

令和元年6月12日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K12804

研究課題名(和文) 鉱物・岩石組織より解読する石質文化財の情報

研究課題名(英文) Information of stone property deciphered from mineral and rock texture

研究代表者

長瀬 敏郎 (Nagase, Toshiro)

東北大学・学術資源研究公開センター・准教授

研究者番号：10237521

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文)：石質文化財資料に鉱物学的な組織解読の手法を応用し、素材となっている岩石鉱物の種類の同定ならびに岩石組織情報の解読をおこなった。主な解析の対象は珪質素材の試料ならびに安山岩質石材とした。組織観察には、ラマン分光法ならびにCL法、光学顕微鏡などを用い、走査型電子顕微鏡(SEM)による組成分布の分析、電子線後方散乱回折分析(EBSD)による結晶方位の解析、粉末X線回折法による鉱物種類の同定をあわせておこなった。この組織解析により石材の鉱物学的特徴を把握し、石材の原産地を特定を試みた

研究成果の学術的意義や社会的意義

石英や瑪瑙、フリントなどの珪質物は文化財の素材として多く使用されている。これらの産地毎の化学組成差は小さく、従来の分析法では原石と対比が難しい。ラマン分光法やカソードルミネッセンス法は天然の珪質物の解析に有効な手段である。本研究では、これらの測定方法を用いた岩石や鉱物の組織解読を石質文化財に適用し、文化財資料の物質科学的な解析に発展させるための基盤を確立することが目的である。主な研究項目としては、組織解析による文化財素材の岩石鉱物同定方法の確立、天然試料との組織の比較による原石産地の特定、原石と文化財との比較により加工技術についての考察、の3つである。

研究成果の概要(英文)：Mineralogical analysis methods were applied for textures of stone property. Identification of the rock used in cultural properties and decipherment of the rock texture were carried out in this study. Research subjects are cultural property materials composed of andesite and siliceous rocks. Mineral and rock texture were observed by Raman spectroscopy, cathodoluminescence method, and optical microscopy, and chemical analyses carried out by an electron microprobe analyzer. Electron back-scattered diffraction analysis also used to identify the crystallographic direction of minerals. We tried to identify the mineralogical features of the stone and to identify the place of origin of the stone using these texture analysis

研究分野：鉱物学 博物学

キーワード：文化財科学 鉱物組織 ラマン分光 走査型電子顕微鏡 珪質物質 めのう 碧玉

1. 研究開始当初の背景

石器や装飾品など文化財の素材を正確に同定することは、文化財科学での重要な課題の一つである。さまざまな物理化学的手法を用いて、これまで多くの研究者が文化財素材の同定に取り組んできた。これらの手法の多くはX線や赤外分光法を用い、化学組成や構成物質の種類から同定する方法である。文化財の同定では非破壊による分析が求められるため、同定に正確性を欠くことがしばしばある。そして、より正確に同定するには、高精度の分析が可能な放射光利用施設などの大型設備を必要とすることが多い。文化財における石材素材の同定の曖昧さは、破壊を伴う精密な測定を行えない重要な資料・標本ほど顕著になる。

申請者が取り組んできた地球科学分野での研究テーマの一つに珪質物の多様性がある。ここでの珪質物は瑪瑙や碧玉、フリントなどSiO₂に富む岩石であり、これら岩石を構成するシリカ鉱物には石英の他にオパールや方珪石などいくつかの種類がある。申請者らは、珪質物の構成鉱物と組織には産地毎に違いが認められ、この違いが岩石の生成過程を解明する重要な情報であることを明らかにした。この産地毎の構成鉱物と組織の違いを用いれば、珪質物の産地を特定できる。そして、文化財の素材として用いられている珪質物の産地も特定が可能である。珪質岩石の定義が曖昧なこともあり、文化財での珪質物素材の同定は特に難しい。正確な同定方法を確立できれば、地球科学と文化財科学での物質の情報を正しく関連づけられ、文化財科学に大きく貢献できる。

