

「不均質系の分析化学」の背景

三 辻 利 一

1. はじめに

19世紀代は物理学、化学を中心とした自然科学系の諸分野の研究が著しく進歩した時代である。その過程で物質中に含まれる元素の含有量を正確に求めることが必要となった。種々の元素の原子量測定もその一つである。こうした背景から、種々の分析法を開発する純正科学として、「分析化学」という専門分野が誕生した。

純正科学としての「分析化学」の手法では、固体状態（不均質系）である土器試料や岩石試料（不均質系）を高温で熔融し、一旦溶液状態（均質系）にして個々の元素に単離したのち、酸化物形にして天秤で重量測定し、正確な含有量を求めた。言い換えれば、「均質系の分析化学」の考え方で固体試料（不均質系）である土器や岩石を分析したわけである。

一方、物理学分野では、19世紀の後半から20世紀前半にかけて、電磁波の研究が著しく進んだ。その成果を活用して、新しい分析法として、種々の分光分析法が開発された。蛍光X線分析法や放射化分析法、発光分光分析法などである。

これらの分析法では物質中に含まれている多数の元素を同時に測定できるという利点がある（同時多元素分析法）。優れた機能をもつ分光結晶や検出器が開発されると、分光分析法は応用分野の研究に広く活用されることになった。蛍光X線分析では土器試料や岩石試料（不均質系）を粉砕・均質化し、錠剤試料を作成して、「準均質系試料」として分析作業を行っている。分析対象が均質系であると仮定して分析作業をするのが「均質系の分析化学」の考え方である。

一方、自然界に広く分布する岩石は明らかに不均質系である。土器の素材となる粘土は粘土粒子が細かいので、均質であるように見えるが、均質系であるかどうかは分析してみないとわからない。自然界に出て試料採集をして、初めて、自然界に広く分布する物質のほとんどが不均質

系であることがわかる。元素分布からみて、岩石に地域差があることが実証できれば、岩石が風化して生成した粘土、それを素材とした土器胎土にも地域差があることが期待できるわけである。

地域差があることが確認されて初めて、元素分析法による土器遺物の産地問題の研究が成り立つ。元素分析法による土器遺物の産地問題の研究を進めようとする、その前に、土器遺物の地域差に関する研究をしておかなければならない。この研究は分析対象が不均質系であるから、多数の試料の分析が必要となる。試料の採集の方法やデータ解析の方法は「不均質系の分析化学」の考え方で進められることになる。

このように、純正科学としての「分析化学」が応用分野の研究に活用されるとき、当然、本来の「分析化学」の考え方をそのまま適用することに違和感がある。「不均質系の分析化学」の考え方を構築しておかないと、土器遺物の地域差に関する研究や産地問題の研究を展開することはできない。

本論文では、土器遺物の地域差に関する研究を進める過程で、どのようにして「不均質系の分析化学」が認識され、土器遺物の地域差に関する研究を展開することができるようになったのかを解説する。

2. 純正科学の「分析化学」から、応用分野の「分析化学」へ

京都大学理学部化学教室分析化学研究室（担当：石橋雅義教授、藤永太郎教授）ではポーラログラフィーという電気化学分析法の開発研究を進めていたが、同時に、「分析化学」の応用分野への応用として、海洋化学、陸水化学の研究も進めていた。

海水や陸水は濾過すれば均質系試料となるので、均質系の分析化学の考え方で分析作業を進

めることができる。しかし、海水や陸水は静止しているわけではない。そのため、たとえば、琵琶湖では一定の場所（定点と呼ぶ）で試料を継続的に採水して分析し、陸水の日周変化、年周変化、季節変化などを追跡し、琵琶湖の水の動態を研究した。純正科学としての「分析化学」の応用分野への適用の始まりである。

しかし、自然界に広く分布する岩石（固体）は不均質系であり、どのように不均質であるのか全く研究されていない状態で、地球化学研究として、岩石試料を分析するわけにはいかない。これが京都大学理学部分析化学教室では岩石を地球化学研究の対象として分析しなかった理由である。もちろん、大量の岩石や土器試料の分析処理ができる完全自動式の蛍光X線分析装置がまだ開発されていなかったからでもあるが、自然界に広く分布する岩石は不均質系であるから、どのように試料を採集して分析し、分析データをどのような方法で解析すれば、有意な情報が引き出せるのか、その考え方ができていなかったことが最大の理由である。

粘土は岩石が風化されて生成したものである。岩石が不均質系であれば、均質化された粘土は粒子が細かいとはいえ、不均質系であると考えるのが常識である。自然界に分布する粘土に元素組成からみてどのような不均質性があるのか、分析データも全く出されていなかった。当然、土器遺物の胎土にどのような地域差があるのか、基礎データを出すことから研究を始めなければならなかった。「土器遺物の産地問題」の研究に入る前に、「土器遺物の地域差に関する研究」を進めておかなければならないのは当然のことである。「土器遺物の地域差に関する研究」には、どの土器遺物を選択するのが重要な問題となった。

3. 何故、窯跡出土須恵器が分析対象となったか

土器胎土の地域差に関する研究を進めるためには、土器を焼成した窯跡が残っており、そこから土器破片が大量に出土する土器があれば最適である。筆者が東北大学金属材料研究所から奈良教育大学へ転勤して数年経過したとき、大阪府藤井寺市にある野中古墳から出土した硬質

土器が朝鮮半島から持ち込まれた陶質土器か、それとも、大阪府堺市にある「陶邑」と呼ぶ須恵器窯跡群で焼成された須恵器であるかを元素分析法で判断できるかという問題—いわゆる「土器遺物の産地問題」が持ち込まれた。その当時、考古学研究に自然科学の方法を取り入れた考古科学研究を進めようとする気運が高まっていたのである。

そのとき、須恵器という古代土器を焼成した窯跡が残っていることを初めて知った。さらに、「陶邑」の発掘現場を訪ねると、100基を超える須恵器窯跡が残っており、灰原を含めてそれぞれの窯跡からは大量の須恵器の破片が出土している現場をみた。さらに、このような須恵器窯跡は全国各地に残っており、行政発掘によって窯跡から発掘された、膨大な量の須恵器破片を全国各地の教育委員会が保管していることを知った。

