

令和元年6月18日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15H03262

研究課題名(和文) 縄文土器で煮炊きしたものと土器の使い分けについての研究

研究課題名(英文) Research for foodstuff cooked by Jomon pottery and how to use properly.

研究代表者

吉田 邦夫 (YOSHIDA, Kunio)

東京大学・総合研究博物館・特招研究員

研究者番号：10272527

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,900,000円

研究成果の概要(和文)：脂質分析の技術開発を進めた。土器胎土・付着炭化物・食材原料などの分析試料から、汚染を防ぎつつ有機化合物を抽出する方法を確立し、抽出した有機化合物をGC-MSにより同定し、この溶液をGC-C-MSに導入し、CSIAを行う分析手法を確立した。考古・文化財資料に特化した、分子レベル安定同位体分析を行う、国内で唯一の質量分析計システムを構築し、測定、分析を開始した。

日本列島の食料資源についてCSIAによるデータを蓄積し、列島産の食材をC3植物、陸棲動物、反芻動物、淡水魚、海棲動物、C4植物のグループに分ける各領域範囲を決定した。

国内外35を超える遺跡から出土した資料を分析し、興味深い結果を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

土器と土器付着物に含まれる脂質などの有機物を分析するには、これまで、主に英国の研究機関で測定せざるを得なかった。国内で、分子レベル炭素同位体分析を含む脂質分析を定常的に行うことができるようになったことは大きな意義がある。食材の化学的・物理的性質には、地理的な固有性があり、列島の特性をもとに分析出来ることは大きい。

1万年以上存続した縄文土器をはじめとして、古代土器に残る食材情報を取り出すことが出来るようになり、古代人の食環境を明らかに出来る可能性が広がった。一般の方の関心も高く、自然環境と人類の適応について考える材料を提供することが可能となる。

研究成果の概要(英文)： We have advanced technology for lipid analysis. We established the method to extract organic compounds from analytical samples such as pottery, charred residues on pottery sherds, and foodstuffs, while preventing contamination. The extracted organic compounds were identified by GC-MS and the solution was introduced into GC-C-MS. An analytical method for performing CSIA (Compound-specific isotope analysis) was established. We have built a mass spectrometer system for CSIA specialized for archaeological and cultural property materials, and started measurement and analysis.

We accumulated data from CSIA on foodstuffs of the Japanese archipelago, and determined the range of each region to divide the foodstuffs into C3 plants, land mammals, ruminants, freshwater fish, marine animals, and C4 plants.

We measured and analyzed samples excavated from more than 35 sites in Japan and abroad and obtained interesting results.

研究分野：考古科学・年代測定

キーワード：古食性分析 縄文土器 脂質分析 年代測定 土器付着炭化物

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

日本列島では、15,000～16,000年前に土器が出現している。土器の出現によって、食材の調理方法は、それまで使われていた生食、焼き、蒸し焼きなどに加えて、まったく新しい「煮る・炊く」が加わった。この調理法は、古代人の食生活を飛躍的に向上させた。さて、それでは、縄文人は、土器で何を煮炊きしていたのだろうか。煮炊きの道具として使われた土器は、その残渣がコゲとして、土器の内外面に残されていることがある。研究代表者らは、これまで主として、新潟県内の草創期、および火炎土器の時代について、この土器付着物の年代測定を行うと同時に、炭素-窒素安定同位体分析により、調理物の推定を試みてきた。

コゲに食材の情報が残され、デンプンやタンパク質などの同位体情報が失われていないかどうか、2004年以来、土器を使って食材の煮炊き実験を行ってきた。日本列島で利用できる食材は、大きく分けて、陸上の動植物、海産物、雑穀類の3つのグループになる。実験の結果、炭化することによって、それぞれの食材のグループを飛び出して、他のグループと判別出来なくなるような変化は認められなかった。したがって、埋蔵中に大きな変化を受けていなければ、コゲの同位体情報から食材を推定することが可能であることが明らかになった。

