

令和 4 年 6 月 20 日現在

機関番号：17301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K01128

研究課題名(和文) 黒曜石原産地のオープンデータ化によるLA-ICP-MSを用いた産地判別法の新展開

研究課題名(英文) New Developments in Methods for Determining the Origin of Obsidian Using LA-ICP-MS Based on the Open Data of Obsidian Sources

研究代表者

隅田 祥光 (Suda, Yoshimitsu)

長崎大学・教育学部・准教授

研究者番号：80413920

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：先史時代の黒曜石を巡るグローバルな人類活動の痕跡は、元素分析に基づいた石器の原産地判別から見出すことができ、近年ここでは精密な希土類元素分析が可能なレーザー溶出型誘導結合プラズマ質量分析装置が用いられることが多い。研究代表者らは信州や隠岐などの黒曜石原産地の調査を行い、得られた情報のデータベース化、波長分散型蛍光X線分析法での主要・微量元素分析、石器の原産地判別を実践した。またLA-ICP-MSが国際的な共通ツールになりつつある中、国内の黒曜石原産地の希土類元素の情報のデータベースをWeb上でオープン化し、これを利用した新たな原産地判別法を確立した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまでに国内の黒曜石原産地の情報を一元的に取りまとめWeb上でオープンデータ化する取り組みはなく、本研究はこれを初めて実現させようとするものである。そして、圧倒的に不足している国内の原産地の希土類元素組成の情報をこのオープンデータに加え、これを利用したLA-ICP-MSによる国内の原産地判別法を新たに確立した。これにより国内の黒曜石が、どのように日本列島を離れ国外へ拡散したのか、国外の黒曜石がどのくらい国内に流入したのか、このようなグローバルな新しい研究展開に貢献することができる。

研究成果の概要(英文)：Traces of global human activity on prehistoric obsidian can be found by determining the origin of stone tools based on elemental analysis, and in recent years, laser-elution inductively coupled plasma mass spectrometry, which is capable of precise rare earth element analysis, is often used for this purpose. The applicants have conducted surveys of obsidian sites in Shinshu, Oki, and other regions, compiled databases of the information obtained, analyzed major and trace elements using wavelength-dispersive X-ray fluorescence spectrometry, and identified the origin of lithic tools. In addition, while LA-ICP-MS is becoming an internationally common tool, a database of information on rare earth elements in domestic obsidian sources was opened on the Web, and a new method of origin determination was established using this database.

研究分野：文化財科学

キーワード：黒曜石 文化財 蛍光X線分析

1. 研究開始当初の背景

黒曜石は石器の最も主要な石材であるため、考古遺跡から発掘された黒曜石製石器が、いつどのようにして作られたかは、特に先史学の考古学者が明らかにしたい疑問の一つである。また、石器の原材料となった黒曜石原石が、どこで獲得されたのかを明らかにしていくことが石器の原産地判別である。そして、これをどのような手法でどのくらいの信頼性を持って実施することができるかは、原産地判別を行う理化学分野の研究者が判別結果を利用する考古学者に対して提示すべきことの一つであろう。

そもそも、黒曜石の原産地は地球上でもかなり限られた地域に分布し、化学組成や色合いなどの外観上の特徴が地域ごとに異なる。すなわち、理化学的な手法により黒曜石製石器の元素組成を分析することで、元素組成の差異から石器の石材の産地(原産地)を推定(判別)することができる。石器の原産地判別を元素分析に基づいて行う場合、理化学的な分析手法は大きく定性分析と定量分析に分けられる。

定性分析では石器を直接的に、非破壊で分析できるため、大量の石器の原産地判別を短時間で実施できる。しかし、再現性の低い主要・微量元素の二次 X 線の測定強度の比(count 数)を判別に用いるため判別結果の信頼性に問題が残されている(分解能と確度が低い)。一方で、定量分析では試料の前処理の手間が必要となり、大量の石器を迅速に分析し、判別していくのは困難である。しかし、正確な標準試料に基づいた再現性の高い主要・微量元素、希土類元素の含有率(wt%, ppm)を求めることが出来るため、判別結果の信頼性は定性分析よりも格段に高い(分解能と確度が高い)。これらの理由から米国ミズーリ大学原子力研究所やハンガリー国立博物館などの研究機関においては、まず始めに遺跡から出土した全ての石器に対して定性分析に基づいた原産地判別を行う。そして、その次の段階として特に考古学的に重要な判別結果が得られた石器に対し、改めて定量分析を行い、より高い信頼性を持った判別結果を得る手段を講じている。また、ここでの黒曜石の定量分析は、原理的にはほぼ非破壊での元素分析が可能なレーザー溶出型誘導結合プラズマ質量分析装置(LA-ICP-MS)がロシアや韓国などの多くの研究機関で用いられ、国際的にはこの装置を用いた希土類元素組成に基づく判別法が一般的になりつつある。

