0.09	0.08	0.07	0.10	0.07	0.09	0.09
MgO	0.06	0.06	0.15	0.13	0.13	0.08	0.09	0.11	0.05	0.13	0.06	0.07
CaO	0.49	0.49	0.73	0.69	0.68	0.54	0.58	0.66	0.50	0.68	0.54	0.55
Na ₂ O	4.07	4.00	3.91	3.63	3.83	3.96	3.85	3.69	4.01	3.72	3.90	3.72
K ₂ O	4.67	4.84	4.71	5.06	4.84	4.84	4.89	4.99	4.79	4.94	4.90	5.15
P ₂ O ₅	0.01	0.01	0.02	0.02	0.02	0.01	0.01	0.02	0.01	0.02	0.01	0.01
total	99.51	99.47	99.77	99.40	99.63	99.53	99.61	99.62	99.09	99.45	99.33	99.43
<i>in ppm</i>												
Zn	24.9	25.5	34.9	31.3	30.2	25.9	26.5	27.7	25.2	30.8	25.5	25.6
Rb	280	281	148	161	162	265	235	178	278	167	261	251
Sr	7.1	8.1	86.4	69.2	66.5	13.1	24.0	51.6	2.1	65.7	11.5	17.6
Y	46.7	46.2	24.9	25.6	25.1	39.8	34.6	26.1	39.5	24.9	39.0	36.9
Zr	89.4	88.8	139	120	120	94.2	97.5	106	74.6	119	95.2	96.0
Nb	16.0	15.6	8.7	9.5	8.6	14.0	12.7	9.7	14.4	8.9	14.6	13.0
Th	25.5	26.1	12.6	14.2	14.2	26.2	22.9	16.7	25.9	15.8	26.2	24.9

	Tc-1- 118-1	Tc-2- 115-1	Tc-3- 114-1	Tc-4- 120-1	Tc-5- 33-1	Hm-1- 116-1	Hm-2- 127-1	Hm-3- 128-1	Wt-1- 7-1	Wt-2- 6-A-1	Wt-3- 144-1	Wt-4- 143-1
<i>in wt.%</i>												
SiO ₂	75.52	75.76	76.41	75.76	76.74	76.28	76.00	76.34	76.02	76.12	76.09	76.28
TiO ₂	0.08	0.08	0.07	0.08	0.10	0.07	0.10	0.08	0.06	0.06	0.06	0.06
Al ₂ O ₃	12.56	12.55	12.59	12.55	12.65	12.56	12.73	12.58	12.59	12.64	12.62	12.66
T-Fe ₂ O ₃	0.72	0.71	0.68	0.78	0.82	0.68	0.80	0.68	0.75	0.75	0.75	0.76
MnO	0.09	0.10	0.10	0.09	0.08	0.10	0.10	0.10	0.11	0.12	0.12	0.12
MgO	0.09	0.07	0.06	0.07	0.09	0.07	0.11	0.07	0.05	0.06	0.06	0.06
CaO	0.55	0.52	0.49	0.54	0.59	0.49	0.63	0.51	0.50	0.50	0.49	0.50
Na ₂ O	4.01	4.01	4.06	3.90	3.78	3.92	4.05	4.04	4.07	4.09	4.09	4.11
K ₂ O	4.65	4.63	4.68	4.74	5.00	4.90	4.64	4.68	4.61	4.61	4.59	4.58
P ₂ O ₅	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.02	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
total	98.28	98.44	99.15	98.52	99.86	99.08	99.18	99.09	98.77	98.96	98.88	99.14
<i>in ppm</i>												
Zn	26.6	26.3	25.8	25.8	26.4	25.6	26.5	26.4	24.2	25.5	26.0	25.8
Rb	261	276	280	261	229	281	270	279	324	334	335	338
Sr	17.7	11.3	7.0	14.8	27.8	7.9	26.7	10.1	6.1	6.4	7.2	6.6
Y	43.1	45.5	46.7	39.1	33.3	44.7	43.9	46.0	50.9	52.1	52.5	52.4
Zr	91.9	89.6	88.1	95.3	97.6	88.8	93.0	89.0	88.2	87.5	87.0	87.3
Nb	15.1	15.9	16.0	13.9	12.6	16.3	15.8	15.5	18.7	18.6	19.3	19.7
Th	24.5	26.5	25.2	26.1	21.7	24.8	24.4	25.7	31.2	30.5	30.9	31.7

表5 (続き)