もし、窯跡（群）から出土した須恵器試料が不均質系試料であっても、その分析値が窯跡（群）としてまとまっており、他の地域の窯跡（群）出土須恵器の分析値との間に地域差があることが実証できれば、須恵器の産地推定法が開発できる可能性があるわけである。逆に、そうでなければ、元素分析法による土器遺物の産地問題の研究を前へ進めることはできず、この研究を諦めなければならない。窯跡（群）出土須恵器こそ土器遺物の地域差を研究する絶好の分析対象であると判断された。まずは、全国各地の窯跡（群）出土須恵器試料を集めなければならない。全国各地の教育委員会から、窯跡（群）出土須恵器の破片を大量に提供してもらうことになった。

こうして、「土器遺物の地域差に関する研究」の分析対象として、窯跡（群）出土須恵器が取り上げられることになったのである。

4. 地域差を表示する方法の発見

岩石が風化して生成した粘土を素材とした土器遺物には岩石同様、多数の元素が含まれている。これらの元素を無差別に分析しても有意な情報を引き出すことは期待できない。まず、これらの元素の中から、地域差を示す元素を見つけ出さなければならない。

そのために、各地の窯跡（群）出土須恵器の蛍光X線スペクトルが比較された。どの窯跡（群）出土須恵器の蛍光X線スペクトルでも観測されるスペクトル線は同じであり、その窯跡（群）から出土した須恵器胎土特有の元素はないことがわかった。このことは定性分析法で土器遺物の地域差に関する研究はできないことを意味する。

しかし、蛍光X線スペクトルを注意深く比較すると、微量元素RbとSrのスペクトル線の高さが、窯跡（群）が所在する地域によって逆転することが観測された。さらに、主成分元素KとCaはスペクトル線の高さが逆転することはなかったが、ピークの高さの比は大きく変動することがわかった。これらの元素のスペ

クトル線は隣接して観測されるので、ピークの高さの比較は容易であった（図1）。しかし、同じ窯跡出土須恵器の蛍光X線スペクトルではこのようなことは観測されなかった。

かくして、これら4元素が窯跡（群）出土須恵器の地域差を表す元素であると考えられた。「地域差を示す元素の発見」である。ばらついて分布する不均質系材料の地域差を、具体的に、目に見える形で表示するためには2次元分布図が適している。主成分元素どうしを組み合わせたK-Ca分布図、微量元素同志を組み合わせたRb-Sr分布図の2枚の2次元分布図上で地域差を比較することにした。不均質系材料の「地域差を比較する方法」の発見である。

5. 分析装置の選択と分析値の表示法

固体である須恵器試料は不均質系である。同

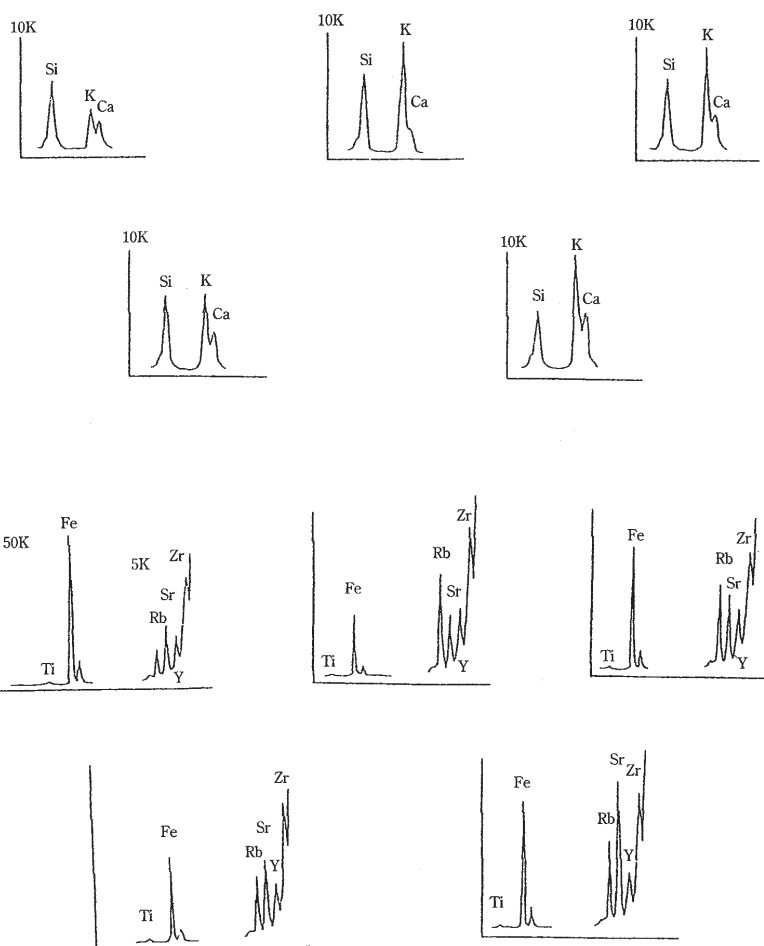


図1 各地の窯跡出土須恵器の蛍光X線スペクトル

じ窯跡から出土した須恵器試料の分析値が一致するとは限らない。そのため、同じ窯跡から出土した多数の須恵器片試料を分析しなければならない。しかも、須恵器窯跡は全国各地に数千基はあるという。窯跡（群）出土須恵器の地域差に関する研究を進めようとする、膨大な量の須恵器試料の、長期間にわたる分析作業が予想された。したがって、大量の試料の分析処理ができる蛍光X線分析装置が必要であった。この研究に合わせるようにして市販されたのが、Keve社製の完全自動式の蛍光X線分析装置（エネルギー分散型）であった。理学電機（株）を通してこの装置を購入し、奈良教育大学に設置されるという幸運に恵まれた。

もう一つの問題は分析値の表示法である。通常、観測される蛍光X線強度は、X線管球、試料、検出器の三者間の幾何学的条件が装置によっ

て異なるので、観測される蛍光X線強度には普遍性がない。そのため、蛍光X線分析では、通常、検量線（蛍光X線強度と含有量の関係）を作成して、検量線を通して、観測された蛍光X線強度から絶対含有量を求める。しかし、膨大な量の土器試料を長期間にわたって分析していくためには、分析値の表示法をより簡便化しておくことは不可欠である。