このような国際的な動向に対し、国内では 1990 年代にエネルギー分散型蛍光 X 線分析装置(ED-XRF)を用いた定性分析による判別法が、望月により確立された。しかし、文化財としての石器は完全な非破壊での分析が求められ続けてきたことから、極微小でも傷や破損を伴う定量分析による原産地判別を行う取り組みはほとんど行われてこなかった。また、原産地判別に必要な黒曜石の定量分析値は、分析コストや試料処理の手間の問題から、これまで波長分散型蛍光 X 線分析装置(WD-XRF)による主要元素と微量元素に限られてきた。このことにより国際的には LA-ICP-MS による希土類元素組成の公表値が増える中で、LA-ICP-MS と WD-XRF とでは分析元素の種類が異なるため両者の分析値を直接的に比較したり相互利用したりすることが出来ないという問題が生じている。

2. 研究の目的

そもそも石器の原産地判別は、石器と同じ石質や元素組成を持ったものをあらゆる黒曜石原産地に関する情報が格納されたデータベースの中から探し出すことにある。すなわち、いくら高精度な分析法が開発されたとしても、原産地に関する一元的なデータベースが充実していなければ、信頼性の高い判別結果を得ることは出来ない。

これまでに国内の黒曜石原産地の情報を一元的に取りまとめ Web 上でオープンデータ化する取り組みはなく、本研究はこれを初めて実現させようとするものである。そして、圧倒的に不足している国内の原産地の希土類元素組成の情報をこのオープンデータに加え、これを利用した LA-ICP-MS による国内の原産地判別法を新たに確立する。これにより国内の黒曜石が、どのように日本列島を離れ国外へ拡散したのか、国外の黒曜石がどのくらい国内に流入したのか、このようなグローバルな新しい研究展開に貢献することができる。

3. 研究の方法

(1) LA-ICP-MS による黒曜石の定量分析

LA-ICP-MS による黒曜石の定量分析を行いデータベースに希土類元素組成に関する情報を加える。ここでは、先行研究により黒曜石原産地(産出地)の地点を代表する基準試料として定められ、WD-XRF による主要・微量元素の定量分析値を公表している黒曜石を優先的に分析する。対象とする黒曜石は長野県霧ヶ峰地域のものが 13~20 点、島根県隠岐島後地域のものが 9~15 点である。これらの次に長崎県壱岐(3~10 点)、佐賀県腰岳(1 点)、神津島(1 点)、ウクライナカルパチア地方(3~6 点)、朝鮮半島白頭山(1 点)の黒曜石を分析対象とし、これらを新たな黒曜石原産地の基準試料として定める。

(2) 黒曜石原産地情報のオープンデータ化

本研究では(1)の成果を加えた国内の黒曜石原産地に関する地理的・地質学的・岩石学的・考古学的・化学的情報を一元的にとりまとめたデータベースを完成させ Web 上でオープン化する。

