

原材料岩石、素材粘土と製品土器

三辻利一・犬木 努

1. はじめに

水を含んだ粘土には可塑性があるため、種々の形に成形することができる。成形された粘土を乾燥したのち、高温で焼成すると硬く固まり、「器もの」ができる。粘土を硬く焼成した「器もの」が土器である。土器はものを盛る容器としてのみならず、ものを煮炊きする鍋としても役立つことを知った古代人は、早くから土器を日常生活の用具として使用してきた。

一方、海に囲まれた日本列島は水資源に恵まれている。粘土も国内各地に産出する上に、土器を焼成する木材燃料にも恵まれていた。日本列島は土器を作る上に恵まれた風土なのである。

日本列島に住む人々は縄文時代の昔から、現在に至るまで、日常生活に欠かせない用具として土器を使用してきた。その結果、日本列島各地で発掘された遺跡からは大量の土器が出土した。土器は日本列島に住んだ人々の過去の活動の跡を再現する考古学研究の絶好の研究材料として役立つはずである。

土器の考古学研究は土器型式の比較研究から始まった。土器型式の比較研究は世界では日本が最先端を切っている。その結果、土器型式と土器が出土した地層との対比から、土器の相対的な年代観が得られるまでになっている。各地域の土器の編年表も提示されている。

土器の考古学研究が進むにつれて、土器の産地問題も考古学研究のテーマとなった。産地問題は土器を通して過去を再現する考古学研究には一義的に重要な研究課題である。この研究に当然、土器型式も適用されたが、土器型式による産地推定法は提示されていない。この時点で、この研究に自然科学の方法である元素分析法が適用されることになった。

この研究を最初に手をつけたのはイギリスのオックスフォード大学の研究者たちである。いまから70年ほどまえに、エジプトを含めて地中

海東部地域の遺跡から出土する、BC1400~BC1200年ころのギリシャ陶器の生産地がミノア文明の中心地であるクレタ島産なのか、それとも、ギリシャ本土のミケーネ産なのかを決めるために、発光分光分析法で多数のギリシャ陶器を分析した。発光分光分析法は同時多元素分析法の一つである。この研究には同時多元素分析法は不可欠である。

多数の元素の分析データを数理統計学の手法の一つであるクラスター分析法で解析した結果、地中海東部地域の遺跡から出土したギリシャ陶器の多くはミケーネ産であることを実証し、この時期にはすでに、ミノア文明は衰退期に入っており、逆に、ギリシャ本土のミケーネ文明が繁栄に向かっていたという歴史学者の研究結果と一致する結果を出した。自然科学の方法が考古学研究に役立つことを実証した最初の例となった。この研究のもつ、さらに重要な意味は、元素組成からみて土器（素材粘土）に地域差があるということである。

しかし、これまで、自然界に広く分布する粘土の地域差に関する研究は行われていない。粘土は光学顕微鏡でもその姿が捉えられないくらい細かい粒子からなるので、その正体が不明であったからである。20世紀に入って、粉末法によるX線回折法が開発され、微粒子からなる粘土鉱物の結晶学的研究が進んだ結果、粘土鉱物の理論化学式は $(\text{SiO}_2 \cdot m\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O})$ で与えられることになった。粘土鉱物の集合体が粘土である。

そうすると、この理論化学式を見る限り、粘土には元素組成からみて地域差は期待できないはずである。オックスフォード大学の研究者たちのデータと矛盾することになる。ギリシャ陶器の素材粘土も自然界に広く分布する粘土から選択されたはずである。オックスフォード大学の研究者たちのデータが自然界に広く分布する

粘土には地域差があることを示している。このことを実証するには、自然界に広く分布する粘土試料を大量に分析するか、それが困難であれば、生産地（窯跡）から出土した土器を大量に分析することである。

しかし、この研究以降、元素分析法は考古遺物の産地問題の研究にしばしば適用されることになった。行政発掘によって、膨大な量の土器を発掘し保管している日本でも、当然、土器の産地問題の研究に元素分析法を適用した研究が行われることになった。

この研究の根底には、元素組成からみて、土器（素材粘土）に地域差があるという認識がある。オックスフォード大学の研究者たちはどの元素に地域差があるのか、また、その原因は何なのかという問題にまで研究を進めることはできなかった。その最大の理由は土器の生産地である窯跡から出土した土器が手に入らなかったからである。

一方、日本では古代最大の窯業生産であった須恵器を焼成した窯跡は列島各地で多数発掘され、しかも、窯跡からは膨大な量の須恵器破片が出土した。これこそ、土器の産地問題の基礎研究を進める絶好の分析対象であることに気がついた三辻は、全国各地の教育委員会に依頼して、大量の窯跡出土須恵器破片試料を提供してもらい、30年を超える年月をかけて、完全自動式の蛍光X線分析装置で分析することができた。

その結果、各地の窯跡出土須恵器にはK、Ca、Rb、Srからみて地域差があることが実証された。地域差はK-Ca、Rb-Srの2次元分布図上で示された。地域差を認識するには2次元分布図が最も有効であるからである。また、地域差の原因を知るために、窯跡の後背地の地質を構成する岩石（花崗岩系の岩石であることが多い）も分析することになった。

