

平成30年5月29日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K12809

研究課題名(和文) 鉄文化財の極微量元素・同位体組成分析に基づく地球科学的手法のアプローチ

研究課題名(英文) Earth Scientific Approach using Trace Element and Isotope Analyses for Iron Antiquities

研究代表者

小山内 康人(Osanai, Yasuhito)

九州大学・比較社会文化研究院・教授

研究者番号：80183771

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000円

研究成果の概要(和文)：岡山県新見市正田たたら場にて、鉄原材料、製鉄炉構築材およびその原材料、製鉄条件(炉内温度、砂鉄と木炭投入量など)などが明確な製鉄実験を実施した。平成28年度は古代日本、とくに古墳時代の製鉄炉を想定したものであったが、29年度は東アジアさらに中央ユーラシアにおける比較研究を念頭に、古代朝鮮半島の製鉄炉を復元し実験を行い、製鉄過程における元素・同位体の挙動を明らかにできる試料を得た。

研究成果の概要(英文)：We have done the precision Iron Manufacturing Experiments during these 2 years at the Tataro iron making place, Okayama. In 2016, the experiment was carried out with supposing the Iron manufacturing technique of the Kofun period. On the other hand, the experiment of the 2nd year (2017) assumed the Ancient techniques derived from central Eurasia, especially in Korean peninsula. After the completion of the experiments, we have successfully got the suitable samples for making a comparison of Iron Antiquities with detailed analyses of trace element compositions and multi-isotope.

研究分野：地質学

キーワード：鉄関連遺物 製鉄技術 地球科学の高精度分析 極微量元素・同位体分析 製鉄実験 中央ユーラシア
東アジア 古代

1. 研究開始当初の背景

従来の研究では製鉄原料の分析が十分に行われていないため、生成物や製品の分析に終始し、製鉄炉との直接的関係や具体的な産地分析まで議論を深めることができていない。つまり、研究の土台となるべき実際の鉄の生産と流通は全く解明されていないのが研究開始当初の状況であった。考古学では鉄の機器分析としては金属組織学の面からのアプローチが盛んである。資料に含有されるTiとV濃度を指標に分類し、原材料が砂鉄系か鉱石系を判別するのが通例であった。また観察により鉄中の非金属介在物を同定し、当時の製作技術と技術レベルを復元し、東アジアの鉄をめぐる歴史解明を行ってきた。しかし、実際に原料、製品、鉄滓などの鉄関連資料が一つの遺跡から出土し、その全てを分析できる機会を得ることは非常に困難である。現実、限定的な資料から古代の鉄の製作過程や、原料およびその原産地を復元する新しい方法が求められる。

鉄製品の内部組織や元素・同位体組成は、原料となる鉄含有鉱物や、製錬に必要な燃料や炉体粘土などに由来する成分を反映し、また製錬温度や酸化還元状態、冷却過程などのプロセスによって変化すると考えられる。また鉄滓にも、同様に元素・同位体組成や内部組織の変化が記録されている。つまり、上記の問題に答えるためには、**高い精度で元素・同位体組成を分析する必要がある。**とはいえ、金属器の機器分析については、青銅器資料に関して鉛同位体組成分析と鉛素材の産地に関する研究が推進され一定の成果が挙げられている(馬淵・平尾・斎藤ほか)が、鉄文化財に体しては鉄同位体組成分析等を実施した研究は皆無である。なぜなら、鉄の同位体分別は非常に微小で、かつ高い同位体分解能が必要であり、高感度・高同位体分解能をもつ分析機器と高い分析技術が不可欠なためである。そこで、本研究では、**極微量元素分析や同位体を微小領域で分析可能な装置群を用いて未知の研究領域へ挑戦し、新たな手法を開発、提示する。**これにより、生産と流通を具体的に復元でき、鉄が歴史上果たした役割をより明らかにできると考えた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、これまで主に金属組織に注目されて進められてきた鉄器分析に対して、地球科学的アプローチから**極微量元素分析や同位体組成分析を進めることによって、金属の新たな分析手法を確立しようとする**ものである。考古学における金属器分析分野の主要な研究関心は、現在、金属器自体の組織分析を通じた当時の技術レベルの復元にある。これに対し、本研究は素材および製作工程各プロセスにおける生成物、製品に対して極微量元素分析や同位体組成分析を実施することにより、これまでの研究方法にはない**原料原産地分析**を試み、新たな鉄の生産と