国内外の研究者が利用できるように日本語と英語をベースとし、可能な限り黒曜石製石器の原産地判別を行う研究者が分かりやすく、使いやすいコンテンツの構築を目指す。

4．研究成果

アフリカ大陸で進化したホモ・サピエンスがどのように世界中に拡散したのか。また、世界各地の環境変化に対応しながらどのような集団や社会を構築していたのか。これらは、世界中の人類学者・考古学者にとっての共通した問いである。打ち割られた黒曜石は鋭利な刃物となり、ナイフなどの石器を製作する上で欠かせない原材料として世界中の先史時代の遺跡から黒曜石を原材料とした石器が数多く発掘されている。また、日本列島では、約4万年前の後期旧石器時代に人類が定住する過程で、この黒曜石という資源をめぐる活発な人類活動があったとされ、標高1000メートルを超える高山地帯や、海峡を越えた島々にも黒曜石という資源を求め人類集団が活発に進出していったとされている。これは、現在のわたしたちも、石油などのエネルギー資源を求めて様々な場所へ進出し、これらの資源をもとに産業革命が起き、現在の社会や文化が成り立っている状況と同じである。では、どのような集団がいつどのように黒曜石という資源を求めて、さまざまな黒曜石原産地へ進出していったのか、また具体的に黒曜石原産地ではどのような人類活動が行われたのか。当時の気候変化の復元を含めた多角的な解析がまさに日本の旧石器考古学研究で実施されつつある。この中で、ある黒曜石がどここの産地で採取され、どこでどのように石器として加工し消費されていったのか。このようなことは、数千点、数万点におよぶ黒曜石製石器の「原産地」を特定し、解析していくことで、ある程度、復元していくことが可能である。では、どのように黒曜石製石器の「原産地」を特定するのか。それは黒曜石に含まれる成分を調べて特定していく、という手法が現在広く国際的に利用されている。研究代表者は、信州霧ヶ峰の黒曜石の精密な元素分析を九州大学アジア埋蔵文化財研究センターの研究者とともに実施し、信州霧ヶ峰の黒曜石を特定する手法だけでなく、さらに、信州霧ヶ峰内のより細かな産出地点や地域を特定する手法を新たに開発した。黒曜石の分析法の技術的課題をひとつずつ解決しながら、この手法の実用化に向けた実証実験を積み重ね、日本列島における後期旧石器時代の人類活動の復元を試みた。また、この研究成果は、九州・長崎県における黒曜石研究ならびに人類史研究のさらなる進展にも大きく貢献するものである。さらに LA-ICP-MS による黒曜石の定量分析値、また、それらのオープンデータ化については、本科研で作成した website (<https://sites.google.com/view/obsidian>) にまとめられている。特に、日本列島における主要な黒曜石原産地の希土類元素組成のデータを厳密な採取地点とともに、網羅的に取りまとめた点は世界的に大きなインパクトを与えることができた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 4件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Suda Yoshimitsu, Tani Kenichiro, Yamaguchi Miho, Kakubuchi Susumu	4. 巻 30
2. 論文標題 Petrogenetic implications and geochronology of middle Miocene Tannayama igneous rocks, Goto Islands, Japan Sea southern margin, northwestern Kyushu, Japan	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Island Arc	6. 最初と最後の頁 1~24
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1111/iar.12390	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Suda Yoshimitsu, Adachi Tatsuro, Kazutaka Shimada, Osanai Yasuhito	4. 巻 129
2. 論文標題 Archaeological significance and chemical characterization of the obsidian source in Kirigamine, central Japan: Methodology for provenance analysis of obsidian artefacts using XRF and LA-ICP-MS	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Archaeological Science	6. 最初と最後の頁 1~10
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jas.2021.105377	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 隅田祥光・池谷信之	4. 巻 11
2. 論文標題 明治大学黒曜石研究センター設置の波長分散型蛍光X線分析装置による黒曜石の定量分析の評価と定量分析	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 資源環境と人類	6. 最初と最後の頁 1~23
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 隅田祥光	4. 巻 23
2. 論文標題 黒曜石原産地研究の国際ネットワーク化 日本海西南沿岸地域の黒曜石原産地研究のレビュー	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 九州旧石器	6. 最初と最後の頁 41-46
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 隅田祥光・及川穰	4. 巻 9
2. 論文標題 長野県霧ヶ峰地域における黒曜石原産地の定量分析値に基づく化学的区分と判別法の検討	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 資源環境と人類	6. 最初と最後の頁 1-14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 隅田祥光・角縁進	4. 巻 5
2. 論文標題 長崎大学教育学部における岩石試料の教材化に向けた波長分散型蛍光X線分析装置を用いた定量分析の試料処理法	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 長崎大学教育学部紀要	6. 最初と最後の頁 217-229
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 隅田祥光・川道寛・片多雅樹・角縁進・及川穰	4. 巻 9
2. 論文標題 長崎県壱岐市八幡半島に見られる黒曜石の化学的特徴 (報告)	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 長崎県埋蔵文化財センター研究紀要	6. 最初と最後の頁 1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 Suda, Y., Oyokawa, M. and Inata, Y.
2. 発表標題 Geochemical classification and characterization of obsidian source in Oki-Dogo Island for the provenance study of obsidian artifacts
3. 学会等名 International Obsidian Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 隅田祥光
2. 発表標題 黒曜石原産地研究の国際ネットワーク化 日本海西南沿岸地域の黒曜石原産地研究のレビュー
3. 学会等名 第45回九州旧石器文化研究会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 隅田祥光・熊谷綾香
2. 発表標題 上五島中通島丹那山地域における火成複合岩体の形成過程
3. 学会等名 日本地質学会第125年学術大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 阿部芳郎・小野 昭・島田和高・隅田祥光・中村由克・橋詰 潤・吉田明弘	4. 発行年 2019年
2. 出版社 雄山閣	5. 総ページ数 239
3. 書名 黒曜石研究センター叢書, 人類と資源環境のダイナミクス 旧石器時代	

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>Japanese Obsidian Source Database https://sites.google.com/view/obsidian</p>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	足立 達朗 (Tatsuro Adachi) (00582652)	九州大学・比較社会文化研究院・助教 (17102)	
研究分担者	及川 穰 (Minoru Oyokawa) (10409435)	島根大学・学術研究院人文社会科学系・准教授 (15201)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関