全国各地の花崗岩系岩石の岩片試料を大量に分析した結果、花崗岩系岩石も両分布図上で地域差を示すことが明らかになった。さらに、花崗岩系岩石はKとCa、RbとSrの間に逆相関の関係をもって、「花崗岩類のベルト帯」にまとまって分布することが明らかにされた。

KとCaが逆相関の関係をもつことは、カリ長石、曹長石、灰長石の造岩鉱物を構成する3

長石間のKとNa、NaとCaのイオン置換で説明される。さらに、KとRb、CaとSrの間に正の相関性があるという実験データは、長石類の結晶の中で、主成分元素K、Caに代わって、一定の割合で微量元素Rb、Srが結晶格子に配置されていることを示している。

この結果、両分布図にみられる地域差の原因は、花崗岩系の岩石を構成する主成分鉱物、長石類であると解釈された。また、両分布図上で、窯跡出土須恵器の化学特性は後背地の地質を構成する花崗岩系岩石の化学特性によく対応するところから、窯跡出土須恵器の地域差も母岩を構成した長石が原因であると考えられた。

この結果、日本では、長石系のこれら4元素を中心にして、土器の産地問題の研究が可能であることが実証された。この時点で改めて、元素組成からみた原材料の岩石、素材の粘土、製品土器について考察しておくことはこの研究を理解する上に重要であると考えた。本論文では、元素組成からみた原材料岩石、素材粘土、製品土器、および、その相互関係について考察した結果をまとめた。

2. 原材料岩石

岩石はSi、Al原子を中核とした鉱物の結晶とガラス質の石基からなる。石英、長石類、雲母、角閃石などの鉱物の結晶がガラス質の石基で固められているので、岩石は硬い。岩石は地下深くにあるマグマが上昇し、冷却する過程で生成したものである。徐々に冷却が進むと、鉱物の結晶は大きく成長するし、地下浅所で急冷すると、析出する結晶の粒子は小さい。マグマが地表で固まる溶岩はガラス状である。黒曜石がその例である。

地下深所で生成した岩石は地殻の隆起作用で地表に露出し、地表で風化作用を受けて、土壌や粘土を生成する。その結果、地表は土壌、粘土で広く覆われ、岩石は限られたところに露頭として残ることになった。有機物を含む土壌は作物の生育には不可欠であるし、粒子の細かい粘土はその特性を生かして、土器以外にも多くの日常生活に不可欠である道具の素材として活用されている。また、岩石も石材として広く活用されている。

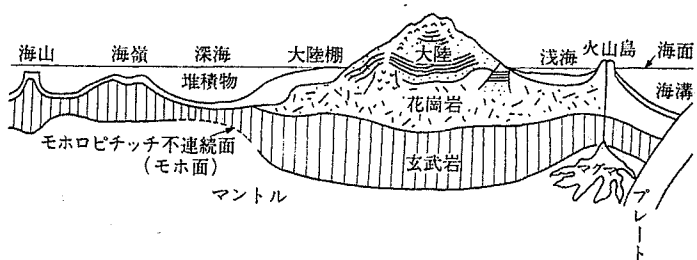


図1 地殻断面の模式図

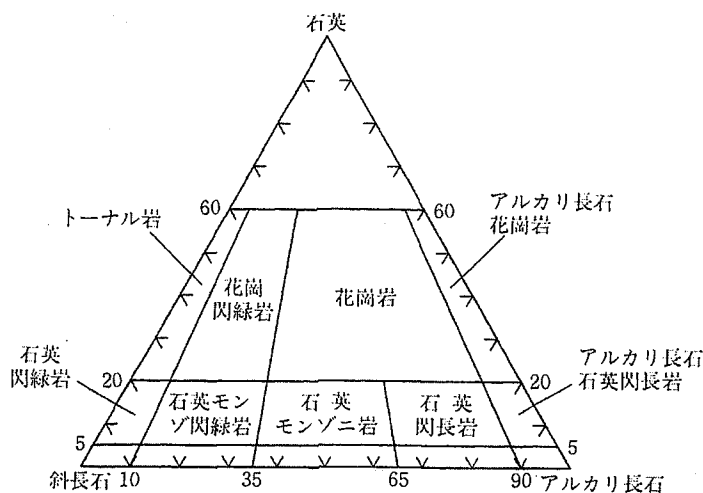


図2 鉱物のモード組成による花崗岩類の分類

岩石は、素人の眼からみても、大きく分けて白色系の岩石（花崗岩系の岩石）と黒色系の岩石（玄武岩系の岩石）があることがわかる。地殻断面の模式図を図1に示す。花崗岩系の岩石は地殻の上部を構成する主要な岩石であり、大陸は厚い花崗岩層からなる。一方、地殻下部は玄武岩系の岩石から成り立っている。

深成岩である花崗岩は粗粒の鉱物の集合体である。主成分鉱物は石英、長石類と角閃石、雲母などの鉄化合物である。体積にして70%以上が斜長石、カリ長石、石英から成り立っており、これらの主成分3鉱物の量比によって分類することができる（鉱物のモード組成による分類）。これらの鉱物の量比は岩石の薄片試料の偏光顕微鏡観察によって求められる。その結果は石英を三角形の頂点にし、底辺の両端に斜長石とカリ長石をとった三角形の図上に花崗岩類のモード組成がプロットされる。