新潟県津南町を中心とした草創期土器(土器群2期、3a期)および、信濃川とその流域の火炎土器について分析を行った結果、次のようなことが明らかになった。

1) 時代を超えて、海産物を含む食材を煮炊きしたと思われる付着物が存在する。

特に、草創期では大半を占め、火炎土器では、半数程度である。

2) 小丸山B遺跡の爪形文土器(約12,500年前)は、堅果類を単独で煮たものである。

火炎土器でも、同様の資料が存在する。これらのコゲは、底部・胴部下半に付着しており、しかも推定容量が6割以上の大形である。堅果類の場合は大形品を使用し、それ以外の調理では、大形も中・小形も使っていた。

3) 火炎土器では、遺跡ごとに特徴をもち、上流域の遺跡より、海に近い遺跡、島嶼遺跡の方が、海産物を含む、よりバラエティに富んだ食材を煮炊きしている。

これらの結果は、炭素・窒素安定同位体比(^{13}C - ^{15}N) および炭素/窒素原子数比(C/N比)によって、分析した結果である。一方で、炭化物や土器に残された脂質の分析は、1980年前後から試みられてきた。本研究が継承している採択研究課題「先史時代の儀礼食に関する研究」(平成23～25年度 研究代表者; 西田泰民)で研究協力者として研究体制を担ってきた英国・ヨーク大学クレイグ博士らは、縄文時代草創期の土器について脂肪酸分析を行った結果を報告している。抽出した脂質をガスクロマトグラフィ/質量分析計で分析し、鳥浜貝塚では32資料中17資料が、大正3遺跡では2資料中1資料が、海棲動物・淡水魚起源であることを示した。星光山荘B遺跡の1試料は海洋起源ではなかった。また、複数の脂肪酸の炭素同位体比をもとに、水棲動物由来の食材であることを確認するとともに、反芻動物(シカなど)の領域に近い資料が1点あったと主張している。

我々の研究チームでは、同様の手法を用いて、魚沼市正安寺遺跡出土の火炎土器と縄文のみが施されている土器に付着したコゲの分析を行い、比較検討した。まだ、試行的な分析で分析数が少ないが、縄文のみの土器は、脂質がわずかしか検出されず、水棲動物のバイオマーカーが検出された資料もあるが、窒素同位体比が小さく、植物のような素材が多く混在していた可能性がある。総じて、火炎土器の方が素文の土器より魚調理など調理物が限定されていた可能性が指摘される。魚沼市は、海から80km離れており、海産資源として、サケ・マスなどの遡上魚を想定することが出来るかもしれない。

また、胎内市野地遺跡の後晩期装飾系土器と非装飾系土器の試行的な比較でも、装飾系土器

は、海産物の領域に多く、非装飾系土器では、それ以外の領域の値を示している。これらは、装飾された土器は、新潟県では主として海産物を含む食材を調理するために使われたことを示唆している。

このように、最新の分析手法を組み合わせることで土器付着炭化物を分析することによって、調理された食材をかなり詳しく推定できるようになった。装飾の有無による調理物の違いは、時代限定的、地域的なものなのかなど、器種の使い分けについて明らかにすることが可能になっている。

2. 研究の目的

縄文土器の表面に残された黒色付着物は、調理した食材が炭化したものだと思われている。研究チームでは、この土器付着物を用いて年代測定、同位体分析を行い、土器の年代を決定し、調理物の推定を行ってきた。本研究では、最近確立しつつある最新の分析手法を駆使して、縄文土器で調理した食材を推定し、装飾、器形、容量など土器の器種による使い分けの有無を明らかにすることを目的とする。対象地域を、新潟県と関東地方とし、地理的環境の違いについて検討し、草創期から後晩期までの縄文時代全体について取り扱い、環境変動による食材、調理物の変化を検討することとする。また、理化学的な分析だけでなく、スス・コゲの位置、形状を分析するとともに、調理実験を行い、調理形態などを含んだ古食性の全容復原を行う。

3. 研究の方法

本研究では、縄文人が土器で煮炊きしていたものを明らかにするために、土器に残された脂質などの有機物を理化学的な方法で分析する。

1) バルク安定同位体分析

コゲ(土器付着炭化物)について、バルク(全試料)安定同位体分析(炭素・窒素安定同位体比・炭素/窒素原子数比)を行い、食材の3グループへの帰属を検討する。土器付着炭化物の分析手法は、研究チームによって確立している。土器から採取した炭化物は、外部からの汚染を除いた上で、EA-MS(元素分析計-質量分析計システム;東大博物館に設置)を用いて、炭素・窒素同位体比および炭素/窒素原子数比(C/N比)を測定する。また、海産物の寄与が認められない適切な資料を選別し、AMS年代測定を行う。