完全自動式の分析装置では同時に多数の試料が搭載できる自動試料交換器が連結されているので、多数の試料の中に、基準となる試料を入れて置き、基準物質の各元素の蛍光X線強度で他の試料の蛍光X線強度を標準化する方法が採用された。標準化された蛍光X線強度は装置に関係なく普遍的な値である。そのためには、基準物質となる試料はどこの研究室でも持っている試料でなければならない。

岩石試料の分析のための標準試料として、日本国通産省地質調査所から全国各地の研究機関に配布されていた岩石標準試料があった。20種類ほどの岩石標準試料のうち、JG-1が最適の標準試料として選択された。JG-1は群馬県で産出される花崗岩系の岩石を粉末にしたものである。須恵器窯跡(群)の後背地の地質を構成する岩石は花崗岩系の岩石であることが多いので、花崗岩系の岩石標準試料としてJG-1が選択されたわけである。さらに、花崗岩類は日本列島の地質の基盤を構成する岩石であり、花崗岩類の地域差に関する研究を進める上にも、JG-1は標準試料として最適である。

こうして、長期間にわたって膨大な量の土器や岩石試料の分析作業を継続していくための分析装置と分析値の表示法が決まった。

6. 窯跡群出土須恵器の分析化学的研究

分析作業を進めていくための種々の条件が決まった段階で、全国各地の「窯跡(群)出土須恵器の分析化学的研究」が開始された。

まず、畿内にある「陶邑窯跡群」出土須恵器が大量に分析された。「陶邑」の榎地区にある、初期の窯跡である大庭寺TG-231号窯跡出土須恵器の両分布図を図2に示す。100点ほどの試料は両分布図でよくまとまって分布することがわかる。しかし、まとまっているものの、点に

はならず、ある程度の広がりをもって分布していることがわかる。これが不均質系材料の特徴である。窯跡出土須恵器胎土も不均質系であることが明白である。不均質系ではあるが、一定の領域内にまとまって分布することが示されたわけである。

このことは不均質系である土器遺物の地域差に関する研究上、きわめて重要な発見である。広がりをもった試料集団のほとんどの試料を包含するようにして、TG-231領域を長方形で示してある。この領域は定性的な領域ではあるが、他の窯跡出土須恵器の分布領域と比較する上には便利である。

さらに、「陶邑」の大野池地区にある狐池南窯跡(ON-231)出土須恵器の両分布図を図3に示す。100点ほどの試料も両分布図でよくまとまって分布することがわかる。図3には、TG-231窯の領域とON-231窯の須恵器の分布領域が比較されている。同じ「陶邑」内の窯跡出土須恵器とはいえ、両分布図での分布位置は微妙にずれており、小さな地域差があることがわかった。窯跡が異なれば、素材粘土を採集する場所も異なっており、不均質系試料特有の小さな地域差が観測されたわけである。

さらに、「陶邑」内の多数の窯跡出土須恵器を分析した結果、両分布図で「陶邑領域」としてまとまることが示された(図4)。窯跡群として分析値がまとまるということは重要な発見であった。「陶邑」領域としてまとまるということは同じ母岩に由来する粘土が数キロメートル四方の陶邑内に広がって分布していることを意味する。その粘土の中にも、不均質系特有の小さな地域差があり、「陶邑」内の窯跡出土須恵器の間にも小さな地域差が生じたことが理解される。

一方、福岡県朝倉市にある、初期須恵器の朝倉窯跡群(小隈、山隈、八並の3基の窯跡が発見されている)出土須恵器の両分布図を図5に示す。陶邑窯跡群同様、朝倉窯跡群としてよくまとまって分布するとともに、陶邑窯跡群の分布領域とは明らかにずれて分布しており、両者の相互識別は容易であることがわかった。この分布の違いは母岩が異なることが原因であると考えられる。

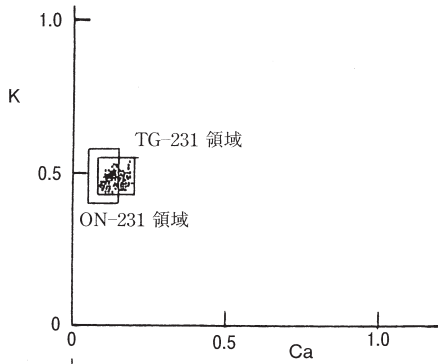


図2 陶邑・TG-231号窯出土須恵器の両分布図

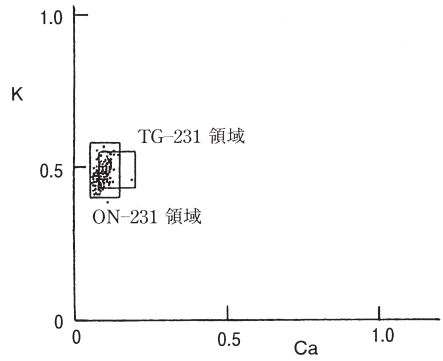


図3 陶邑・ON-231号窯出土須恵器の両分布図

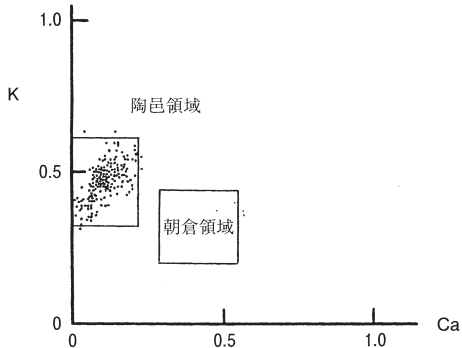
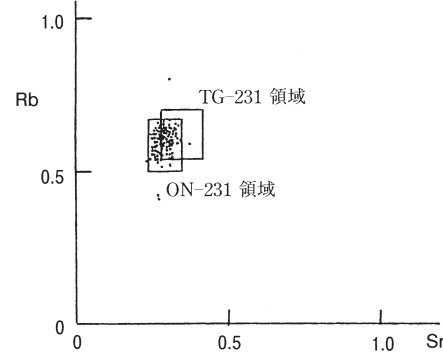
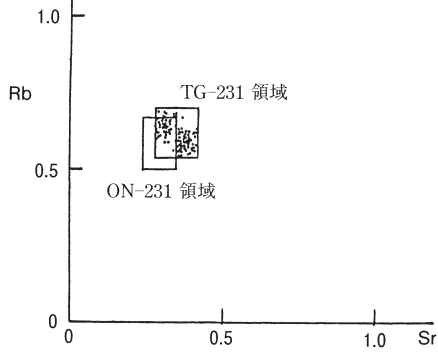