鉱物のモード組成による花崗岩類の分類を図2に示す。通常、石英が20～60の間にあるもの

を「花崗岩類」と呼ぶ。花崗岩類の中でカリ長石が比較的多く、斜長石が比較的小さいのが花崗岩であり、逆に、斜長石が比較的多く、カリ長石が比較的小さいのが花崗閃緑岩である。花崗岩類の大半を花崗岩と花崗閃緑岩で占める。

一方、細粒の鉱物粒子の集合体である火山岩の分類には元素組成による分類法が使われる。SiO₂が重量百分率にして53%以下のものを玄武岩、53～64%のものを安山岩、64～70%のものをデイサイト、70%以上のものを流紋岩と呼ぶ。

デイリーによる各岩型の平均化学組成を表1に示す。この表によると、Feは玄武岩に最も多く含まれており、安山岩、デイサイト、流紋岩の順に減少する。玄武岩、安山岩は黒色系の岩石であり、デイサイト、流紋岩は白色系の岩石であることがわかる。さらに、K、Ca、Naの長石系因子についてみると、Kは玄武岩に最も少なく、安山岩、デイサイト、流紋岩の順に増加する。Caは逆に、玄武岩に最も多く、次

	a	b	c	d
	玄武岩	安山岩	デイサイト	流紋岩
SiO ₂	48.78	59.59	66.91	72.60
Al ₂ O ₃	15.85	17.31	16.62	13.88
Fe ₂ O ₃	5.37	3.33	2.44	1.43
FeO	6.34	3.13	1.33	0.82
MgO	6.03	2.75	1.22	0.38
CaO	8.91	5.80	3.27	1.32
Na ₂ O	3.18	3.58	4.13	3.54
K ₂ O	1.63	2.04	2.50	4.03
H ₂ O	1.76	1.26	1.13	1.52
TiO ₂	1.39	0.77	0.33	0.30
P ₂ O ₅	0.47	0.26	0.08	0.06
MnO	0.29	0.18	0.04	0.12
Total	100.00	100.00	100.00	100.00

表1 デイリーによるカルクアルカリ岩系の各岩型の平均化学組成

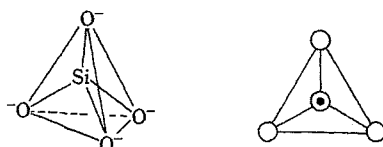
	クラーク数 [wt%]	体積比 [v%]
O	46.6	93.8
Si	27.7	0.9
Al	8.1	0.5
Fe	5.0	0.4
Ca	3.6	1.0
Na	2.8	1.3
K	2.6	1.8
Mg	2.1	0.3
Ti	0.4	0.0
P	0.1	0.0

表2 クラーク数 (Mason・Moore, 1982)

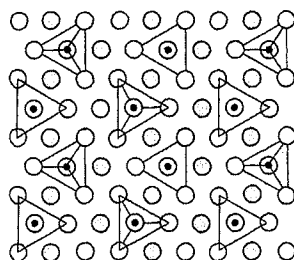
第に減少し、流紋岩に最も少ない。これに対して、Naは岩型には関係なく、含有量にはほとんど差異がないことがわかる。この表から、岩型によって、化学組成は異なることがわかる。

このことから、岩石が風化し、粘土化する過程で、岩石は完全に溶解せず、岩屑（石英、長石類、雲母、角閃石などの微粒子を含む）が粘土中に残っていれば、玄武岩系の岩石に由来する粘土と花崗岩系の岩石に由来する粘土では化学組成が異なる可能性がある。このことを実験データで確認することが必要である。

また、デイリーによって分類された各岩型を図2による鉱物のモード組成による分類に対比すると、花崗岩は元素組成による分類の流紋岩とデイサイトに、また、花崗閃緑岩はデイサイトに対応する。石英が20~5の間にある石英モンゾ閃緑岩などは安山岩に対応する。したがって、花崗岩類はFeが比較的少ない白色系の岩石であり、また、Kは比較的多く、Caは比較的少ない岩石であることがわかる。



(a) [SiO₄]⁴⁻の正四面体 (b) [SiO₄]⁴⁻の正四面体の省略形
ケイ酸イオンの構造



● Si ○ O ○ Mg

(c) 苦土かんらん石 (Mg₂SiO₄)

図3 ケイ酸塩イオンと苦土かんらん石の構造

さらに、鉱物のモード組成による岩石の分類図から、花崗岩には花崗閃緑岩に比べて、Kが比較的多く、Caは比較的少ない。逆に、花崗閃緑岩にはKが比較的少なく、Caが比較的多く含まれることがわかる。したがって、花崗岩類にもKとCaからみて違いがあることになる。このことは重要である。花崗岩類に由来する粘土中に岩屑が残っていれば、KとCaは花崗岩に由来する粘土と花崗閃緑岩に由来する粘土では異なることが予想される。したがって、KとCaは地域差を示す因子であることが予想される。