流通論につなげることを目指す。また、考古資料を分析するため、本研究では分析資料の**非破壊・準非破壊での分析**の方法も提案する。

3. 研究の方法

研究に必要な資料は原産地踏査、および精密製鉄実験により採取する。原産地にある原料と製鉄工程における各鉄関連資料(原料、生成物、鉄滓など)を**電界放出方電子線マイクロアナライザー(FE-EPMA)**を用いて、それらの観察と**鉱物化学分析**を実施し、**レーザー溶出型誘導結合プラズマ質量分析計(LA-ICP-MS)**では、極微量元素分析や同位体組成分析を実施する。製鉄実験と分析の成果を相互にフィードバックさせることで、**どの原材料でどのような鉄や鉄滓が生成され、鉄器へと加工されるのか実体的な生産工程と比較して分析を進める。**詳細な研究方法は、以下の通りである。

1-1. 考古学的研究成果に基づく製鉄実験

愛媛大学東アジア古代鉄文化研究センターで継続的に実施してきた製鉄実験の原料および生成物(製品および鉄滓)を分析試料とする。また、本申請研究での、分析に有効な古代製鉄炉のモデルを作成し、岡山県新見市(新見庄たたら施設)にて2回以上の製鉄実験を行い新たな分析試料を得る。分析実験に用いた原料やその混合比、使用した炉と製錬温度、鉄滓とそれが生成した温度、最終的に得られた製品などは、全て関連付けが可能で再現可能である。

1-2. 化学組成・微量元素分析・同位体組成分析

製鉄の原料、生成物(製品)、鉄滓について、それぞれ以下の手順で分析を行う。

鉄含有鉱物などの各鉱物を、電界放出方電子線マイクロアナライザー(FE-EPMA)を用いて**鉱物化学組成分析**を行う。また化学組成に基づき**鉱物同定**を行う。鉱物種とその微量元素組成は、起源となった岩石種や地質によって変化するため、原料の起源を推定する手掛りとなる。

化学組成を得るため、ガラスビードを作成し、**蛍光X線分析装置(XRF)**および**レーザー溶出型誘導結合プラズマ質量分析計(LA-ICP-MS)**を用いて**主要・微量元素組成**を分析する。

同位体組成を得るため、上記で作成したガラスビードを、**レーザー溶出型マルチコレクタ誘導結合プラズマ質量分析計(LA-MC-ICP-MS)**で分析する。

1-3. 製鉄過程における元素組成・鉄同位体組成の変化モデルの作成

原料、製品、鉄滓の化学組成分析に結果に基づき、これら鉄関連資料の**元素組成・同位体組成の変化モデル**を検討する。具体的には、原料および製鉄条件(温度や酸化還元状態)の変化が、製品や鉄滓の**元素・同位体組成**の変化にどのように反映するかを解析し、定式

化を行う。これにより、実際に出土した鉄関連資料を分析して得られたデータから、その製鉄技術や原料を推定することが可能となる。

2-1. 原料原産地の踏査

データベースの作成を念頭に、西日本とくに中国地方の地質調査と鉱物・岩石採取を行う。

2-2. 化学組成・極微量元素分析・同位体組成分析

踏査で得た鉱物・岩石の分析を行う。

鉄含有鉱物などの各鉱物を、電界放出方電子線マイクロアナライザー（FE-EPMA）を用いて鉱物化学組成分析を行う。また化学組成に基づき鉱物同定を行う。鉱物種とその微量元素組成は、起源となった岩石種や地質によって変化するため、原料の起源を推定する手掛りとなる。

化学組成を得るため、ガラスビードを作成し、蛍光 X 線分析装置（XRF）およびレーザー溶出型誘導結合プラズマ質量分析計（LA-ICP-MS）を用いて主要・微量元素組成を明らかにする。

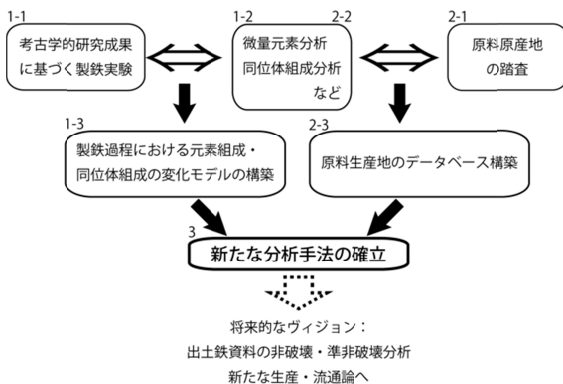
同位体組成を得るため、上記で作成したガラスビードを、レーザー溶出型マルチコレクタ誘導結合プラズマ質量分析計（LA-MC-ICP-MS）で分析する。