	Wt-6- 148-1	Ht-1- 153-1	Ht-2- 156-1	Ht-3- 159.1-1	Ht-4- 163-A-1	Ht-4- 163-B-1	Hd-1- 180-A-1	Hd-1- 180-B-1	Hd-2- 203.1-1	Hd-3- 217-1	No.2014 Artifact
<i>in wt.%</i>											
SiO ₂	76.44	76.47	75.98	76.23	76.05	76.28	76.83	76.75	75.94	76.60	76.77
TiO ₂	0.06	0.09	0.10	0.09	0.09	0.09	0.10	0.09	0.09	0.10	0.07
Al ₂ O ₃	12.57	12.63	12.56	12.59	12.58	12.62	12.69	12.70	12.58	12.64	12.62
T-Fe ₂ O ₃	0.80	0.64	0.64	0.64	0.63	0.64	0.64	0.64	0.64	0.65	0.68
MnO	0.10	0.07	0.07	0.07	0.07	0.07	0.07	0.07	0.07	0.07	0.10
MgO	0.06	0.09	0.09	0.09	0.09	0.09	0.09	0.08	0.08	0.08	0.06
CaO	0.50	0.49	0.48	0.49	0.49	0.48	0.49	0.49	0.48	0.49	0.49
Na ₂ O	3.43	3.98	3.95	4.01	3.98	4.00	3.99	3.97	3.98	3.99	4.04
K ₂ O	5.60	4.69	4.68	4.70	4.69	4.67	4.75	4.79	4.67	4.69	4.73
P ₂ O ₅	0.01	0.02	0.02	0.01	0.01	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.01
total	99.57	99.17	98.57	98.92	98.68	98.96	99.67	99.60	98.55	99.33	99.57
<i>in ppm</i>											
Zn	24.3	22.6	22.7	22.5	23.1	24.1	23.9	23.3	23.1	23.0	24.3
Rb	283	143	141	141	140	141	142	144	141	143	283
Sr	1.6	41.4	42.0	41.9	41.4	41.8	41.1	41.2	41.0	42.7	6.9
Y	41.3	27.5	27.3	28.0	28.0	27.3	28.2	27.6	28.2	28.2	46.9
Zr	76.9	77.7	76.5	76.6	76.3	77.1	76.5	77.0	75.8	79.4	89.4
Nb	14.9	7.9	8.4	9.0	9.6	8.8	8.6	9.8	9.4	9.4	16.6
Th	26.6	8.7	8.1	8.7	8.7	8.2	8.7	9.0	9.0	8.2	25.9

みると、黒曜石の直接的な起源となる流紋岩質マグマは、初生的な玄武岩質マグマからの様々な鉱物の結晶分化の残液、また斑れい岩などの苦鉄質岩類の部分溶融メルトに由来する。ただし、苦鉄質岩類の部分溶融メルトに由来するものであっても、多くの場合、少なからず、結晶分化の影響を受けているとされる（例えば、隅田・早坂 2006）。このため、流紋岩質マグマの元素組成は、本源マグマの組成とともに、そこからどのような鉱物がどの程度結晶分化したかに大きく依存すると言える。すなわち、結晶分化に関わる鉱物がどのような元素を取り込み易いのか、またどのような元素を取り込み難いかを示す分配係数 (Partition coefficient value) を基礎とすれば、結晶分化過程の違い、マグマプロセスの違いとして黒曜石を地球化学的に分類していくことができようと考えた。

Earth Science reference data and models による Geochemical Earth Reference Model (<http://earthref.org/KDD/>) や、Rollinson (1993) により取りまとめられた分配係数を確認すると、安山岩質から流紋岩質メルト中で、斜長石は Sr を取り込み易いが Y や Rb を取り込み難いことが分かる。また、輝石、角閃石、磁鉄鉱、チタン鉄鉱は Zn を取り込み易いが Rb を取り込み難いことが分かる。すなわち、Sr の含有率に対する Y と Rb

の含有率、そして、Zn の含有率に対する Rb の含有率のバリエーションが、黒曜石の地球化学的特徴を示すパラメーターになると予想される。実際にそれらパラメーターを指標とした散布図を作成し (図 2)、表 5 に示す黒曜石原産地の基準試料の分析値をプロットした。

結果、原産地試料の分析値は大きく 7 つの領域 (Domain 1 ~ 7) にプロットされ、これら散布図を用いることで、まず 7 つのタイプに分類できることが明らかとなった。さらに、それぞれのタイプ (Domain) に分類された試料の元素組成を、JR-1 の推奨値 (Imai et al. 1995) で規格化した元素パターン図で示すと、Domain 6 に分類されるものは Sr と Ti の枯渇の程度にバリエーションが見られるものの、タイプ (Domain) ごとに、ある特徴を持った元素パターンで示されることが明らかとなった (図 3)。さらに、Domain 6 に分類される試料の元素組成のバリエーションを、Sr の負の異常の程度 (Sr*) を横軸に、Ti の負の異常の程度 (Ti*) を縦軸とした散布図上 (図 4) で示すと、これらはさらにいくつかのタイプに細分できることが明らかとなった。

試料採取を実施した原産地によっては、しばしば石質が異なる複数種の原石が確認され (図 1: On-6-108, Hd-1-180, Ht-4-163)、このような場合は先述の通り A 種、B