図4 陶邑窯群の須恵器の両分布図

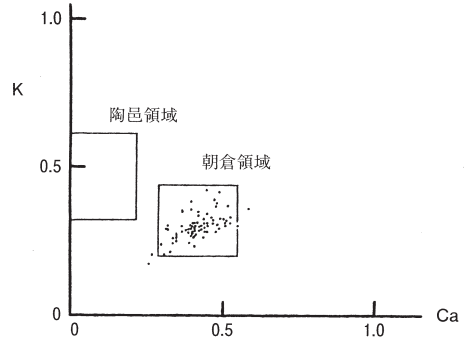
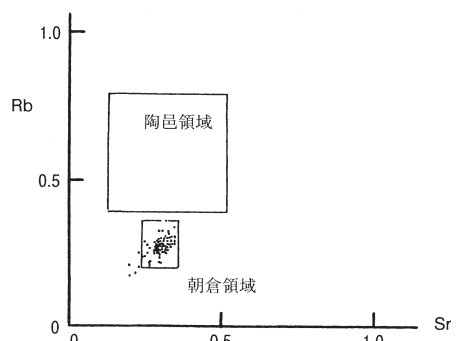
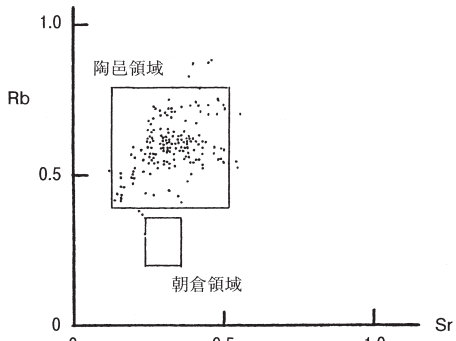


図5 朝倉窯群の須恵器の両分布図



こうして、窯跡群出土須恵器は両分布図で窯跡群ごとによくまとまって分布するが、両者の間には不均質系特有の地域差があることも実証されたわけである。これが、窯跡群出土須恵器には地域差があり、他の地域の窯跡群出土須恵器とは両分布図で定性的ではあるが、相互識別できることが実証された最初の例である。これは土器胎土の地域差に関する研究上、きわめて重要なデータである。

このデータを出発点として、窯跡群出土須恵器の地域差に関する本格的な研究が開始された。このようにして、全国各地の窯跡群出土須恵器の分析データを両分布図上で分布位置を比較していけば、窯跡群出土須恵器の地域差が認識され、須恵器産地推定法の開発が期待できるわけである。これが「窯跡群出土須恵器の分析化学的研究」のもつ大きな意義である。言い換えれば、「窯跡群出土須恵器の分析化学的研究」とは、不均質系の材料である「窯跡群出土須恵器胎土の地域差に関する研究」であるわけである。この研究には、10年を超える年月を要した。

7. 花崗岩類の分析化学的研究

全国各地の窯跡群出土須恵器には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が、その原因を解明しておくことが必要である。窯跡群出土須恵器の素材粘土は在地産であると考え、窯跡群の後背地の地質を構成する岩石（母岩）の岩片試料を分析しておく必要がある。ここで自然界に広く分布する不均質系の材料から、地球化学的研究における分析試料をどのように採集するかが問題となった。

不均質系の材料の中でも比較的均質化された材料として、砂浜のビーチサンドが考えられた。1ヶ所の砂浜が1基の須恵器窯跡と置き替えられたのである。窯跡出土須恵器同様、1ヶ所の砂浜で採集されたビーチサンド試料が両分布図上でまとまって分布するかどうかである。もし、1ヶ所の砂浜のビーチサンドが同じ岩石に由来するものであれば、窯跡出土須恵器同様、1ヶ所の砂浜のビーチサンド試料も両分布図でまとまって分布するはずである。

この研究のフィールドとして、福井県敦賀市の敦賀半島が注目された。地質図をみると、敦

賀半島は花崗岩からできており、半島の東側と西側に10ヶ所ほどの砂浜がある。さらに、対岸の越前岬側は砂岩や粘板岩などの堆積岩に由来する古生層が広がっており、白色系の敦賀半島のビーチサンドに対して、やや黒色味を帯びたビーチサンドをもつ砂浜が10ヶ所ほどある（図6）。ビーチサンドの化学特性を比較する上には、絶好のフィールドである。

多数のビーチサンド試料を分析した結果、1ヶ所の砂浜のビーチサンド試料は、1基の窯跡出土須恵器同様、両分布図でまとまって分布することが実証された。さらに、敦賀半島のどの砂浜のビーチサンド試料も両分布図で同じ領域に分布し、敦賀半島の砂浜のビーチサンド試料は窯跡群出土須恵器同様、同じ母岩に由来する砂であることもわかった。このことは敦賀半島の地質が同じ花崗岩で構成されていることを示唆している。

ここで、敦賀半島を構成する花崗岩を分析してみた。半島各所にみられる露頭から採集された岩石試料が分析された。1ヶ所の露頭が1基の窯跡に見立てられたのである。1ヶ所の露頭で採集された岩石試料も両分布図でまとまって分布した。敦賀半島の数ヶ所の露頭で採集された岩石試料も両分布図で同じ領域に分布した。数ヶ所の露頭は窯跡群に相当するところから、各砂浜のビーチサンドは後背地の地質を構成する花崗岩が破碎されて、砂浜に堆積したものであることがわかった。

他方、越前岬側の砂浜のビーチサンド試料も砂浜ごとにより、両分布図では敦賀半島のビーチサンド試料群とは対象的な位置に分布した（図7）。その原因は後背地の地質を構成する岩石種の違いであると考えられた。

露頭から採取された岩石片試料の分析データは一つの地域の岩石の分析データとしてまとめられる。こうして、花崗岩類の地域差に関する研究方法として、窯跡（群）出土須恵器と同様、露頭で採取された岩石試料の分析データを両分布図上で比較する方法が採用されることになった。