ここで、岩石を構成する鉱物の結晶について述べる。

地殻を構成する元素のクラーク数を表2に示す。最も多いのがOで、Si、Alと続く。これら3元素で全体の80%を越える。したがって、地殻を構成する鉱物の結晶はSi陽イオンとAl陽イオンとがO陰イオンと結合した化合物でできていることになる。イオン半径の大きさから、1個のSi陽イオンの周りに4個のO陰イオンが配置し、図3に示すように正四面体構造をとる。この「[SiO₄]⁴⁻」正四面体を中心にしてできる化合物をケイ酸塩と呼ぶ。このケイ酸塩イオンはマイナスの電荷をもつので、ケイ酸塩イオン同士のイオン結合はできない。間に、プラス電

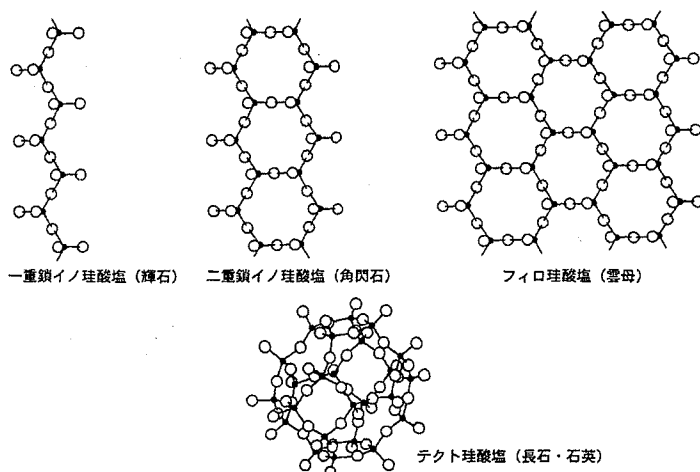


図4 種々のケイ酸塩の構造

荷をもつ陽イオンを介在させてケイ酸塩イオンは結合を繰り返していく。その例として、苦土かんらん石 (Mg_2SiO_4) の構造も図3に示してある。

他方、正四面体の四隅にあるO原子は孤立電子対を持っているので、他の正四面体の四隅にあるO原子と共有結合することができる。隣の正四面体構造の頂点にあるO原子と供給結合を1次元の方向に繰り返していくと、単鎖型の鎖状構造ができる。単鎖状の鎖は、陽イオンを介在させて結合を繰り返して3次元方向に広がると輝石の結晶ができる。単鎖はもう一つO原子が他の単鎖を構成するO原子と共有結合をすると、二重鎖構造ができる。二重鎖構造の鎖も陽イオンを介在させていくと、角閃石の結晶ができる。

また、単鎖型の鎖がO原子の共有結合によって2次元方向に結合を繰り返していくと正四面体構造が連結したシートができる。このシート間に陽イオンが介在すると、シート層ができ、雲母の結晶が形成される。O原子間の共有結合に対して、シート間のイオン結合は弱いので、外部から力が加わると、シート間にズレが生じる。これが雲母の劈開性である。

「 SiO_4 」⁴⁻ の正四面体構造が3次元の方向にO原子同志士の共有結合を繰り返していくと、「 SiO_4 」⁴⁻ 正四面体の網状構造ができる。これが石英の結晶である。石英のケイ酸塩網状構造のSiイオンの一部をAl陽イオンに置き換える

と長石類の結晶構造ができる。

これらの結晶構造を図4にまとめて示す。岩石はこれらの鉱物の結晶からできている。個々の鉱物の結晶は結合することはできないが、ガラス質の石基によって硬く固められているので、岩石は硬い。蛍光X線分析用の錠剤試料を作成するため、岩石は粉砕されるが、岩石片の粉砕にはメノウの乳鉢ではなく、硬度9.5のタングステンカーバイド製の乳鉢を使用する。

花崗岩類についてはこれまで、岩石鉱物学的立場から研究が進められてきたが、元素からみて花崗岩類に地域差があるのかどうかという分析化学的研究はほとんど行われていない。

元素からみて、土器の地域差に関する研究には、土器の原材料である岩石、とくに、花崗岩類の地域差に関する研究は重要である。粘土中に母岩の岩屑に由来する長石類、雲母、角閃石などが残渣鉱物として残っている可能性があるからである。もし、残渣鉱物が残っていれば、これらの鉱物に由来する元素が地域差を示している可能性がある。

このことを実験的に確かめるために、須恵器窯跡群の後背地を構成する花崗岩類の岩片試料が分析されることになった。その結果、花崗岩類にも、K-Ca、Rb-Srの両分布図上で地域差があることが実証された。K、Caは主成分鉱物、長石中に含まれる主成分元素であるので、花崗岩類の地域差の原因は長石類であると考えられた。この結果は重要である。

もし、花崗岩類が風化作用でも完全には溶解せず、長石類や石英などの微粒子を含む岩屑が残っていたら、土壌や粘土にも長石系因子からみて地域差が残されている可能性があるからである。このことは実験データで実証しなければならない。これが列島各地の花崗岩類の岩片試料を分析した理由である。

3. 素材粘土

地表の岩石は熱による物理的風化作用で破砕されるが、さらに、水による化学的風化作用を受けて浸蝕され、変質することになる。まず、岩石を固めていた石基が溶かされ、鉱物粒子はばらばらになる。さらに、鉱物の結晶も化学的風化作用で解体されるが、造岩鉱物にも風化されやすい鉱物と、風化されにくい鉱物がある。