バルク同位体分析に加え、脂質などの有機物分析を行うことで、より詳細な食材の推定を行うことが出来る。脂質はコゲにも残存するが、土器胎土に浸透し吸着された有機物は土器外部の環境から保護され、そのまま、あるいは分解物として残っていることが知られている。

2) 脂質などの有機物の抽出

コゲは、そのまま、土器胎土の場合は、粉碎した試料からヘキサンで有機物を抽出し、トリメチルシリル(TMS)化したのち、GC-MSで分析する。

3) バイオマーカー分析

a) 長鎖脂肪酸、b) 長鎖アルコール、c) 長鎖炭化水素、d) ステロールなどの種類と相対的含有量に着目し、食材を推定する。脂肪酸(4-(2-alkylphenyl)alkanoic acid(APAA))は、不飽和脂肪酸が土器内部で270℃以上に加熱されると生成し、ベンゼン環を持つため土器に安定に残存する。不飽和脂肪酸は生体内に多く存在するが、不安定なため長い年月の間に分解され、古代土器からはほとんど検出されない。しかし、APAAが検出されれば、食材に不飽和脂肪酸が存在し、さらに土器が加熱されていたことを示すことができる。特に炭素数20、22を持つAPAAはeicosapentaenoic acid(EPA)、docosahexaenoic acid(DHC)などの長鎖不飽和脂肪酸が存在していたことを示し、海棲動物のバイオマーカーとなる。

4) 分子レベル炭素同位体分析

ガスクロマトグラフ (GC) で分離された有機化合物を、燃焼管に順次送り込み CO₂ とした後、質量分析計に導入し、炭素同位体比を測定する (分子レベル炭素同位体分析; CSIA: Compound-Specific Isotope Analysis)。構成している飽和脂肪酸の中で代表格であるパルミチン酸 C₁₆ とステアリン酸 C₁₈ の炭素同位体比を測定することによって、食材のグループを決めることが出来る。海棲動物・二枚貝・淡水魚・C₃ 植物・C₄ 植物・反芻動物・非反芻動物などに区別することが可能となる。特に重要な点は、日本列島の主要な動物資源である反芻動物のシカと非反芻動物のイノシシを区別出来ることである。

5) 日本列島の食料資源

煮炊き実験と出土した動植物遺体の測定で得られた多数のデータの蓄積で、炭素・窒素同位体比と C/N 比による、列島産食料資源のグループ分けとグループごとの測定値の範囲についての研究は、ほぼ完了した。しかし、分子レベル同位体分析のデータは、国内での分析が立ち遅れたために、蓄積が進んでいない。煮炊き実験土器、冷凍保存されている食材を材料に研究を進め、比較的多く存在する炭素数 14、16、18 の飽和脂肪酸を中心に、日本列島産食料資源の脂肪酸炭素同位体比データベースを構築する。

6) 遺跡出土資料の分析

発掘資料の取り扱いには要注意で、埋蔵中に脂質が変性するだけでなく、土壌など周囲からの混入、発掘後の付着などが、いくらでも起こりうる。したがって、1) 土器付着炭化物、2) 土器片に浸透・吸着した有機物、3) 埋蔵場所で土器に接触した周囲の土壌試料について、引き続き分析を行い、煮炊きした食材に由来した有機物成分であることを確認し、土壌からの汚染を評価する作業を続ける。発掘中、または発掘予定の遺跡で、分析試料採取を行う。

4. 研究成果

1) 脂質分析の技術開発

当初の計画では、CSIA の測定は、分析試料を国内で調製し、実際の測定は英国・ヨーク大学クレイグ教授のラボで行う予定であった。しかし、幸いなことに別科研費で、GC-C (ガスクロマトグラフ-燃焼炉) を購入できることになった。東京大学総合研究博物館に設置してある質量分析計 IRMS に GC-C を接続して、国内で CSIA を行うシステムを構築した。使用する GC カラムの選定、カラム温度・He ガスの流量・燃焼温度など有機化合物の分離条件、CSIA を行う条件の検討を行い、考古・文化財資料に特化した、国内で唯一の分子レベル安定同位体分析を行う質量分析計システムを構築し、測定、分析を開始した。