2. 研究の目的

本研究では、岩石や鉱物の組織解読を石質文化財に適用し、文化財資料の物質科学的な解析に発展させるための基盤を確立することが目的である。主な研究項目としては

- (1)岩石鉱物組織の解析による文化財素材の同定方法を確立する。地球物質科学の知識と岩石や鉱物の解析で用いる手法を文化財研究に応用し、文化財の珪質物素材を非破壊で同定する。
- (2)天然試料との組織の比較から原石産地を特定する。珪質素材を正確に同定することで、その岩石鉱物の生成過程の情報が得られ、その岩石鉱物の産地の特定へと繋がる。文化財の素材の産地特定を目指した、珪質物組織の情報を収集する。
- (3)原石と文化財との比較により加工技術を考察。正確な組織解読によりつきとめた素材原石を測定・分析することにより、加工前の初期状態を明らかにする。そして、文化財表面に残された組織ならびにダメージを解析し加工方法を解明する。

3. 研究の方法

(1)分析条件の決定

分析時に文化財にダメージを与えないために、使用する各種分析装置の測定条件を決定した。石質文化財の組織解読に必要な項目は、構成する鉱物の種類、結晶の粒径、結晶粒子の形、結晶度、結晶中の成長縞などである。そして、これらの試料(資料)での分布を調べる。この組織分析の際に使用する主な測定装置は、ラマン分光法とカソードルミネッセンス(CL)観察装置である。素材の種類毎にダメージを与えない測定条件を確立するために、文化財資料と同じ素材の天然物試料を用い試験を行った。測定部分の経時変化ならびにダメージ量を定量的に評価するため、結晶度分析ならびに化学組成分析、光学顕微鏡観察などを行なった。これらの結果を基に文化財資料測定時の分析条件を決定した。

(2)文化財資料の測定ならびにその多様性の確認

確立された測定条件により文化財資料を測定し、素材となっている岩石鉱物の種類を同定した。測定には、ラマン分光法ならびにCL法、蛍光光学顕微鏡、光学顕微鏡などを用いた。これらの測定を通して同定に必要な組織解読の測定項目を選定する。同定の際に、岩石鉱物の種類ならびに組織の多様性について調査する。また、必要に応じて、蛍光X線分析装置ならびに電子線プローブ微小部分分析装置を用いて非破壊にて化学分析した。これら使用する文化財資料は東北大学総合学術博物館の収蔵品を主に用いた。

4. 研究成果

石質文化財資料の非破壊分析手法としてラマン分光法を用いた解析手法の確立を目指し、実験をおこなった。文化財に用いられている天然のメノウや碧玉試料をもちいて分析した結果、各試料の特徴ならびに産地ごとの違いを捉えることができた。また、レーザー照射によるダメージについて光学顕微鏡や走査型電子顕微鏡をもちいて検証したが認められなかった。

珪質物質のデータベースを確立するため、東北各地のメノウ産地を訪れ、その産状を観察するとともに試料を採取した。採取した試料について薄片を作成しCL法、蛍光光学顕微鏡、光学顕微鏡を用いて内部組織を観察するとともに、その組織に対応するラマンスペクトルの変化について測定した。これらの解析の結果、同定に必要な組織解読の測定項目としてラマン分光法は重要な結晶学的な情報を与え、構成する微細鉱物の鑑定ならびに特徴付けに役立つことが明らかとなった。ラマン分光法による岩石鉱物の同定結果の検証は、電子線プローブ微小部分分析法を用いた化学的情報ならびに粉末X線回折法による結晶学的解析により行った。

さらに同定された岩石については種類ならびに組織の多様性ならびに産地ごとの固有な特徴について調査した。また、文化財の解析で同定された岩石鉱物と同種類・同組織の試料を様々な産地で採取し、これについても測定をおこなった。これにより産地ごとの岩石鉱物の組織の違いを認めることができ、岩石鉱物の採集時の地質調査で得られた産状と鉱物組織とを関連つけることができた。この解析を展開していけば、岩石鉱物の組織から原石産地を特定できる手段となることが検証できた。