造岩鉱物の風化の難易度を表3に示す。長石類の中でもCaを多く含む斜長石は風化が速く、Kを多く含むカリ長石は風化が遅い。最も風化されにくい鉱物は石英である。造岩鉱物の化学的風化が進むと、イオンが析出してくることになる。

造岩鉱物からイオンが溶脱する模式図を図5に示す。溶脱したイオンのうち、Na、Mg、K、Caイオンは水中に流出する。これらのイオンが溶出したあと、残骸の結晶構造の分解によって生じたSiO₂とAl₂O₃は地下水の作用によって粘土鉱物 (SiO₂・mAl₂O₃・nH₂O) を生成する。

一方、Feイオンは水酸化鉄Fe(OH)₃ となって沈殿し、土の中に残留することになる。岩石が分解し、粘土鉱物が生成する過程で、水に溶解しにくいFeは水に溶けやすいNa、K、Mg、Caイオンとは別の挙動をすることになる。

岩石が化学的風化作用を受けて完全に溶解するとすれば、粘土鉱物の集合体である粘土には元素組成からみて地域差は期待できない。そうすると、粘土を素材とした土器にも化学組成からみて地域差は期待できないことになる。はたして、粘土を素材とした土器には元素組成からみて地域差はないのだろうか？ この問題は元素分析法による土器の産地問題の研究者にとってはきわめて重要な問題であるが、自然界に広く分布する粘土の地域差に関する研究はこれま

	有色鉱物	無色鉱物	
風化されやすい	かんらん石 輝石 角閃石 黒雲母	斜長石 カリ長石 曹長石	斜長石
風化されにくい		正長石 石英	

表3 鉱物の風化の難易度

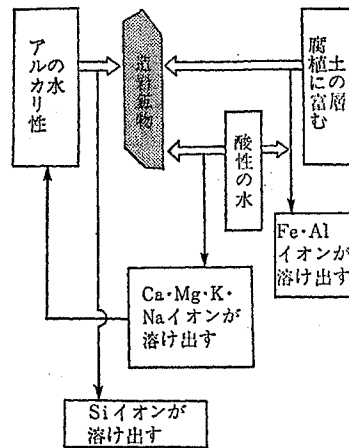


図5 イオン溶脱の模式図

で行われていなかったのである。膨大な量の粘土試料を採集し、分析することは困難であったからである。

もし、岩石が化学的風化作用によって完全に溶解するのではなく、岩屑の一部が粘土中に残っていたら、岩屑中には母岩を構成した長石類や雲母、角閃石などの微粒子が残渣鉱物として残っているはずである。そうであれば、自然界に広く分布する粘土、したがって、その粘土を素材とした土器にも地域差があることが期待できることになる。

オックスフォード大学の研究者たちによる、クレタ島産陶器とギリシャ本土のミケーネ産陶器の間に、元素分析によって地域差があったというデータは、素材粘土にも元素組成からみて地域差があることを実証している。さらに、自然界に広く分布する粘土の地域差よりも、土器遺物に地域差があることを実証することのほうが作業をしやすいことを示唆している。この点

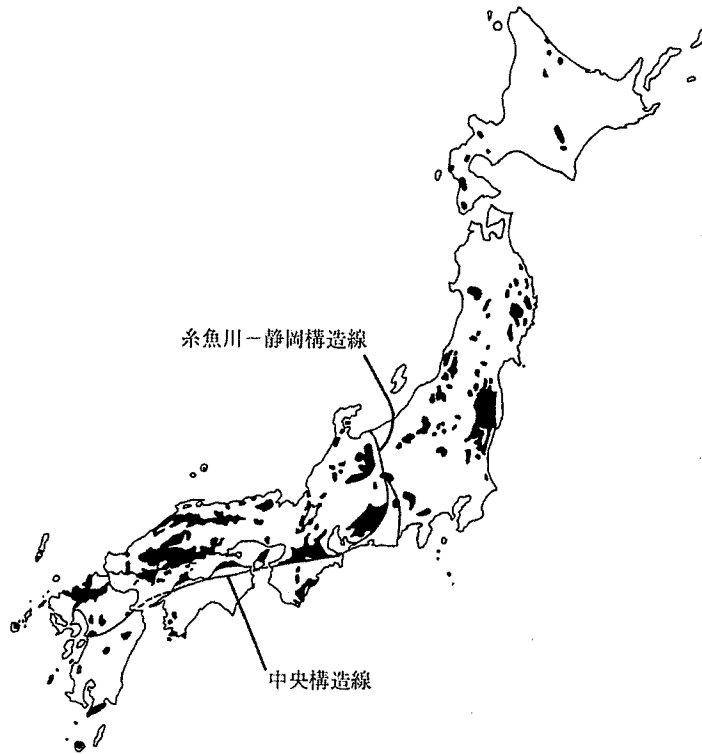


図6 日本列島における花崗岩の分布 ※黒色部が花崗岩

で、オックスフォード大学の研究は重要な意味をもつ。ただ、どの元素に地域差があるのか、また、その原因は何なのかというところまで、研究を進めることができなかった。オックスフォード大学の研究者たちの研究を継承できるとすれば、この問題を解決しなければならないことは明白である。