これまで、土器胎土に吸着した有機物を抽出する方法は、2g 程度の土器粉末にクロロホルム/メタノール混合溶液を加え、超音波処理をして総脂質を抽出していた (TLE 法; Total Lipid Extraction)。土器胎土の分析は、小さな土器片を破碎するか、土器内面の表面を削り取って測定試料とする破壊分析である。遺跡発掘担当者などの同意を得て、分析対象試料を幅広く入手するためには、必要な試料量を出来る限り減少させることが望ましい。このために、新たに 0.1g 程度の試料を用いる少量試料法 (SS 法; Small Scale) を採用した。0.1g 程度の土器胎土にメタノール、硫酸、ヘキサンを順次加えて、有機化合物を抽出する方法で、前処理に必要な時間も、1 試料あたり 4~5 日から 3 日程度に短縮することが出来た。

このように、土器胎土・土器付着炭化物・食材原料などの分析試料から、汚染を防ぎながら有機化合物を抽出する方法を確立し、抽出した有機化合物を、GC-MS により同定し、この溶液を GC-C-MS に導入し、CSIA を行う分析手法を洗練させ、確立した。

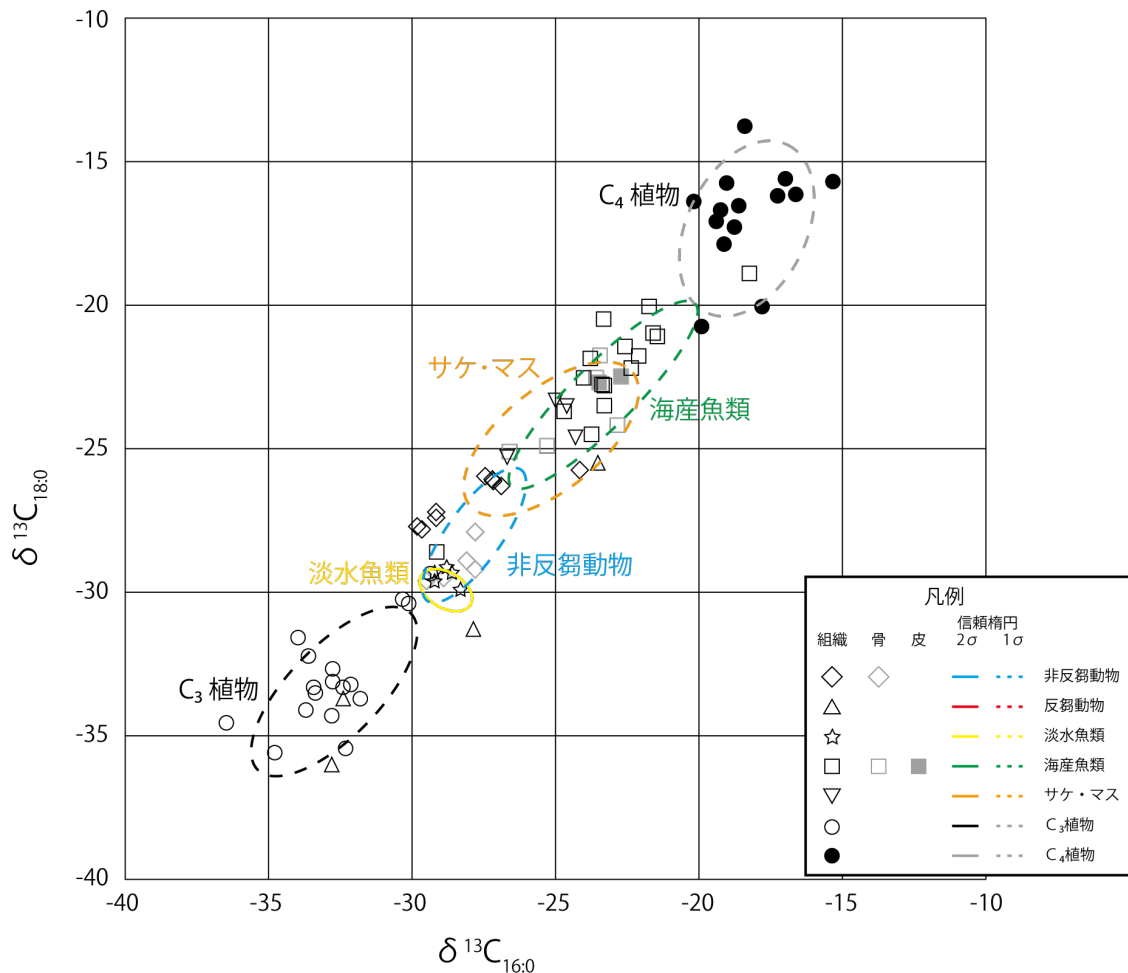
2) 日本列島の食料資源

2004 年以来、土器を用いた現生食材の煮炊き実験を行ってきた。これら食材の一部は、冷凍

保存しているので、凍結乾燥した上で分析を行った。また、C₄植物について食材収集も行った。

ドングリ(ナラガシワ)、トチ、アク抜きトチ、クリ、クルミ、サトイモ、トラ豆、アズキ、ダイズなど、C₄植物では、モチアワ、ウルチアワ、シコクピエなどについて、分析を行った。これらのうちで、煮炊き実験を行った食材については、保存してある実験土器の胎土から試料を採取して、脂質分析を行った。植物質食材の脂質組成に関しては、トチとクリ、サトイモが類似した組成を示し、ナラガシワも似ている。堅果類に特徴的な脂質の種類、組成のパターンは、今のところ見つかっていない。

分子レベル炭素同位体比の分析結果を図に示す。これまでに我々が測定した46試料に加え、ヨーク大学のグループが報告している日本列島産食材35試料を加えてプロットした。C₃植物と陸棲哺乳類は、はっきり分離している。反芻動物に関しては、他の非反芻動物とは離れた領域にあり、ほぼ分離できそうである。現在も追加試料を測定中である。