2-3. 原料原産地のデータベース構築

上記の解析を通じて分析試料の元素・同位体組成の復元に成功した後、そのような元素・同位体組成を持つ鉱物・岩石がどこで得られるかを参照することによって、原料の採取地点を特定することができる。そのためには、様々な地域における鉄含有鉱物・岩石の元素・同位体組成の特徴を広域で明らかにし、データベース化する必要がある。

3. 新たな分析手法の確立

方法 1 と方法 2 で得られた成果をもとにして、これまでの考古学的資料および研究成果とを比較しながら、今後の有効な方法として検討を行う。最終的に、新たな分析手法として確立させ提案したい。



4. 研究成果

本研究は、地球科学的アプローチから極微

量元素分析や同位体組成分析を進めることによって、金属の新たな分析手法を確立しようとするものである。素材および製作工程各プロセスにおける生成物、製品に対して極微量元素分析や同位体組成分析を実施することにより、原料原産地分析を試み、新たな鉄の生産と流通論につなげることを目指すものである。

この目的を達成するために、前年度に続き、平成 29 年度は鉄原材料、製鉄炉構築材およびその原材料、製鉄条件（炉内温度、砂鉄と木炭投入量など）などが明確な製鉄実験を実施した。製鉄実験は岡山県新見市正田たたら場にて実施した。平成 28 年度は古代日本、とくに古墳時代の製鉄炉を想定したものであったが、今年度は東アジアさらに中央ユーラシアにおける比較研究を念頭に、古代朝鮮半島の製鉄炉を復元し実験を行った。製鉄実験では、各原材料と製品、鉄滓、最終的に残存した炉の一部を採取し、製鉄過程における元素・同位体の挙動を明らかにできる試料を得ることができた。これらの試料については、試料内の不均質がかなり大きいことが観察によって判明したため、その前処理方法について検討を行った。

また、遺跡出土の鉄関連資料の分析を実施した。得られたデータは、製鉄過程を把握できている前述の製鉄実験で得られた資料のデータと比較することで、過去の製鉄技術を復元につながる。今回はカザフスタン・アラト遺跡出土の鉄鉱石、鉄製品、鉄滓資料を分析し、考古資料として採取されたこれらの遺物の化学組成的な特徴を把握した。

製鉄実験において、製鉄過程における元素・同位体の挙動を明らかにできる試料を得ることができると判明した。最適な前処理方法を決定したのち、本格的に機器分析に着手するとともに、本目的に沿った製鉄実験の方法、製鉄実験の生成物の分析体制、そして出土考古遺物との比較研究の方法という、一連の研究体制の基盤を確立した。

5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕(計 10 件)

小山内康人・中野伸彦・足立達朗, 2018. 島弧-大陸地殻深部現象の研究進展: 超高温変成作用の精密解析. 地質学雑誌, 123, 879-906.

Osanai, Y., Sajeev, K., Nakano, N., Kitano, I., Kehelpannala, W.K.V., Kato, R., Adachi, T., Malaviarachchi, S.P.K., 2016. UHT granulites of the Highland Complex, Sri Lanka I: Geological and petrological background. Journal of Mineralogical and