原石産地の特定に必要な、各分析方法による測定項目を決定した。そして、産地が特定されている出雲地方の瑪瑙関係資料などを調査し、この測定項目によって、鉱物組織の解釈と対比できるか検証した。

これまでに確立した測定条件により文化財資料を解析し、素材となっている岩石鉱物の種類の同定ならびに組織情報の解釈をおこなった。主な解析の対象は珪質素材の試料ならびに安山岩質石材とした。測定には、ラマン分光法ならびに CL 法、光学顕微鏡などを用いた。また、組織観察には、ラマン分光法をはじめとして、走査型電子顕微鏡 (SEM) による組成分布の分析、電子線後方散乱回折分析 (EBSD) による結晶方位分布の解析、粉末 X 線回折法による鉱物種類の同定をおこなった。これらの中で、もっとも有効的な手段として取り組んだのは、ラマン分光法によるマッピング解析である。組織情報を得るためにラマンスペクトルの試料表面での二次元情報収集し、これを解釈した。これらの情報と、光学顕微鏡ならびに SEM 観察結果と対比した。

ラマン分光測定によって得られた情報によって珪質素材試料の構成鉱物を同定することができた。さらに、マッピング解析により光学顕微鏡や電子顕微鏡観察に対応した情報を得られ、これにより岩石の同定に結びつけることができるようになった。また、各ラマンスペクトルはピークの位置や幅などに試料毎に特徴をもち、これはその石材の産地を特定する重要な手がかりとなる。珪質石材に用いられている岩石は非常に多様な組織をもち、構成鉱物の粒径や方位分布、結晶内に含まれる包有物の種類なども産地特定に結びつく情報である。文化財資料の原材料産地の同定のための、岩石鉱物組織のデータベースの構築を試みた。文化財資料と岩石測定結果を比較する際、ラマンスペクトルや化学組成を基本として検索することはできたが、二次元マップなどの組織の一致を判断することは容易ではなく、今後これらの比較方法を検討する必要がある。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 6 件)

Y. Nakamura, T. Kuribayashi, T. Nagase, and H. Imai (2017) Cation ordering in iridescent garnet from Tenkawa village, Nara prefecture, Japan. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*, 112(2), 97-101.

Y. Nakamura, T. Kuribayashi, and T. Nagase (2017) Cation ordering of {110} and {211} sectors in grandite garnet from Mali. *Journal of Mineralogical Petrological Science*, 111(6), 373-384.

岡田敏朗, 長瀬敏郎, 今井裕之, 上原誠一郎 (2017) 大分県尾平鉱山産水晶にみられる桜組織について. *岩石鉱物科学*, 46(4), 117-123.

土山 明, 宮脇律郎, 宮島 宏, 長瀬敏郎, 豊 遥秋, 坂野靖行, 土谷信高, 下林典正 (2017) 日本鉱物科学会の国石選定事業と国石「ひすい」. *岩石鉱物科学*, 46(3), 108-115.

長瀬 敏郎, 石川 志緒利, 栗林 貴弘 (2018) 青森県津軽地域の碧玉 (津軽にしき石) の組織と成因について. *岩石鉱物科学*, 47(3), 127-140.

長瀬 敏郎 (2018) 鉱物の微細組織観察と形成過程の結晶学: シリカ鉱物を中心にして. *日本結晶学会誌*, 60(1), 17-23.

〔学会発表〕(計 13 件)

長瀬 敏郎, 野崎 達生, 石橋 純一郎, 山田 亮一, 高井 研, 川口 慎介, 栗林 貴弘, ウルツ鉱の組織と形成過程, 日本鉱物科学会 2016 年年会, 2016 年 9 月 12~14 日, 金沢大学.

岡田敏朗, 今井裕之, 上原誠一郎, 長瀬敏郎, 大分県尾平鉱山産水晶にみられる桜構造について, 2016 年 9 月 12~14 日, 金沢大学.

門馬綱一, 長瀬敏郎, X 型日本式双晶に見る接合面ごとの成長速度異方性, 2016 年 9 月 12~14 日, 金沢大学.