近畿地方には、敦賀半島はじめ、比良山、比叡山、伊吹山、六甲山、笠置山、生駒山、葛城山、金剛山など、花崗岩系の岩石で構成されて

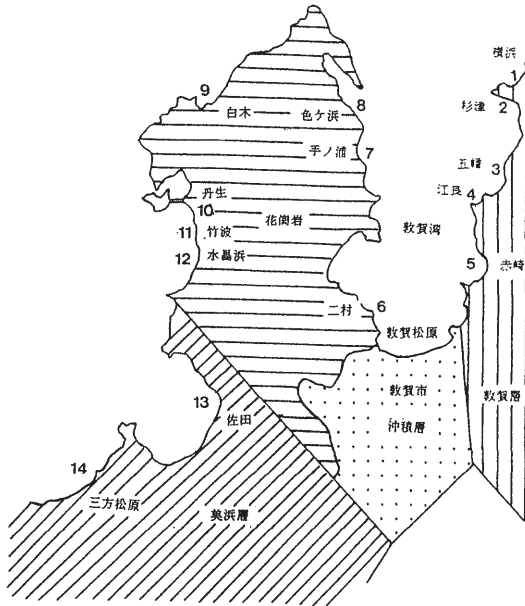


図6 敦賀半島周辺の地質概略図とビーチサンド試料の採取地点

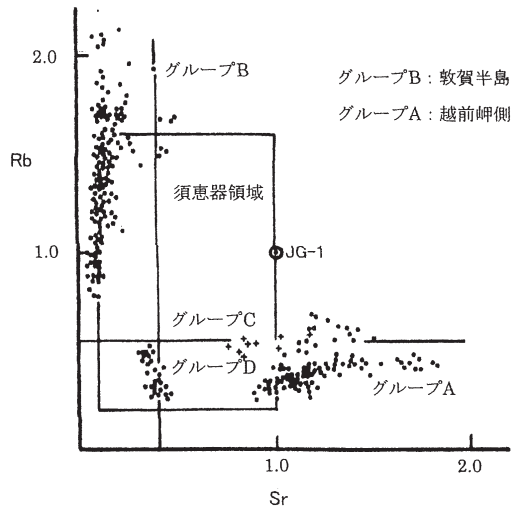


図7 敦賀半島における砂浜のビーチサンドのRb-Sr分布図

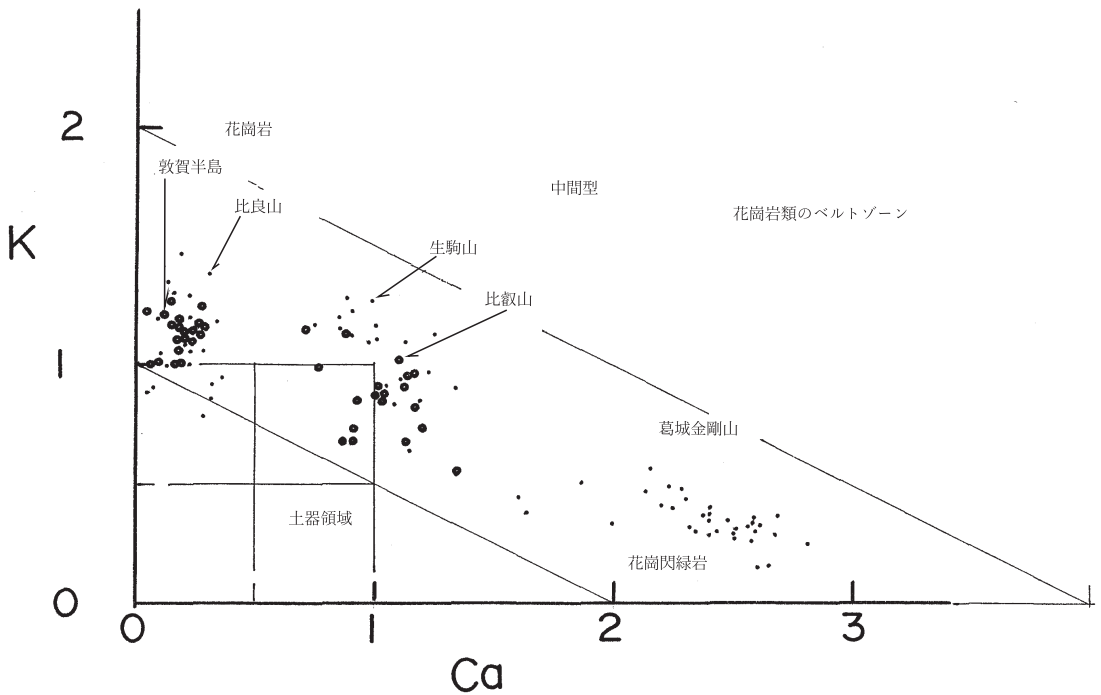


図8 近畿地方の花崗岩類のK-Ca分布図

いる山が多い。これらの山々の露頭で採取された岩片試料の分析結果を一例として図8に示す。山ごとに岩片試料は「花崗岩類のベルト帯」の中でまとまって分布し、一つの山は同じ花崗岩系の岩石で構成されていることを示した。このことは花崗岩類の地域差に関する研究を進める上に重要な発見であった。

畿内の山々の花崗岩類の岩片試料を分析する前に、全国各地の花崗岩類の岩片試料が大量に分析されていた。全国各地の花崗岩類の岩片試料は、K-Ca、Rb-Srの両分布図上で、「花崗岩類のベルト帯」を形成することが実験データで示されていた。このベルト帯はKとCa、RbとSrが逆相関の関係になっている。これには理由があるはずである。

岩石学の教科書を見ると、花崗岩類を構成する主成分鉱物は石英と長石類、それに雲母、角閃石などの鉄化合物である。花崗岩類は白色系の岩石であるから、最も重要な主成分鉱物は石英と長石類である。両者の中でKとCaを主成分元素として含むのは長石類である。

造岩鉱物を構成する長石類は灰長石「Ca₂(Al₂・Si₂)O₈」、曹長石「Na(Al・Si₃)O₈」とカリ長石「K(Al・Si₃)O₈」の3種類の長石類である。灰長石と曹長石の間で(Ca+Al)と(Na+Si)の組み合わせでイオン置換が起こる。このイオン置換が極端なまでに起こると、灰長石は曹長石に変換される。灰長石と曹長石の間には、種々の化学組成をもつ完全固溶体(長石類)ができる。これらを「斜長石系列の長石類」と呼ぶ。さらに、曹長石とカリ長石の間でNaとKのイオン置換が起こると、曹長石はカリ長石に変換されることになる。これらのイオン置換過程で種々の化学組成をもつ完全固溶体(長石類)が形成される。これらの長石類を「カリ長石系列の長石類」と呼ぶ。