- Petrological Sciences, 111, 145-156. (doi: 10.2465/jmps.151227)
- Osanai, Y., Sajeev, K., Nakano, N., Kitano, I., Kehelpannala, W.K.V., Kato, R., Adachi, T., Malaviarachchi, S.P.K., 2016. UHT granulites of the Highland Complex, Sri Lanka II: Geochronological constraints and implications for Gondwana correlation. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*, 111, 157-169. (doi:10.2465/jmps.151230)
- Nakano, N., Osanai, Y., Nguyen V. Nam, Tran V. Tri, 2018. Bauxite to eclogite: Evidence for late Permian supracontinental subduction at the Red River shear zone, northern Vietnam. *Lithos*, 302-303, 37-49.
- Kitano, I., Osanai, Y., Nakano, N., Adachi, T., Fitzsimons, I.C.W., 2018. Detrital zircon and igneous protolith ages of high-grade metamorphic rocks in the Highland and Wannai Complexes, Sri Lanka: Their geochronological correlation with southern India and East Antarctica. *Journal of Asian Earth Sciences*, 156, 122-144 (査読有)
- 田尻義了, 2018. 弥生時代北部九州における円環型銅釧の展開, 古文化談叢, 80, 69-86. (査読有)
- 田尻義了, 2017. 銅釧・銅鏃・銅釧の生産に関する問題点 - 鳥栖市藤木(ふじのき)遺跡出土の青銅器鋳型について, 考古学・博物館学の風景, 375-383.
- 村上恭通, 2017. 製鉄の起源と技術の東方波及. ふえらむ, Vol. 22, No. 12, 日本鉄鋼協会, pp. 41 - 47
- 臼杵勲・笹田朋孝・木山克彦, 2017. 近年のホスティン・ボラグ遺跡(匈奴の生産址遺跡群)の調査. *金沢考古*, 75, 24 - 35.
- 笹田朋孝, 2017. 幕末佐賀藩の近代産業化遺跡の学際的研究. *理論考古学の実践*, 安齋正人編, 同成社. 482 - 498.
- [学会発表](計 26 件)
- 足立達朗, 田尻義了, 中野伸彦, 小山内康人, 今津遺跡および今宿遺跡群出土玄武岩製石斧の地球科学の高精度分析, 平成 29 年度九州考古学会総会, 福岡, 2017.11.
- 田尻義了, 足立達朗, 小山内康人, 甲斐孝司, 岩橋由季, 森下靖士, 船原古墳出土須恵器の胎土分析について, 平成 29 年度九州考古学会総会, 福岡, 2017.11.
- 福永将大, 足立達朗, 田尻義了, 浦井直幸, 小山内康人, 法垣遺跡出土縄文土器の高精度胎土分析, 平成 29 年度九州考古学会総会, 福岡, 2017.11.
- 栗畑光博, 近沢恒典, 田尻義了, 足立達朗, 所属時期不明遺構のテフラ分析による年代推定, 平成 29 年度九州考古学会総会, 福岡, 2017.11.
- Nakano, N., Osanai, Y., Owada, M., Satish-Kumar, M., Adachi, T., Jargalan S., Syeryekhan K., Boldbaatar Ch., Paleozoic multiple thermal events in the Altai Range, Mongolia, JpGU-AGU Joint Meeting 2017, Chiba, 2017.05. (国際セッション)
- Osanai, Y., Nakano, N., Adachi, T., Kitano, I., Yoshimoto, A., Kato, R., Tsuschiya, N., Ishizuka, H., Tectono-metamorphic evolution of the Kurosegawa tectonic belt in Southwest Japan, JpGU-AGU Joint Meeting 2017, Chiba, 2017.05. (国際セッション)
- Kato, R., Osanai, Y., Nakano, N., Adachi, T., Kitano, I., Trace element partitioning during partial melting in main zone of the Hidaka metamorphic belt, JpGU-AGU Joint Meeting 2017, Chiba, 2017.05. (国際セッション)
- Abdul G.N., Osanai, Y., Nakano, N., Adachi, T., Petrology and Geochemistry of Metamorphic rock from the Kabul Block, Afghanistan, JpGU-AGU Joint Meeting 2017, Chiba, 2017.05. (国際セッション)
- Osanai, Y., Nakano, N., Adachi, T., Owada, M., Toyoshima, T., Tsunogae, T., Hokada, T., Geological and geochemical characteristics of UHT metamorphic rocks from the Amundsen Bay region in the Napier Complex, East Antarctica, JpGU-AGU Joint Meeting 2017, Chiba, 2017.05. (国際セッション)
- 土谷信高, 足立達朗, 中野伸彦, 小山内康人, 南部北上山地, 神楽複合岩類に伴われる珪長質岩類のジルコン U-Pb 年代と岩石化学的特徴, JpGU-AGU Joint Meeting 2017, 千葉, 2017.05.
- 門田康弘・平島崇男・加藤涼介・小山内康人・中野伸彦・足立達朗・坂田周平・大林秀行・平田岳史・Jarsolaw, M.・Marian, J., 力

レドニア造山帯トロムセ・ナップに産する珪長質片麻岩中のジルコン年代学．日本鉱物科学会 2017 年年会，松山，2017.09.

北野一平・小山内康人・中野伸彦・足立達朗，スリランカ・ハイランド岩体およびワンニ岩体に分布する高温変成岩の地球化学的・年代学的 特徴と形成テクトニクス．日本鉱物科学会 2017 年年会，松山，2017.09.