3) 遺跡出土資料の分析

列島の遺跡から出土した土器の分析を進めた。石川県真脇遺跡、八日市地方遺跡、群馬県居家以岩陰遺跡、北海道江別市対雁2遺跡、千歳市イカベツ2遺跡、阿賀野市土橋北遺跡、春日部市神明貝塚などから出土した土器片、土器付着炭化物の分析を行った。遺跡出土の糞石や列島と韓国の灯明皿について分析し、興味深い分析結果を得た。

また、中国の田螺山遺跡、跨湖橋遺跡、良渚遺跡・新峽遺跡などで入手した資料について分析を行った。さらに、新学術領域研究「パレオアジア文化史学」と連携し、ギョイトペ遺跡(アゼルバイジャン)、テル・セクル・アル・アハイマル遺跡(シリア・アラブ共和国)、テル・サラサート2号丘出土遺跡(イラク共和国)の資料にも着手している。

国内外の35以上の遺跡から出土した土器胎土・付着炭化物の残留脂質を分析してきた。そ

の内の 26% の試料に炭素数 16 から 24 の APAA が含まれていた。炭素数 16、18 を含む試料は主に植物、炭素数 20 ~ 24 を検出した試料は海棲動物を含む食材の加熱調理を示唆している。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 29 件)

Khenzykhenova, F, Yoshida, K, Sato, T, Shchetnikov, A, Osipova, E, Danukalova, G, Ivanova, V, Simakova, A, Filinov, I, Semenei, E, Namzalova, O, Tumurov, E, and Malikov, D. (2019) The Late Pleistocene Bokhan Site (Fore-Baikal Area, Russia) and its palaeo-environmental reconstruction. *Quaternary Int.* DOI; [10.1016/j.quaint.2019.04.023](https://doi.org/10.1016/j.quaint.2019.04.023) (査読)