長瀬 敏郎, 山田 亮一, 野崎 達生, 石橋 純一郎, 栗林 貴弘, 黒鉱石組織の EBSD 解析, 資源地質学 2015 年度年会学術講演会, 2015 年 6 月 24~26 日, 東京大学小柴ホール.

長瀬敏郎, 栗林貴弘, 門馬綱一, 瑪瑙組織のラマン分光解析, 日本鉱物科学会 2017 年年会, 2017 年 9 月 12~14 日, 愛媛大学.

鷲海太郎, 奥部真樹, 有馬 寛, 長瀬敏郎, 杉山和正, X 線異常分散法による、らせん対称性をもつ鉱物のキラリティの決定日本鉱物科学会 2017 年年会, 2017 年 9 月 12~14 日,

愛媛大学.

門馬綱一, 谷健一郎, 宮脇律郎, 長瀬敏郎、サハリン南部におけるシリカクラスレート鉱物の産状, 日本鉱物科学会 2017 年年会, 2017 年 9 月 12 ~ 14 日, 愛媛大学.

長瀬敏郎, 門馬綱一, 石橋 隆, 浜根大輔, 栗林貴弘, シリカ鉱物の仮像組織, 日本鉱物科学会 2018 年年会, 2018 年 9 月 19 ~ 21 日, 山形大学 小白川キャンパス.

吉見桃子, 栗林貴弘, 長瀬敏郎, 岩手県玉山産水晶の晶相・晶癖変化の解析, 日本鉱物科学会 2018 年年会, 2018 年 9 月 19 ~ 21 日, 山形大学 小白川キャンパス.

武内浩一, 長瀬敏郎, EBSD 法によるトリディマイト強化磁器中のトリディマイトと石英の判別 日本鉱物科学会 2018 年年会, 2018 年 9 月 19 ~ 21 日, 山形大学 小白川キャンパス.

門馬綱一、長瀬敏郎、ジェンキンス ロバート、宮嶋佑典、谷健一郎、井尻暁、Sergei Kasatkin、Igor Chekryzhov、宮脇律郎、ロシア極東サハリンから産出したメラノフロジャイトの単結晶 X 線回折実験, 日本地球惑星科学連合 2018 年大会, 2018 年 5 月 20 ~ 24 日, 千葉 幕張. Toshiro Nagase, Takahiro Kuribayashi, Tatsuo Nozaki, Jun-Ichiro Ishibashi, Kazuhiko Shimada, Koichi Momma, Masaaki Shimizu, Crystal structure determination of an unknown mineral of tetradymite group from the Hitachi mine, Ibaraki prefecture, Japan, XXII Meeting of the International Mineralogical Association (IMA 2018), August 13-17, 2018, Melbourne, Australia.

Koichi Momma, Toshiro Nagase, Robert Jenkins, Yusuke Miyajima, Kenichiro Tani, Akira Ijiri, Sergei Kasatkin, Igor Chekryzhov, Ritsuro Miyawaki, Occurrences and crystal structures of melanophlogite from Sakhalin, Far East Russia, XXII Meeting of the International Mineralogical Association (IMA 2018), August 13-17, 2018, Melbourne, Australia.

〔図書〕(計 2 件)

地形の辞典, 朝倉書店, 日本地形学連合(編), pp.1032

日本の国石「ひすい」ーバラエティに富んだ鉱物の国ー, 成山堂書店, 土山 明 他(著), 一般社団法人 日本鉱物科学会 (監修), pp.232.

〔産業財産権〕

出願状況(計 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年:
国内外の別:

取得状況(計 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年:
国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

<http://db.tohoku.ac.jp/whois/detail/6769803ad9f3067c4eca9b40a3fa17ce.html>

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名: 宮本 毅

ローマ字氏名: (MIYAMOTO, Tsuyoshi)

所属研究機関名：東北大学

部局名：東北アジア研究センター

職名：助教

研究者番号（8桁）：90292309

(2)研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。