中野伸彦・亀井淳志・足立達朗・小山内康人，LA-MC-ICP-MS を用いたアパタイトの Sr/Nd 同位体比測定と花崗岩類への応用．日本鉱物科学会 2017 年年会，松山，2017.09.

Bolormaa, T., Osanai, Y., Nakano, N., Adachi, T., Mineralogy and geochemistry of coal fly ash generated from the thermal power plant in Ulaanbaatar, Mongolia . 日本鉱物科学会 2017 年年会，松山，2017.09.

宮本一夫，田尻義了，松本圭太，T.Amgalantugs，D.Bazargur，モンゴル国バヤンホンゴール県エメルト・トルゴイ遺跡の発掘調査，第 19 回北アジア調査研究報告会，東京，2018.03.

福田正宏・M.Gablirchuk・國木田大・A.Malyabin・M.Gorshkov・田尻義了・江田真毅・夏木大吾・足立達朗，ロシア・ユダヤ自治州における完新世遺跡群の実態調査 - 2017 年度調査結果速報 - ，日本中国考古学会九州部会第 78 回例会，福岡，2018.02.

田尻義了，弥生時代の玄界灘交易のあり方，地球社会統合科学府包括的東アジア日本研究コースワークショップ，福岡，2018.02.

田尻義了，日韓の青銅器と鋳型，第 29 回東アジア古代史・考古学研究会交流会，福岡，2018.01.

田尻義了，日韓の青銅器と鋳型 近年の出土資料の位置づけ，東アジア考古学会，福岡，2017.12.

笹田朋孝，몽골고 최신성과 (モンゴルの最新の調査成果)，2017 년도 영남대 에히메 공동 (2017 年度嶺南大学校・愛媛大学共同学術大会)，韓国・嶺南大学校(慶山市)，2017.6.

Tomotaka Sasada, Lochin Ishtseren, Two Types of Iron Smelting Furnaces in Ancient Mongolia The Ninth International Conference on the Beginnings of the Use of Metals and Alloys, 韓国・東亜大学校(釜山市)，2017.10.

笹田朋孝，モンゴル国北東部ウルズ川流域の 2017 年度踏査報告，第 19 回北アジア調査研究報告会，日本・東京大学(東京都文京区)，2018.3.

松井良行，笹田朋孝，永田和宏，反射炉法における動的状態とその制御に関するプロセス工学的アプローチ，日本鉄鋼協会第 175 回春季講演大会，日本・千葉工業大学(習志野市)，2018.3.

村上恭通，黒海・カスピ海北岸地域における鉄器文化成立期の諸問題 - 銅柄鉄剣の問題に触れつつ - ，古代オリエント博物館ナイト講座，古代オリエント博物館，2018.1.12. (講演)

村上恭通，欧亜草原地帯の早期冶鉄和游牧社会 - 从考古学的視座 - ，从中亞到南亞 全球視野下的冶金考古發現与研究，貴州省博物館(貴陽)，2017.12.10 (招待講演)

笹田朋孝，北アジアにおける製鉄技術の伝播および発展，国際学術シンポジウム北東アジアにおける製鉄技術の流れ，韓国・国立中央博物館(ソウル市)2017.10. (招待講演)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小山内 康人 (OSANAI YASUHIITO)
九州大学・比較社会文化研究院・教授
研究者番号：8 0 1 8 3 7 7 1

(2) 研究分担者

田尻 義了 (TAHIRI YOSHINORI)
九州大学・比較社会文化研究院・准教授
研究者番号：5 0 4 5 7 4 2 0

中野 伸彦 (NAKANO NOBUHIKO)
九州大学・比較社会文化研究院・講師
研究者番号：2 0 4 5 2 7 9 0

足立 達朗 (ADACHI TATSUROU)
九州大学・比較社会文化研究院・助教
研究者番号：0 0 5 8 2 6 5 2

村上 恭通 (YASUYUKI MURAKAMI)
愛媛大学・東アジア古代鉄文化研究センター・教授
研究者番号：4 0 2 3 9 5 0 4

槇林 啓介 (MAKIBAYASHI KEISUKE)
愛媛大学・東アジア古代鉄文化研究センター・准教授
研究者番号：5 0 4 0 3 6 2 1

笹田 朋孝 (SASADA TOMOTAKA)
愛媛大学・法文学部・准教授
研究者番号：90508764