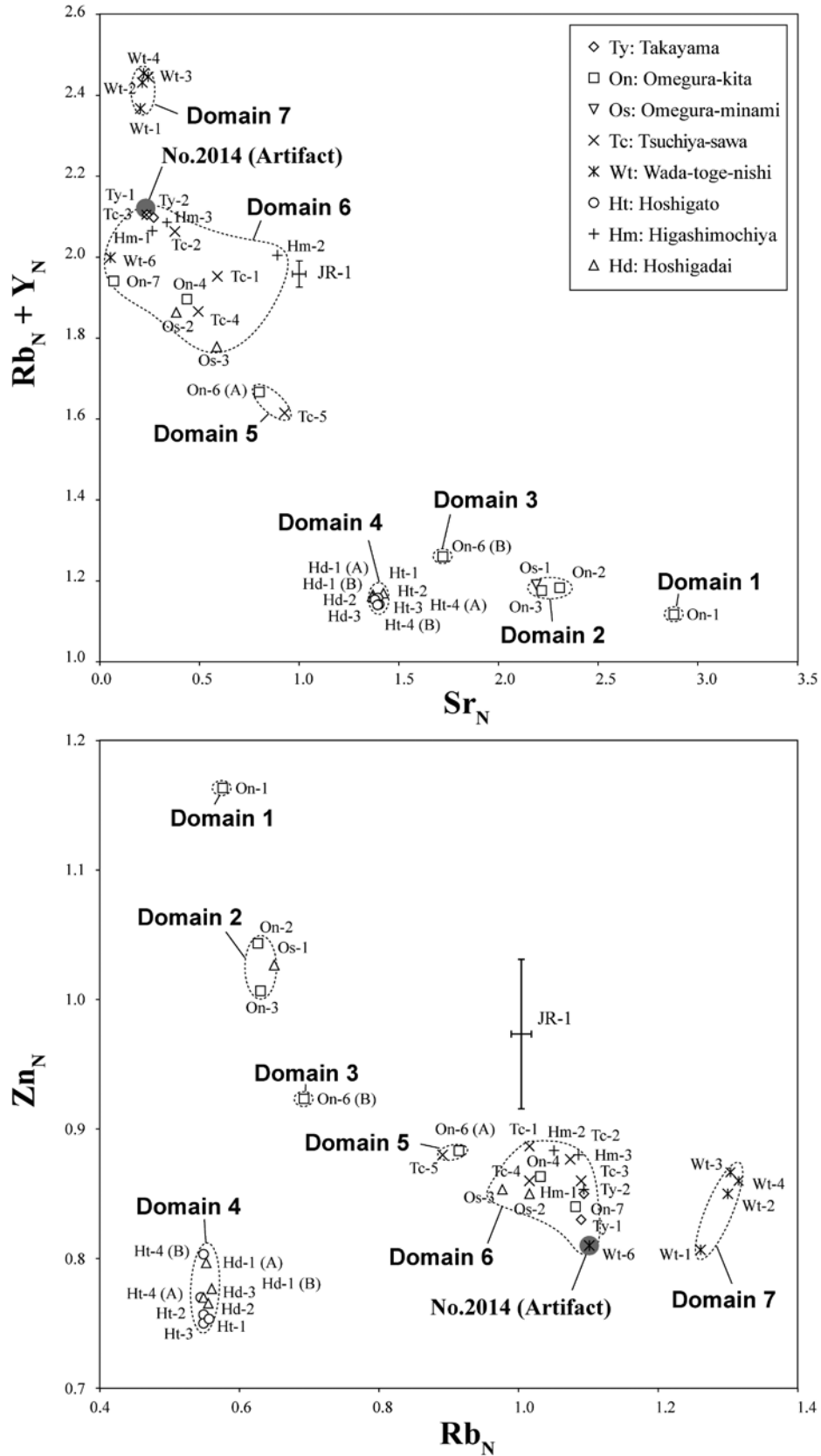


図2 霧ヶ峰地域における黒曜石原産地の基準試料の元素組成に基づく分類

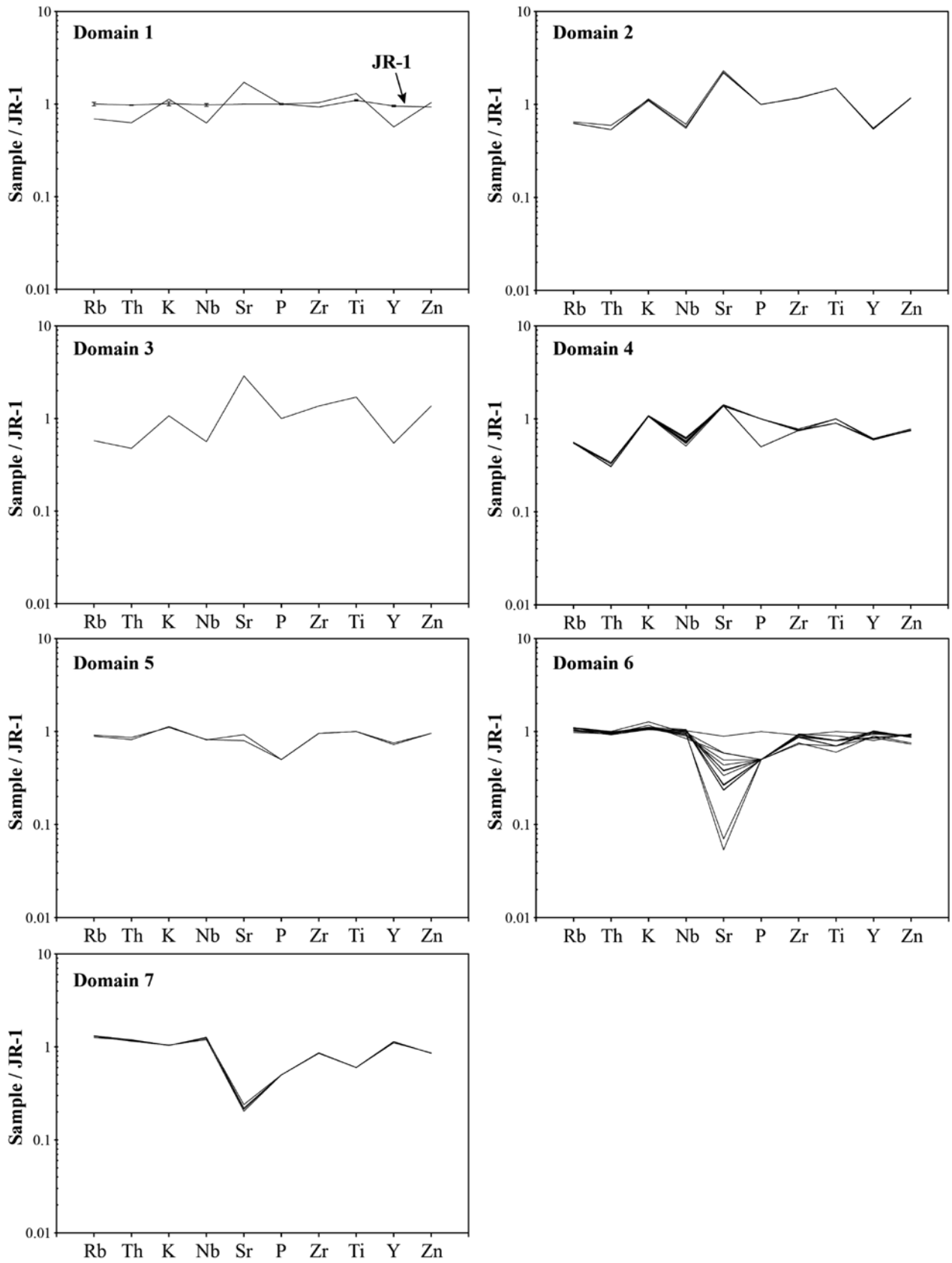


図3 JR-1の推奨値 (Imai et al. 1995) で規格化した元素パターン図.

原産地試料の元素パターンを図2の散布図で分類されたタイプ (Domain) ごとに示す.
分析誤差は JR-1 の元素パターンを参照.

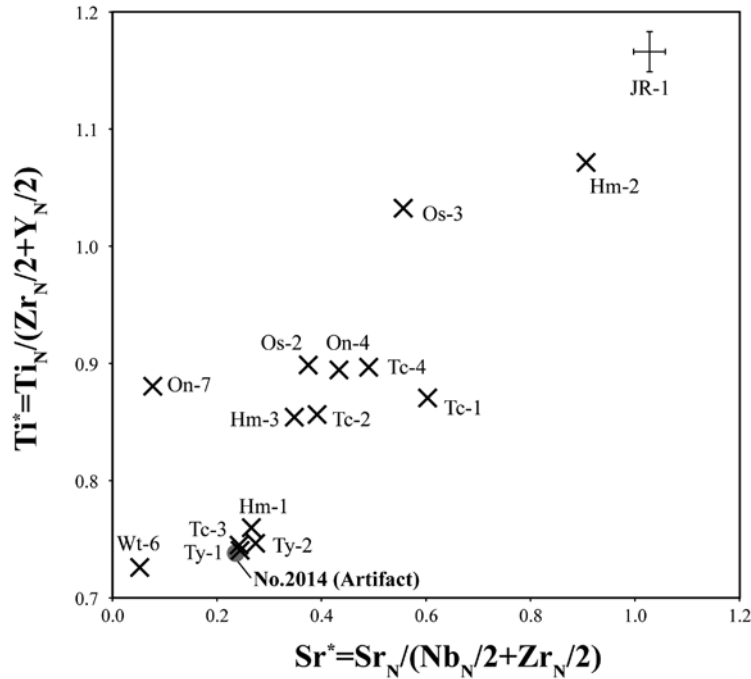


図4 元素組成のパターン図 (図3) で示される, Srの枯渇の程度に対するTiの枯渇の程度を示した散布図。

Domain 6 (図2) の領域にプロットされる黒曜石原産地の基準試料の分析値をプロットした。分析値は全てJR-1の推奨値 (Imai et al. 1995) で規格化した (Sr_N , Nb_N , Zr_N , Ti_N , Y_N)。散布図上の分析誤差はJR-1のエラーバーを参照。

種などと分類した。これら地点ではいずれの場合もA種としたものは全て薄茶色で透明度の高いもの、一方B種としたものは透明度の低い漆黒のものである。両者の元素組成を比較すると男女倉北のOn-6-108のものは、A種とB種とは異なった組成を持ち、A種はツチヤ沢北のTc-5-33と同じ組成を (Domain 5)、B種はこの地点特有の組成 (Domain 3) を示す。ただし、このOn-6-108は異地性の原産地試料であるため、この結果をこの試料採取地点の特徴とするかどうかは注意しなければならない。これらに対し、星ヶ台のHd-1、星ヶ塔のHt-4の地点のものは、A種とB種とで外観が異なっていたとしても元素組成の違いは明瞭ではなく、全てがDomain 4に分類される (図2)。すなわち、このように外観が異なっても、それが元素組成に大きく反映される場合と、反映されない場合がある。