花崗岩類中に含まれる長石は、「斜長石系列の長石類」と「カリ長石系列の長石類」からなるわけである。3長石類のイオン置換過程の両端にCaとKがあり、両者は逆相関の関係をもつことになる。これがCaとKの間に逆相関の関係がある理由である。また、CaとKからみて種々の化学組成の花崗岩類がある理由でもある。その結果、K-Ca分布図では、逆相関の関

係をもつ「花崗岩類のベルト帯」が形成されることになったと考えられる。

他方、微量元素RbとSrはそれぞれ、主成分元素KとCaに化学的性質は類似しており、しかも、イオン半径がほとんど同じであることから、長石類の結晶が形成される時、主成分元素KとCaに入れ替わって、一定量の微量元素RbとSrが結晶格子に配置されたものと考えられる。この結果、RbとSrの間にも逆相関の関係が生じることになったと理解される。

畿内の花崗岩類が、両分布図で「花崗岩類のベルト帯」に山々ごとにまとまって分布したということは花崗岩類の化学組成が同じではなく、山ごとに異なることを意味する。つまり、花崗岩類にも地域差があることを示している。このことも花崗岩類に関する重要な発見である。その原因は花崗岩類を構成する主成分鉱物、長石類であることが明らかである。花崗岩類の地域差は岩石化する前のマグマにあったことが考えられる。地下深くのマグマ自体が不均質系で、地域ごとに、あるいは、岩石化する時期によってマグマの化学組成が異なることを示唆している。

「花崗岩類の分析化学的研究」とは「花崗岩類の地域差に関する研究」であったわけである。将来、日本列島の地質の基盤を構成する花崗岩類の地域差に関する研究は「花崗岩類の岩石学的研究」あるいは「花崗岩類の地球化学的研究」として大きく発展できる可能性がある。その結果から日本列島の成因についても考察することができるであろう。

8. 窯跡群出土須恵器の地域差の原因

長石系因子からみて、花崗岩類に地域差が生じたのであれば、母岩の残渣鉱物が微粒子として残っている粘土を素材とした窯跡群出土須恵器胎土の地域差の原因も母岩の長石類であると考えられる。そのことを実証するために、近畿地方の窯跡群出土須恵器と窯跡群の後背地の地質を構成する花崗岩類をK-Ca分布図上で対応させてみた。