ここで、これまでに行われてきた、粘土に関する研究を振り返ってみよう。

粘土は2ミクロン以下の微粒子から成り立っているため、通常の顕微鏡観察ではその形を捉えることはできなかった。しかし、1912年、ラウエらによってX線の回折現象が発見され、1916年にはハディングらによって、X線粉末法が開発されて、粘土は粘土鉱物の結晶からなり立っていることが示された。1930年には、ポーリングによって、粘土鉱物の結晶は SiO_4 正四面体のシートと $\text{Al}_2(\text{OH})_6$ の正八面体シートが積み重なって層状構造となっていることが提示された。

1940年代以降には電子顕微鏡の開発によって、

粘土鉱物の結晶の形が捉えられ、粘土鉱物に関する研究は大きく前進した。

高分解能の電子顕微鏡による観察で、粘土鉱物は10~15Å程度の間隔で層が重なっている層状構造であることがわかった。さらに、X線回折法で各層は何枚かのシートからなることがわかった。シートには SiO_4 の正四面体の四隅のO原子は孤立電子対をもっているので、隣の SiO_4 正四面体のO原子と2次元方向に共有結合を繰り返して形成された SiO_4 シートと、 Al_2O_6 の正八面体が2次元方向に結合したシートがあることがわかった。各シートはO原子の共有結合によって、層を形成する。層間には水分子が入り込み、分極した水分子(双極子)による分子間力によって結び付けられ、層状構造ができることになる。O原子間の共有結合に対して、水分子による分子間力は弱いので、外部から力が働くと、層間にズレが生じることになる。これが粘土の可塑性の原因である。

1枚の SiO_4 四面体シートと1枚の Al_2O_3 の八面体シートからなる層が重層して層状構造を

形成する粘土鉱物を(1:1)構造型の粘土鉱物と呼び、陶磁器の素材となるカオリンがこのタイプの結晶構造をもつ。

また、2枚の SiO_4 四面体シートがサンドウィッチ状に1枚の Al_2O_3 八面体シートを挟んだ層状構造を(2:1)型構造と呼び、この構造をもつ粘土鉱物としてモンモリロナイトがある。

二つの異なるタイプの層状構造を中心に種々の結晶構造をもつ粘土鉱物があり、それぞれ、その持つ機能も異なるが、化学分析の結果、粘土鉱物の理論化学式は $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot m\text{SiO}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ で与えられることになった。

このように、粘土鉱物の結晶構造に関する研究を中心に粘土の研究は進められてきた。その結果、粘土のもつ種々の機能を説明することができた。しかし、自然界に広く分布する粘土の地域差に関する研究は行われてこなかったのである。

ここで改めて、粘土は自然界においてどのように分布しているのかをみてみよう。

日本列島の地質の基盤は花崗岩類で構成されているが、地表表面は土壌や粘土からなる地層に厚く覆われており、岩石の露頭は限られたところしか見つけられない。

地表に露出している花崗岩類の分布図を図6に示す。白地の部分は土壌、粘土などで構成される地層である。ここで、岩石、土壌、粘土が分布する様子をもう少し細かくみてみよう。

神戸市の背後にそびえる六甲山は花崗岩系の岩石からできている。しかし、岩石が露出しているところはわずかで、ほとんどのところは花崗岩が風化してできた「まさ土」で覆われている。「まさ土」とは花崗岩の岩屑や粘土が混ざった土であり、有機物を含む地表の土壌の下に地下に100メートル以上の厚さで堆積している。「まさ土」に混ざっている粘土は当然、花崗岩に由来する粘土である。

このようにして、近畿地方では、北部の敦賀半島や比良山、中部の比叡山・生駒山・笠置山、南部の葛城・金剛山は花崗岩、花崗閃緑岩などの花崗岩系の岩石でできており、これらの地域では花崗岩系の岩石に由来する土壌と粘土で覆われている。そして、岩石の露頭は限られたと

ころにしか見つけられない。

他方、関東地方では「関東ローム」が地表を広く覆っている。「ローム」は火山灰が風化してできた土であるが、シルト、砂(いずれも火山噴出物の岩屑)と粘土が混ざり合った土である。当然、「ローム」層に含まれる粘土は火山噴出物に由来する粘土である。「関東ローム」については団体研究で詳しく研究されており、多摩ローム、下末吉ローム、武蔵野ローム、立川ロームの4枚のローム層に分類されている。各ローム層中の粘土鉱物は表4に示されている。しかし、元素組成からみた「ローム層」の地域差に関するデータは出されていない。

一方、関東北部地域には鹿沼土が広く分布する。鹿沼土は火山活動で噴出した軽石が化学的風化を受けてできた火山灰土である。鹿沼軽石層の分布を図7に示す。鹿沼土の分布は赤城火山を中心に扇状に広がって分布しており、鹿沼軽石は赤城火山の火山活動に由来することを示している。

鹿沼土に含まれる粘土鉱物は非晶質のアロフェンであることがわかっている。鹿沼土に元素組成からみて地域差があるのかどうかはもちろん、関東ローム層の粘土と鹿沼土の粘土に地域差があるかどうか不明である。これらの粘土中に母岩の岩屑(長石類、雲母、角閃石を含む)が残っていれば、これらの粘土にも地域差があることが期待できるはずである。

上述したように、花崗岩系の岩石からも、玄武岩系の岩石(日本列島の火山活動の噴出物は玄武岩系のマグマに由来する)からも、粘土は生成する。しかし、岩石のみならず、自然界に広く分布する粘土の地域差に関する研究はこれまで行われてこなかったのである。元素組成からみた地域差の概念すらできていない現状である。