5-2 分布範囲

元素組成にもとづいて分類したそれぞれのタイプの原産地試料 (Domain 1 ~ 7) と、それらの位置関係 (地理的な分布範囲) を図1bに示す。この元素組成のタイ

プに基づいて、原産地の地理的範囲を限定できるのは、和田峠西のWt-1からWt-4の範囲 (Domain 7) と、星ヶ台と星ヶ塔の範囲 (Domain 4) のみである。その他、原地性の原産地のみを考慮した場合、男女倉北のOn-1 (Domain 1)、そしてDomain 6に分類されるものの中で、図4において最も低いSr*とTi*の値を示す和田峠西のWt-6も、ひとつの地点に限定することができる。これら以外は、全て、ひとつのタイプのものがひとつの地理的範囲に限定して分布しておらず、ある1つのタイプのものが他のタイプの分布範囲をまたいで複数箇所に分布している。例えば、Domain 2に分類されるタイプの原産地試料は、Domain 1の分布地点 (On-1) をまたいで、男女倉北の地点 (On-2, On-3) にも男女倉南の地点 (Os-1) にも分布する。

これらのことから、元素組成に基づいた黒曜石製石器の原産地解析では、多くの場合、原産地を複数候補まで絞ることができるという程度であり、地質学的には、同じ起源の溶岩や火砕流が広範囲に広がりさらに別の起源の溶岩が流れ、その後の地形発達によりいろいろなタイプの組成を持った黒曜石が、谷や尾根を越え散在してい

るということは当たり前のこととして考えることができる。また、先行研究である和田村教育委員会（1996）においても、EDXRFを用いた半定量分析結果をもとに、この地域では、黒曜石原産地を元素組成に基づいて地域ごとに区分することは困難であることが指摘されている。このため、この地域に所在する黒曜石原産地は一括して「原産地群」と呼ばれるに至ったという経緯がある。

6. 黒曜石製石器の原産地解析

原産地解析に用いた黒曜石製石器は、明治大学黒曜石研究センター（2014）に記載の広原Ⅱ遺跡から出土の4b層の剥片（試料番号：No.2014）である。この石器の石質は、薄茶色がかった半透明な黒曜石で特徴づけられ、しばしば数mm程度の球類を含む（図5）。WDXRFによる元素分析を実施するため、球類が含まれないガラス質な基質部分を岩石切断機で10g程度切り出し、グラインダーで全ての表面を研磨し水和層を取り除いた後、黒曜石原産地の基準試料と同じ手法で粉砕し定量分析を実施した。分析結果を表5に示す。

石器試料の分析値を図2の散布図上にプロットすると、元素組成に基づく分類においては、まずDomain 6に相当するものであることが分かる。さらに、図4の散

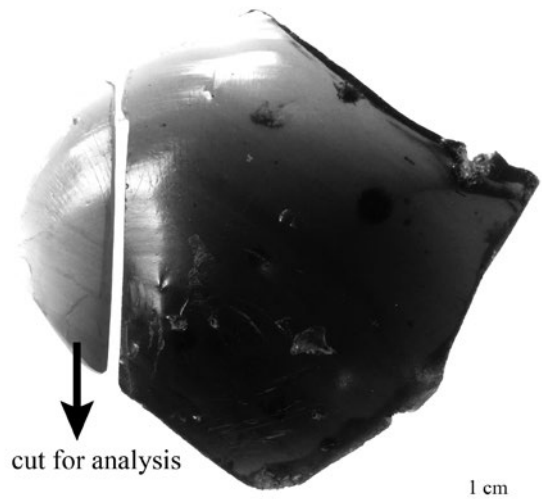


図5 広原Ⅱ遺跡から出土の黒曜石製石器（No.2014: 剥片）を元素分析用に切断した様子

布図上にプロットすると、分析値の誤差の範囲で鷹山のTy-1, Ty-2, ツチヤ沢のTc-3, 東餅屋のHm-1の原産地試料（基準試料）の元素組成に一致することが分かった。他の元素組成についても、JR-1の推奨値（Imai et al. 1995）で規格化した元素パターン図で確認するとTy-1, Ty-2, Tc-3, Hm-1における基準試料の元素組成とおおよそ分析誤差の範囲で一致することが分かった（図6）。そして、原産地試料と石器試料の外観を比較すると、いずれも薄茶色がかった半透明な黒曜石で特徴づ