Alexandre Lucquin, A, Robson, HK, Eley, Y, Shoda, S, Veltcheva, D, Gibbs, K, Heron, CP, Isaksson, S, Nishida, Y, Taniguchi, Y, Nakajima, S, Kobayashi, K, Jordan, P, Kaner, K, and Craig, OE. (2018) The impact of environmental change on the use of early pottery by East Asian hunter-gatherers. *PNAS* **115** (31) pp.7931-7936; DOI; [10.1073/pnas.1803782115](https://doi.org/10.1073/pnas.1803782115) (査読)

阿部昭典・國木田大・吉田邦夫 (2016) 「縄文時代における注口付浅鉢の成立過程と煮沸具化の意義」考古学研究、**63**、pp.63-84 (査読)

Miyata, Y, Horiuchi, A, Kondo, M, Onbe, S, Yoshida, K, Nagao, S. and Nishimoto, T. (2016) Marine Reservoir Effects Deduced from ¹⁴C Dates on Pottery Residues, Bones, and Molluscan Shells from the Hamanaka 2 Archaeological Site, Rebun Island, Hokkaido, Japan. *Radiocarbon*, **58**, pp.755-770. DOI: 10.1017/RDC.2016.93 (査読)

Lu, R, Honda, T, Sato, M, Yoshida, K, Miyakoshi, T. (2015) Determination of provenance and species of Japanese Jomon lacquer by pyrolysis-gas chromatography/mass spectrometry and ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr isotope ratio. *Int. J. Anal. Appl. Pyrol.* **113**, pp. 84-88 (査読)

〔学会発表〕(計 59 件)

吉田邦夫・宮内信雄・堀内晶子・宮田佳樹 (2018) 「日本列島産現生生物の分子レベル炭素同位体組成と脂質組成に基づく食性解析」日本考古学協会第 84 回総会研究発表

宮田佳樹・堀内晶子・宮内信雄・吉田邦夫 (2018) 「土器脂質分析研究室の開設 (MALT) -日本列島のフーズスケープ (食景観) 復元を目指して-」日本考古学協会第 84 回総会研究発表

Ozaki, H, Omori, T, Itahashi, Y, Yamazaki, K, Kanesawa, A, Uehara, K, Yamaguchi, A, Uchida, A, Yoshida, K and Yoneda, M. (2017) The compact AMS system at the University Museum, the University of Tokyo. 14th Int. Conf. on Accelerator Mass Spectrometry.

Nishida, Y. (2017) Cooking experiment for pottery usage analysis. 5th International Congress on Experimental Archaeology.

宮田佳樹・堀内晶子・西田泰民・吉田邦夫・孫国平・中村慎一 (2017) 「田螺山遺跡出土土器残存有機物を用いた古食性復元」日本文化財科学会第 34 回大会研究発表

Miyata, Y, A. Horiuchi, A, Cramp, L, Kondo, M, Yoshida, K, Onbe, S, Nagao, S, Minami, M, Nakamura, T, Nishimoto, T, and Evershed, RP. (2016) Reconstruction of archaeological remains at the late Jomon period from Rebun Island in Japan: in terms of reservoir effect, stable isotope analysis, lipid analysis and compound specific isotope analysis. 8th international symposium on radiocarbon and archaeology.

〔図書〕(計 2 件)

阿部芳郎 (2017) 吉川弘文館 『縄文時代』 240 頁 (pp.88-216)

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：阿部 芳郎

ローマ字氏名：ABE Yoshiro

所属研究機関名：明治大学

部局名：文学部

職名：専任教授

研究者番号 (8桁)：10221730

研究分担者氏名：宮田 佳樹

ローマ字氏名：MIYATA Yoshiki

所属研究機関名：金沢大学

部局名：先端科学・社会共創推進機構

職名：博士研究員

研究者番号 (8桁)：70413896

研究分担者氏名：西田 泰民

ローマ字氏名：NISHIDA Yasutami

所属研究機関名：新潟県立歴史博物館

部局名：その他部局等

職名：参事

研究者番号 (8桁)：80172667

(2)研究協力者

研究協力者氏名：堀内 晶子

ローマ字氏名：HORIUCHI Akiko

研究協力者氏名：宮内 信雄

ローマ字氏名：MIYAUCHI Nobuo

研究協力者氏名：寺崎 祐助

ローマ字氏名：TERASAKI Yusuke

研究協力者氏名：佐藤 雅一

ローマ字氏名：SATO Masaichi

※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。