図9には、敦賀半島の花崗岩類と興道寺窯跡(福井県三方郡美浜町)出土須恵器、図10には、比良山の花崗岩類とその麓の須恵器窯跡である

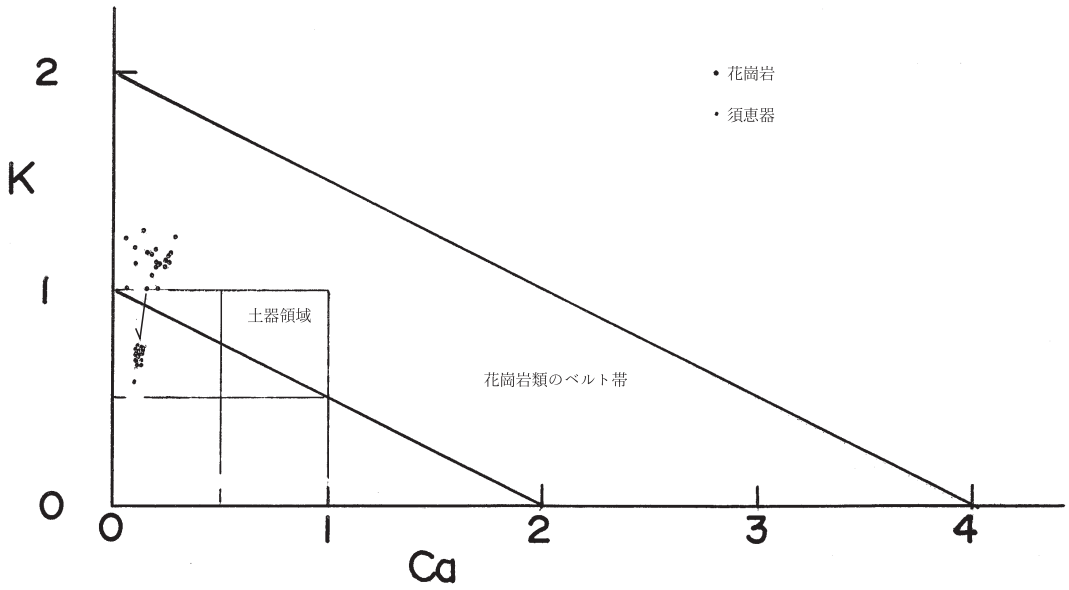


図9 敦賀半島の花崗岩と興道寺窯跡出土須恵器の対比

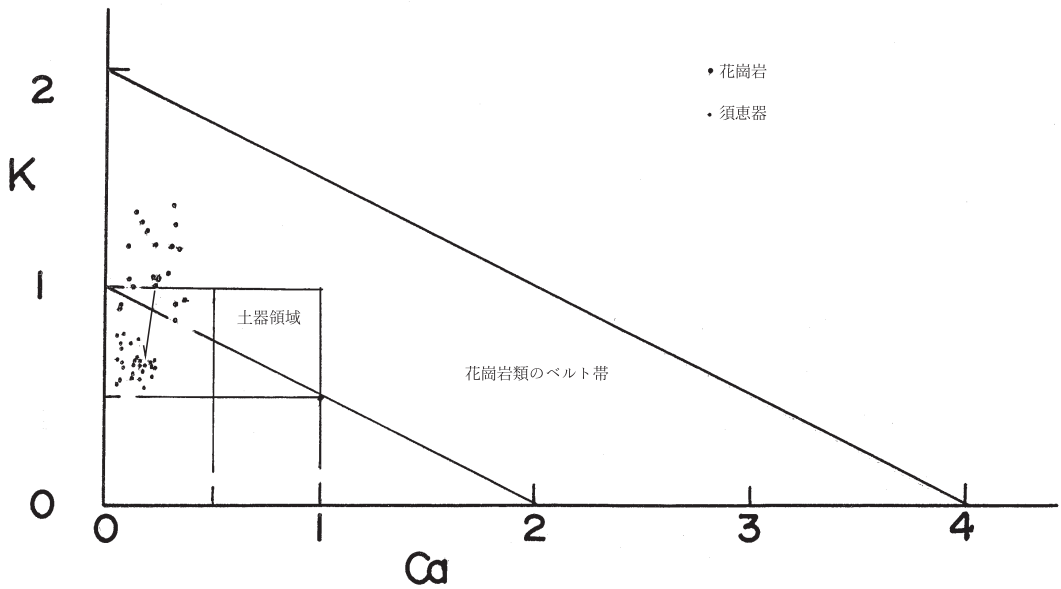


図10 比良山の花崗岩と山麓の窯跡群出土須恵器の対比

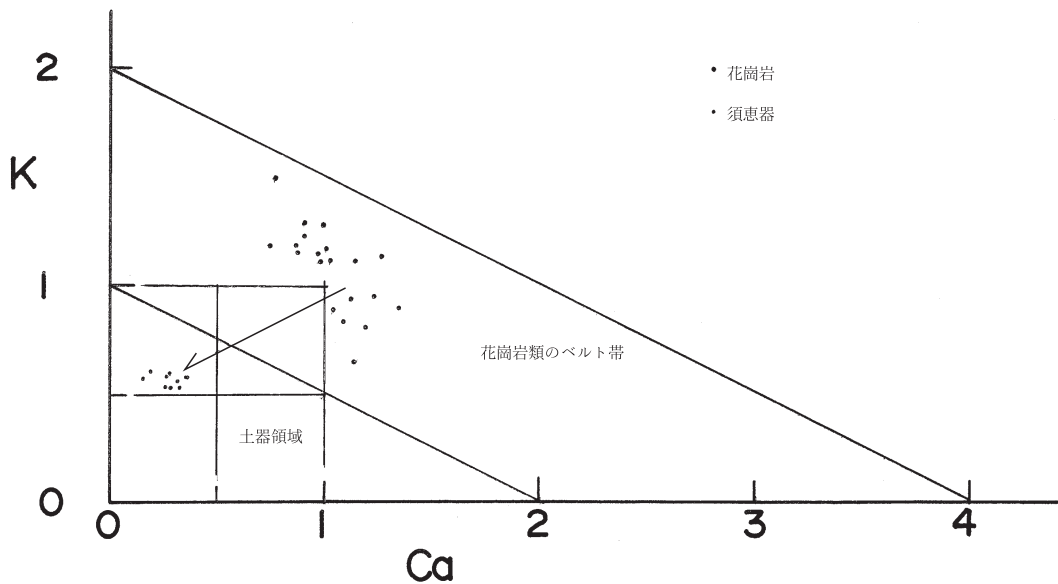


図11 生駒山の花崗岩と生駒山東麓窯跡群出土須恵器の対比

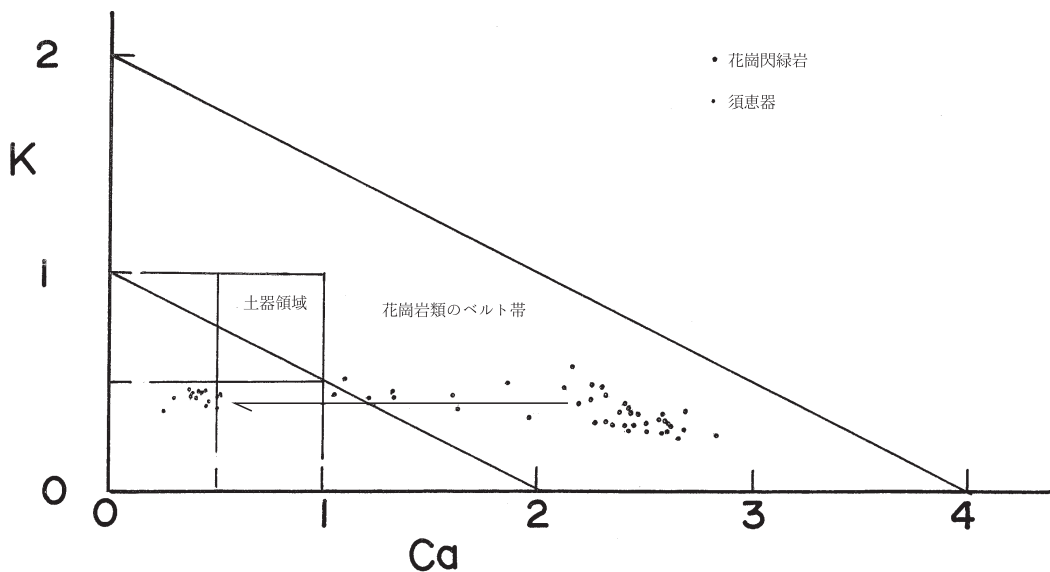


図12 葛城山・金剛山の花崗閃緑岩と中佐備窯跡出土須恵器の対比

堅田天神山窯跡群（滋賀県大津市）、寺谷窯跡（同高島市）、小俵山窯跡（同前）出土須恵器、図11には、生駒山の花崗岩類と生駒山東麓にある須恵器窯跡群出土須恵器、図12には、葛城・金剛山の花崗岩類とその麓にある中佐備窯跡（大阪府富田林市）出土須恵器のK-Ca分布図を示す。

花崗岩類の試料のばらつきが大きいのに対して、窯跡出土須恵器胎土は狭い範囲にまとまって分布しており、粘土は風化過程で均質化されていることがわかる。しかし、Kを比較的多く含み、Caが比較的少ない花崗岩類を後背地に持つ興道寺窯跡、堅田天神山窯跡群、寺谷窯跡、小俵山窯跡出土須恵器は、Kが比較的多く、Caが比較的少なく、「土器領域」の第Ⅱ象限の左側の領域に偏って分布している。

逆に、Kが比較的少なく、Caが比較的多い花崗閃緑岩を後背地にもつ中佐備窯跡出土須恵器は、Kが比較的少なく、Caが比較的多く、「土器領域」の第Ⅲ象限に分布していることがわかる。Rb-Sr分布図でも同じような結果が得られた。