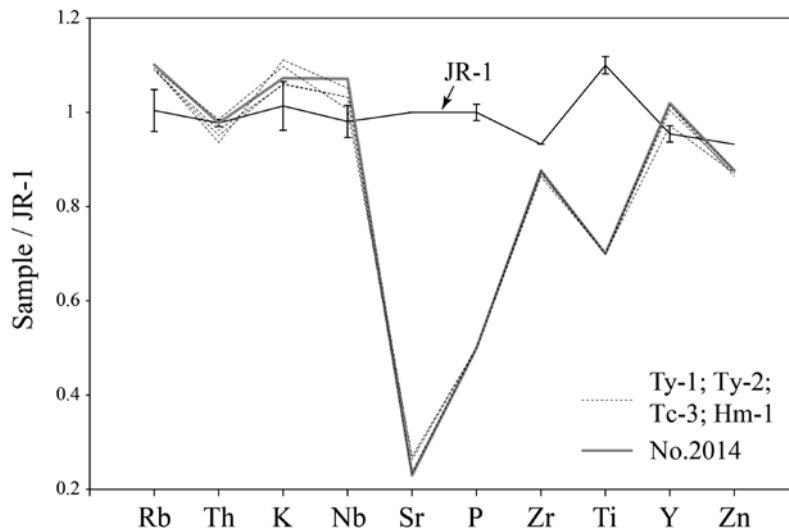


図6 JR-1の推奨値（Imai et al. 1995）で規格化した鷹山地域の黒曜石（Ty-1, Ty-2）、ツチヤ沢地域の黒曜石（Tc-3）、東餅屋地域の黒曜石（Hm-1）と、広原Ⅱ遺跡から出土の黒曜石製石器（No.2014: 剥片）の元素パターンの比較。分析誤差はJR-1の元素パターンを参照。

けられ、しばしば数 mm 程度の球顆を含むという同じ特徴で示されることが明らかである。

以上のことから、原産地解析に用いた黒曜石製石器 (No.2014) は、原地性の原産地に限定するならば東餅屋の Hm-1 か鷹山の Ty-1 であり、さらに、転石なども含めた異地性の原産地も含めれば、ツチャ沢の Tc-3、鷹山の Ty-1 と Ty-2 が加わる (図 1a)。ただし、地形や産状から判断して、Tc-3 と Ty-2 における異地性の原産地試料は、それぞれ Hm-1 と Ty-1 に由来するものと判断される。

7. 原産地解析システムの構築にむけて

7-1 定量分析値を用いた解析法

定量分析値に基づいた原産地解析を実施していくうえで、異なる性質を持った溶岩が、それぞれどのような分布範囲に及んでいるか、特に、原地性の試料と異地性の試料を区別しながら、地球化学的な情報と地質学的情報を、もう少し結びつけていく必要があると考える。また、本研究では一つの原産地から基本的には一つの試料個体しか分析を実施していない。このため、特に異地性の原産地に関しては、複数の試料個体を分析し、一つの地点で、元素組成がどのくらいの分散を示すか、あるいは分析値の誤差の範囲で同じであるのか検証する必要がある。

7-2 原産地試料の保管と管理

黒曜石製の石器の原産地解析を継続的に実施するうえで、原産地試料の地理的・地質学的情報とともに、いかにして、黒曜石原産地試料を利活用できる形として保管・管理し、また、新たなデータを加えながら更新し続けていくかは非常に重要な問題である。特に、現在の日本の考古学において、最も一般的なエネルギー分散型蛍光 X 線分析装置 (EDXRF) を用いた半定量分析に基づく原産地推定の場合 (望月 1997)、非破壊で元素分析ができるという利点はあるものの、装置ごとに、黒曜石原産地試料の X 線のスペクトルや X 線強度を事前に測定しておく必要がある。この為、原産地解析の基礎となる黒曜石原産地の基準試料が、いつでも利活用できる形と

して保管・管理されていなければ、たとえ装置を最新のものに更新したとしても、また、ある研究機関で原産地解析を新たに始めようとしても、画一的な原産地解析システムを立ち上げていくことは不可能である。

明治大学では、これまで明治大学古文化財研究所 (2009, 2011) などで黒曜石製石器の原産地解析を実施してきた。しかし基準となる原産地試料の地理的・地質学的情報、試料そのものの保管場所が分からなくなってしまっているものも少なくない。一方で、明治大学黒曜石研究センターでは、小野 (2011) において提言されているような、黒曜石原産地の原石試料の国際的な標準化に向けての取り組みを実施し、このため、本研究のような、基準試料の選定からの原産地解析法の新たな立ち上げにおいては、黒曜石原産地の地理的・地質学的情報とともに、採取した個体試料をどのように管理保管していくかを明確にしようと試みている。また、原産地解析に用いる基準試料をパッケージ化し、第三者がいつでも閲覧、使用できる環境を整備しようとしている。

本研究では、先述の通り、採取地点の位置情報とともに、採取した試料が地質学的に原地性のものであるか、それとも異地性のものであるかなど基本的な地質情報を野外で記録し、採取試料は全て洗浄・乾燥後、試料番号を可能な限りの全ての個体に注記した上で、採取地点ごとに小箱に入れ、閲覧し易い状態で保管している。また、石質の種類や石器の有無を確認した上で、採取地点を代表する個体を選び出し、これを原産地解析用の基準試料としてパッケージ化し、明治大学黒曜石研究センターにて保管・管理している。そして、これら基準試料は、WDXRF による定量分析を実施するため必要最小限分割した後、残りの個体は、EDXRF による非破壊分析法に基づいた原産地解析を立ち上げるための基準試料として保管している。