土器の産地問題の研究の根底には地域差に関する研究がある。この研究を始めるに際して、素材粘土か、それとも製品土器か、いずれを分析対象として選択すべきかは重要な問題である。その前に、製品土器についても考察しておくことが必要である。

粘土では軟質土器は焼成できるが、須恵器は焼成できなかったと考えられる。

他方、古代最大の窯業生産地であった和泉陶邑地区（大阪府堺市）には、5世紀代～8世紀代にかけて大量の須恵器を生産した須恵器窯跡群が発見されている。陶邑窯跡群の後背地を構成するのは上町台地を構成する花崗岩系の岩石である。花崗岩系の岩石に由来する粘土は高温焼成に適した粘土であると考えられる。

いずれも、在地産の粘土が素材として使われたと考えられる。この違いから、自然界に広く分布する粘土は粘土鉱物だけからなるとは考え難い。自然界に広く分布する粘土には母岩の岩屑などが含まれており、元素組成からみて地域差があることを示唆している。しかし、元素組成からみて、粘土の地域差に関する研究はこれまで行われていなかったのである。自然界に広く分布する粘土の地域差に関する分析化学的研究は試料採集の点で問題がある。

一方、製品である土器から分析するには、生産地がわかっている土器試料が必要である。縄文土器や弥生土器の場合、焼成遺構は残っていない。ところが、1000℃を超える高温で焼成する須恵器の場合、焼成中の高温を保持するため、堅固な窯を構築する必要があった。そのため、須恵器を焼成した窯跡は全国各地に残っていたのである。

しかも、日本では、行政発掘によって、国内各地で須恵器窯跡が発掘調査され、そこから出土した、膨大な量の須恵器破片が各地の教育委員会で保管されていたのである。土器の地域差に関する研究を進めようとする、自然界に広く分布する粘土よりも、これらの窯跡出土須恵器を大量に分析することのほうがはるかに作業を進めやすい。このことに着目した三辻は全国各地の教育委員会に依頼して、大量の窯跡出土須恵器片試料を提供してもらうことになった。

こうして、土器の産地問題の研究は「窯跡出土須恵器の分析化学的研究」から開始されたのである。

1 基の窯跡から採集された多数の試料は不均質系試料である。伝統的な分析化学は「均質系の分析化学」の考え方で分析作業をする。この考え方で窯跡出土須恵器の試料集団の分析作業

を進めるわけにはいかない。「不均質系の分析化学」の考え方を構築しておかなければならない。「不均質系の分析化学」については別の論文で詳述する（三辻・犬木2018）。

良質の粘土（高温焼成で固く焼結する粘土）を産出する地域には多数の窯跡が集まって窯跡群を形成している。畿内の陶邑窯跡群や九州北部の牛頸窯跡群などがその例である。素材粘土は在地産であると推察される。古代窯業生産では、素材粘土を求めて窯を設置したのである。

5. 三者の相互関係

一原材料岩石／素材粘土／製品土器一

岩石（火成岩）を構成する主成分鉱物は石英と長石類である。副成分鉱物は雲母、角閃石などの鉄化合物である。SiO₂の化学式で与えられる石英は正四面体構造をもつ(SiO₄)⁴⁻の四隅のO原子がすべて共有結合によって3次元の網状構造をつくったものであるが、一部のSi⁴⁺がAl³⁺で置換されると、電荷数を調整するため、Alイオン1個につき1個の陽イオンが必要になり長石類ができる。もちろん、結晶構造も変わる。造岩鉱物の主要な長石類は灰長石Ca「Al₂Si₂O₈」、曹長石Na「AlSi₃O₈」、正長石K「AlSi₃O₈」の3長石である。したがって、岩石はSiとAlが中核となって構成されるアルミノケイ酸塩である。

一方、岩石の風化作用で生成した粘土も理論化学式がSiO₂・mAl₂O₃・nH₂Oで示されるように、SiとAlを中核にしたアルミノケイ酸塩である。粘土を高温焼成した土器も当然、アルミノケイ酸塩である。したがって、岩石、粘土、土器はいずれもアルミノケイ酸塩である。マトリックスが同じであるという点で、これら三者を分析する上には、蛍光X線分析法は有利である。これが窯跡出土須恵器のみならず、花崗岩類の岩片試料も大量に分析できた理由である。その結果、両者はK-Ca分布図で地域差があることが見つけられ、その原因も解明されることになったのである。

デイリーによる各岩型の平均化学組成表から、岩石種によって、K、Ca、Feの含有量が異なることがわかる。さらに、鉱物のモード組成による花崗岩類の分類から、花崗岩と花崗閃緑岩

ではKとCaの含有量が異なり、花崗岩類にはKとCaからみて地域差があることが理解できる。しかし、微量元素Rb、Srの2次元分布図でも、花崗岩類に地域差があることが見つけ出されたのは蛍光X線分析の成果である。この結果、花崗岩類の地域差の原因は花崗岩類を構成する主成分鉱物、長石類であることは容易に理解できた。