窯跡群出土須恵器胎土の長石系因子にみられる化学特性は後背地の地質を構成する花崗岩類の化学特性とよく対応することがわかる。岩石が風化され生成した粘土を素材とした窯跡群出土須恵器胎土には、窯跡群の後背地の地質を構成する花崗岩類の化学特性の痕跡が残されていることがわかる。そうすると、窯跡群出土須恵器胎土の地域差の原因も母岩の長石類であることが理解できる。

こうして、不均質系材料である花崗岩類や窯跡群出土須恵器胎土に地域差があることが理解されたのである。この分析作業やデータ解析を進める上で「不均質系の分析化学」の認識が必要だったわけである。この認識があったからこそ、膨大な量の不均質系の材料が分析できたのである。また、その分析作業を遂行する上で、完全自動式の蛍光X線分析装置が不可欠だったわけである。この分析装置が普及していないということは「不均質系の分析化学」の認識が普及していないことを意味する。土器遺物の産地問題や岩石の地球化学研究にとっては非常に残念なことである。

9. 「まとめ」と「今後の課題」

岩石や岩片が風化して生成した粘土は不均質系の材料である。岩石や粘土に含まれる元素分布が全く出鱈目であるのか、それとも、自然界の規則にしたがって元素分布に規則性があり、その結果、元素分布に地域差が生じたのか、もし、地域差があれば、どのような地域差があるのかを解明するのが「不均質系の分析化学」の役割である。この認識があって初めて、土器遺物の産地問題の研究が可能となる。この研究の出発点になった分析対象が窯跡出土須恵器であったわけである。窯跡と限定することによって試料採集が容易となった。

窯跡（群）出土須恵器がK-Ca、Rb-Srの両分布図上で地域差があることが実証され、須恵器の産地問題の研究が推進できることがわかった。須恵器の産地推定ができれば、須恵器の伝播を通して、過去を再現することができる。さらに、窯跡群出土須恵器が両分布図でまとまって分布するという事は同じ岩石に由来する粘土は窯跡群が分布する地域内に広がって分布していることを意味する。このことを実証すれば、生産地である窯跡が残っていない土器類も両分布図上で地域差を示す可能性がある。このことは実験データで示さなければならない。

埴輪、土師器、弥生土器、縄文土器の産地問題の研究への窓口が開かれたわけである。これらの土器の伝播を追跡することができれば、土器遺物を通して過去を再現する道が開かれる。土器遺物は重要な考古学研究の材料である。日本では行政発掘によって、膨大な量の土器遺物を発掘し、保管している。さらに、土器型式や製作技法に関する考古学研究が世界の最先端をきっている。日本は土器遺物から過去を再現する研究を進める上には絶好のフィールドである。

行政発掘に追われる時代は終わり、遺跡の発掘件数が大きく減少した現在、日本考古学は発掘された遺物の研究を推進しなければならない状況にある。「考古学」とは遺跡、遺物を通して過去を再現する研究分野であることを再認識する必要がある。物質を研究対象とする自然科学の諸分野でも優れた測定装置が開発されている。これらの測定装置を駆使し、考古遺物から未知の情報を引き出せる可能性が十分ある。

「考古科学」は日本の考古学を大きく変革できる時点に達している。若い研究者には、多くの研究課題が目前にある。21世紀は日本考古学が大きく飛躍すべき世紀である。若い研究者たちに大きな期待がかかる。「立ち上がれ、若い研究者たち」。「元気を出せ、日本考古学」。

参考文献（刊行順）

久野 久1976『火山及び火山岩』（第2版）、岩波書店
 三辻利一・圓尾好宏・山本成顕・高林俊顕1985「敦賀半島ビーチサンドの分析化学的研究」『X線分析の進歩』XVI、アグネ技術センター、77～90頁
 三辻利一・伊藤晴明・広岡広夫・杉 直樹・黒瀬雄士・浅井尚輝2000「K、Ca、Rb、Sr因子からみた花崗岩類の地域差」『X線分析の進歩』XXX、アグネ技術センター、109頁
 三辻利一・松井敏也2002「K、Ca、Rb、Sr因子による須恵器窯跡の分類」『X線分析の進歩』XXXIII、アグネ技術センター、73～90頁
 三辻利一2010「統計学の手法による古代・中世土器の産地問題に関する研究（第31報）—長石系因子からみた近畿地方の花崗岩類、土壌および窯跡出土須恵器の胎土—」『志学台考古』第10号、大阪大谷大学文化財学科、29～45頁
 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「土器遺物の考古科学的研究」『分析化学』第62巻第2号、日本分析化学会、73～87頁
 三辻利一2015「玄武岩と花崗岩類にみられるK-Rb、

Ca-Srの両相関図」『志学台考古』第15号、大阪大谷大学歴史文化学科、1～17頁
 三辻利一・犬木 努・近藤麻美2015「土器遺物のK-Rb、Ca-Sr両相関図」『志学台考古』第15号、大阪大谷大学歴史文化学科、18～30頁
 三辻利一・中村 浩・犬木 努2016a「陶器窯跡群出土須恵器の化学特性—各窯および地区毎の分析データから—」『志学台考古』第16号、大阪大谷大学歴史文化学科、1～24頁
 三辻利一・中村 浩・犬木 努2016b「陶器産須恵器の列島各地への広域供給—素材粘土の化学特性の分析から—」『志学台考古』第16号、大阪大谷大学歴史文化学科、25～46頁
 三辻利一・犬木 努2017a「土器胎土にみられる地域差—窯跡出土遺物の化学特性および後背地の花崗岩類の化学特性—」『志学台考古』第17号、大阪大谷大学歴史文化学科、1～24頁
 三辻利一・犬木 努2017b「野中古墳出土初期須恵器の蛍光X線分析」『志学台考古』第17号、大阪大谷大学文化財学科、25～35頁
 三辻利一・犬木 努2018a「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、13～23頁
 三辻利一・犬木 努2018b「京都府向日市域出土須恵器・埴輪の蛍光X線分析—物集女車塚古墳および周辺古墳出土品から—」『志学台考古』第18号、大阪大谷大学歴史文化学科、24～40頁