霧ヶ峰地域における黒曜石原産地では、外観や石質が異なっていたとしても、同じ元素組成を持つ試料が存在する。このことは、石器の原産地を推定していくには、単に分析値の比較だけでなく、礫面・石質などの外観比較も、最終的には重要であることを意味する。このため、原産地の基準試料の外観を写真記録し、試料の採取地点の位置情報・地質情報・現物試料とともに、デジタルアー

カイブとして取りまとめている。今後、これらデジタルアーカイブの一部を Web 上などで公開することにより、写真レベルではあるものの誰でも石器と原産地試料の石質比較程度は、実施することが可能になるであろうと考えている。

謝 辞

本研究では、平成 26～29 年度、科学研究費助成事業、若手研究 (B)「黒曜石製石器石材の原産地解析システムの新構築」(研究代表: 隅田祥光)、ならびに、平成 23～27 年度、私立大学戦略的研究基盤形成支援事業「ヒト-資源環境系の歴史の変遷に基づく先史時代人類誌の構築」(研究代表: 小野 昭)を使用した。原産地調査では、長和町黒曜石体験ミュージアムの大竹幸恵氏・村田弘之氏、長野県埋蔵文化センターの大竹憲昭氏、明治大学文学部の矢島國雄教授、明治大学客員研究員の会田 進氏、芙蓉パーライト(株)の河田穂積氏にお世話になった。明治大学博物館の島田和高氏、明治大学黒曜石研究センターの小野昭特任教授・橋詰 潤博士、沼津市教育委員会の池谷信之博士、鳥根大学法文学部の及川穰博士には本研究を実施するにあたり、試料提供やご指導をいただいた。査読者からは、本稿に関する有益な改善意見を頂いた。ここに記して感謝します。

引用文献

- Imai, N., Terashima, S., Itoh S. and Ando, A. 1995 1994 compilation values for GSJ reference samples, "Igneous rock series". *Geochemical Journal* 29: 91-95.
- Kaneoka, I. and Suzuki, M. 1970 K-Ar and fission track age of some obsidians from Japan. *Journal of the Geological Society of Japan* 76(6): 309-313.
- 北田奈緒子・弘原海清・益田晴恵・長尾敬介・Giulio Bigazzi・Bart Kowallis・Charles W. Naeser・Alan Deino 1994「ガラス標準試料 JAS-G1 の年代測定結果の相互評価」『フィッション・トラックニュースレター』7: 10-11
- 熊井久雄・赤羽貞幸・田中俊広・近藤洋一・矢島勝実 1994『土地分類基本調査「諏訪」5 万分の 1 表層地質図 同説明書』, 45p., 長野, 長野県農政部
- 明治大学古文化財研究所 2009「蛍光 X 線分析装置による黒曜石製遺物の原産地推定—基礎データ集<1>—」, 294p., 東京, 明治大学学術フロンティア推進事業事務局
- 明治大学古文化財研究所 2011「蛍光 X 線分析装置による黒曜石製遺物の原産地推定—基礎データ集<2>—」, 294p., 東京, 明治大学学術フロンティア推進事業事務局
- 明治大学黒曜石研究センター 2013「広原遺跡群発掘調査概報 I: 2011 年度・2012 年度広原湿原および周辺遺跡における考古・古環境調査」, 19p., 長野・東京, 明治大学黒曜石研究センター
- 明治大学黒曜石研究センター 2014「広原遺跡群発掘調査概報 II: 2013 年度広原湿原および周辺遺跡における考古・古環境調査」, 21p., 長野・東京, 明治大学黒曜石研究センター
- 望月明彦 1997「蛍光 X 線分析による中部・関東地方の黒曜石産地の判別」『X 線分析の進歩』28: 157-168
- 中井光一・内山 慶・山田 大・河内 晋平 2000「霧ヶ峰火山, 池のくるみ-車山-虫倉の地質・岩石, 活断層」『信州大学教育学部附属志賀自然教育研究施設研究業績』37: 23-35
- Oikawa, T. and Nishiki, K. 2005 K-Ar ages of the Lavas from Kirigamine Volcano, Central Japan. *Bulletin of the Volcanological Society of Japan*, 50(2), 143-148.
- 及川 穰・宮坂 清・池谷信之・隅田祥光・橋詰 潤・堀 恭介・矢頭 翔 2013「霧ヶ峰地域における黒曜石原産地の踏査報告—下諏訪町和田峠西と長和町土屋橋東」『資源環境と人類』3: 77-94
- 及川 穰・宮坂 清・隅田祥光・堀 恭介・今田賢治・川井優也・河内俊介・角原寛俊・藤川 翔 2014「長野県下諏訪町和田峠西黒曜石原産地の調査報告」『資源環境と人類』4: 83-98
- 及川 穰・隅田祥光・宮坂 清・今田賢治・川井優也・河内俊介・角原寛俊・藤川 翔・高村優花・灘 友佳・野村堯弘・藤原 唯 2015「霧ヶ峰地域における黒曜石原産地の踏査報告(2)—長和町男女倉南地区と下諏訪町星ヶ台地区—」『資源環境と人類』5: 117-136
- 小野 昭 2011「資源環境の中の黒曜石—方法論上の展望—」『資源環境と人類』1: 1-8
- Potts, P. J., Tindle, A. G. and Webb, P. C. 1992 Geochemical reference material composition: rocks, minerals, sediments, soils, carbonates, refractories and ores used in research and industry, 313p., Caithness (UK), Whittles Publishing.
- リガク 1982『蛍光 X 線分析の手引き』, 167p., 東京・大阪, 株式会社リガク
- Rollinson, H. 1993 *Using geochemical data: evaluation, presentation, interpretation*, 352p., London (UK), Longman.
- 沢村孝之助・大和栄次郎 1953『5 万分の 1 地質図幅「諏訪」および、同説明書』, 45p., 茨城, 地質調査所
- Suda, Y. 2012 Chemical analysis of obsidian by Wave Length-dispersive X-ray Fluorescence Spectrometry: application to nondestructive analysis of archeological obsidian artifacts. *Natural Resource Environment and Humans* 2: 1-14.
- 隅田祥光 2013「波長分散型蛍光 X 線分析装置を用いた珪酸塩岩中の主要元素の定量分析法の確立」『資源環境と人類』3: 31-45
- Suda, Y. 2014 Application of internal standard method to non-destructive analysis of obsidian artifacts by Wavelength dispersive X-ray fluorescence Spectrometry. *BAR International Series* 2620, 33-45.
- 隅田祥光・早坂康隆 2006「夜久野オフィオライト朝来岩体における古生代海洋内島弧地殻の形成と進化過程」『地質学雑誌』6: 266-287