長石系因子から見て、窯跡出土須恵器の化学特性が後背地の地質を構成する岩石の化学特性とよく対応するところから、窯跡出土須恵器の地域差の原因も母岩を構成した主成分鉱物、長石類であることは容易に理解できた。その結果、全国各地の窯跡出土須恵器が「土器領域」に双曲線状に分布したことがカリ長石と斜長石の風化速度の違いによって説明できたのである。

K-Ca、Rb-Srの両分布図で花崗岩類や窯跡出土須恵器の地域差を表示できるという実験データは重要な成果である。地域差を表す2次元分布図は目下のところ、この両分布図だけである。岩石、土壌、粘土、土器の地域差に関する研究では、両分布図上で地域差を認識することから始まる。これからも、両分布図はこの分野の研究では重要な役割を担うであろう。

岩石、粘土、土器は外見上からは全く異なるが、材質としては同じである。岩石が化学的風化作用を受けて生成した粘土は化学組成からみて、原材料の岩石とは異なるが、粘土の高温焼成でできた土器は素材粘土と化学組成は同じである。高温焼成によって、素材粘土の化学組成が変動しないことは、粘土の高温焼成実験によって確かめられている。したがって、自然界に広く分布する粘土の地域差は土器にも反映されていることになる。

そうであれば、自然界に広く分布する粘土の地域差を求めるよりも、各地の土器を分析する方が地域差を研究するにははるかに有利である。日本では、律令体制下で、各国において須恵器生産が行われたため、全国各地に須恵器窯跡が残ることになった。しかも、行政発掘によって、窯跡からは膨大な量の須恵器破片が発掘されることになった。須恵器窯跡が発見されていないのは北海道、山梨県、神奈川県と長崎県だけである。ほとんど全都府県において須恵器窯

跡が発見されている。日本ほど、土器の産地問題を研究する上に恵まれた国はない。しかも、窯跡の後背地には岩石の露頭もあり、岩石試料の採集もできる。日本は土器を通して過去を再現する考古科学的研究を進める上には絶好のフィールドであることが理解されよう。

一方、蛍光X線スペクトルの比較から、岩石、粘土、土器の主成分元素も同じであることが確認されている。Si、Al、Na、Mg、K、Ca、Feが主成分元素である。このことは岩石が化学的風化を受けて変質するものの、粘土中にも母岩の主成分元素が残されていることを示す。つまり、母石が完全に溶解されずに、粘土中にも石英、長石類、鉄化合物などが残渣鉱物として残り、それが粘土や土器の地域差を生む原因になったことが理解されよう。それゆえ、元素分析法による土器の産地問題の研究が可能となった。

窯跡出土須恵器を分析した結果、主成分元素K、Caに地域差があることがK-Ca分布図で示された。K、Caは母岩を構成した主成分鉱物、長石類に由来する。花崗岩類の地域差の原因は長石類であるが、残渣鉱物として残った長石類の微粒子が窯跡出土須恵器の地域差を示すことになったわけである。そうすると、乾燥粘土が硬くなる原因も長石類である可能性が出てきた。

図6に示した日本列島の花崗岩類の分布をみると、花崗岩は東日本に比べて西日本に偏って分布している。これに対応するように、須恵器窯跡群の分布も西日本に偏る。花崗岩はKが比較的多く、逆に、Caは比較的小さい岩石である。花崗岩に由来する粘土が、硬い「やきもの」を作る上に適した粘土であると推察される。

逆に、玄武岩はCaが比較的多い岩石である。生駒山西麓遺跡群では大量の縄文土器や弥生土器が作られたが、須恵器を焼成した窯跡は見つかっていない。生駒山西麓遺跡群内に分布する粘土は須恵器の素材としては適さなかったと理解されよう。

花崗岩類の中でも、花崗岩にはCaは比較的小さいが、花崗閃緑岩にはCaは比較的多い。花崗岩は西日本に多い。東北地方でも日本海側の出羽山系は花崗岩でできているが、太平洋側の北上・阿武隈山系を構成する岩石は花崗閃緑

岩である。近畿地方でも、北部、中部には花崗岩が多いが、南部の葛城・金剛山は花崗閃緑岩でできている。Caが比較的少ない花崗岩を後背地に持つところに須恵器窯跡群が多いことが理解できよう。粘土を硬く焼き固める上で、Caの含有量は大きな影響をもっていると推察される。

このように、岩石、粘土、土器の三者の間の相互関係を知ることによって、産地問題の研究の理解が深められよう。

参考文献（刊行順）

- 田賀井秀夫1974『入門 やきものの科学』共立出版
久野 久1976『火山及び火山岩 第2版』岩波書店
倉林三郎1990『粘土と暮らし』東海大学出版会
前野昌弘1993『粘土の科学』日刊工業新聞社

高橋正樹1999『自然史の窓7 花崗岩が語る地球の進化』岩波書店

三辻利一2013『新しい土器の考古学』同成社

三辻利一・中園 聡・平川ひろみ2013「土器遺物の考古学科学的研究」『分析化学』第62巻第2号、日本分析化学会

三辻利一・犬木 努2018「土器の産地問題研究における分析化学—不均質系の分析化学—」『志学台考古』第18号、大阪大谷大学歴史文化学科

挿図出典

図1・3、表2：前野1993より

図2・4・6：高橋1999より

図5・7、表3・4：倉林1990より

表1：久野1976より