隅田祥光・本吉洋一 2011 「蛍光 X 線分析装置を用いた低希釈ガラスビード法による珪酸塩岩石中の主要、微量、希土類元素の定量分析」『南極資料』55：93-108

隅田祥光・奥平敬元・古山勝彦 2010 「低希釈ガラスビード法による蛍光 X 線分析装置 (RIX-2100) を用いた珪酸塩岩中の主成分・微量成分の定量分析」『MAGMA』92：21-39

隅田祥光・小泉奈緒子・奥平敬元 2011 「蛍光 X 線分析装置を用いた珪酸塩岩 (火成岩・堆積岩・堆積物・土壌) 中の主要・微量・希土類元素の定量分析」『MAGMA』93：19-32

Suda, Y., Yamada, M., Ryzhov, S. and Stepanchuk, V. 2014 Preliminary report on obsidian petrography from the Transcarpathian region in Ukraine. *Natural Resource*

Environment and Humans 4: 21-37.

諏訪教育会編 1975 『諏訪の自然誌「地質編」, 同地質図』, 531p., 長野, 諏訪教育会

和田村教育委員会 1996 『和田村の黒曜石をめぐる課題－原産地遺跡分布調査を終えて－』, 112p., 長野, 和田村教育委員会

柚原雅樹・田口幸洋 2003 「ガラスビード法による珪酸塩岩石の Co および S の蛍光 X 線分析」『福岡大学理学集報』33：77-81

山崎哲良・小林哲夫・河内晋平 1976 「長野県和田峠付近の地質と岩石」『地質学雑誌』81(2)：127-137

(2014 年 11 月 4 日受付 / 2015 年 1 月 30 日受理)

Locating and geochemically characterizing obsidian sources in the Kirigamine region for the provenance studies of obsidian artifacts from the Hiroppara prehistoric sites, central Japan

Yoshimitsu Suda^{1*} and Miho Tsuchiya²

Abstract

This paper reports the results of a geologic survey of the obsidian sources, and geochemical analyses of geologic obsidian samples around the Hiroppara prehistoric sites located in the Kirigamine region. The obsidian sources in this area are divided into primary and the secondary sources on the basis of their mode of occurrences. The primary source indicates the obsidian outcrops, while the secondary source signifies obsidian pebbles found on the ground surface and riverbed. The results of geochemical analysis by WDXRF indicate that the obsidians in this area can be geochemically classified into seven types, and they could be divided further into several more types. However, the regional distribution of the obsidian source is not completely consistent with the geochemical classification. This means that different types of the obsidian can occur together within the same region or location. On the basis of this observation, we tentatively performed sourcing analysis using an obsidian artifact excavated from the Hiroppara II site. Consequently, we were able to evaluate that the provenance of the artifact would either be the Takayama or the Higashimochiya region, which means that this method of classification and examination would be well suited for the provenance study of obsidian artifacts especially related to the obsidian in Kirigamine region.

Keywords: Kirigamine region; obsidian sources; Hiroppara prehistoric sites; provenance studies

(Received 4 November 2014 / Accepted 30 January 2015)

1 Department of Geology, Faculty of Education, Nagasaki University, 1-14 Bynkyo-machi, Nagasaki 852-8521, Japan

2 Center for Obsidian and Lithic Studies, Meiji University, 3670-8 Daimon, Nagawa-machi, Nagano 386-0601, Japan

* Corresponding author: Y. Suda (geosuda@nagasaki-u.ac.jp)