

大阪南部窯址群出土の須恵器の放射化分析 — I

三辻利一*, 武内孝之**, 小山路夫***,
市川米太*, 梅田甲子郎*, 大沢真澄****,
粕谷英雄****, 奥田 潤***, 栗岡誠司*

* 奈良教育大学

** 京都大学原子炉実験所

*** 京都大学理学部

**** 東京学芸大学

1. はじめに

我々は、先に、考古学的研究に寄与出来る理学的方法の一つとして、機器的放射化分析法を用いて、須恵器の分析を試みた。¹⁾ この機器的放射化分析法は、近年、普及してきた半導体検出器の分解能の良さを利用して、エネルギー解析だけで核種の同定を行い、標準試料と比較して、未知試料中の種々の元素を定量する方法で、これに、電子計算機を連絡することによって、多元素の同時分析を短時間のうちに可能にするものである。とくに、土器類のように、数多くの微量元素を含む試料にとっては、本法は、大きな利点をもっている。しかし、前回に試みた実験結果では、土器を短時間中性子放射化した場合のように、比較的簡単なアスペクトルからの定量結果は、他法の結果と良い一致を示したが、長時間中性子放射化した試料のように、複雑なアスペクトルからの分析値の一部に、他法と大きく異なる値を与えるものがあり、この点で、分析化学的に、まだ、問題点を含んでいるようである。

今回も、前回に引き続いて、主として、大阪南部窯址群出土の須恵器について、機器的放射化分析を試みた。土器のうち、とくに、大阪南部窯址出土の須恵器をとり上げた理由は、考古学的方法により、奈良県出土の須恵器の多くが、大阪南部窯址群で生産されたと推定する報告があり²⁾、その結果を、理学的方法によって確認しようとするためである。この目的にしたがい、比較的良好的な分析値を得た。Na, K, Mn, および、その他の微量元素について、若干、考古学的考察を試みた。

2. 実 験

2・1 試料

今回、分析を試みた須恵器試料は、表1に一覧表としてまとめてある。

2・2 方法

これらの試料は、十分洗浄してのち、5～10 g の小片を切り出し、タングステン・カーバイト製の乳鉢で粉細した。中性子放射化は京都大学原子炉(5 MW)で行い、放射化条件は、中性子束が、 2×10^{13} n/cm²/sec、照射時間は、10分および1時間であった。照射試料は、適当時間冷却してのち、1000チャンネル波高分析器に連結した24CCゲルマニウム検出器で、7スペクトルを測定した。測定データは、京都大学原子炉実験所の電子計算機で処理した。また、標準試料としては、JB-1を使用した。

表 1 分析試料一覧表

試料記号	出土窯址名	所在地	製作時期
G-1	大野池西(A)	大阪府和泉市	I 期 前
A-1			
I-1	上 代	大阪府和泉市	■ 期 前
I-2	上 代	大阪府和泉市	■ 期 前
J-1	八 田 5 号	大阪府堺市	■ 期後～IV期
L-2	和 泉 1 号	大阪府和泉市	V 期
M-1	梨 本 D 号	大阪府和泉市	V 期
M-3	梨 本 D 号	大阪府和泉市	V 期
P-1	西 賀 茂	京 都 市	
S-1	今 池 瓦 窯	奈 良 県	

3. 結果および考察

我々は、先に、1分間照射について、放射化分析を試みた¹⁾。これは、Mg(²⁷Mgの $T_{1/2} = 9.45$ min)、V(⁵²Vの $T_{1/2} = 3.76$ min)、Al(²⁸Alの $T_{1/2} = 2.27$ min)の分析値を得るためであった。これら3元素のうち、Mg、Alは、ともに、土器の主成分元素の一つであり、本法を用いなくても、他の方法で十分に分析できる。また、Vについては、前報の結果では、土器の産地分析の目的には、十分な情報を期待出来ないように思われたので、むしろ、1分間という短い照射条件では、時間誤差が大きくなる可能性があり、またK(⁴²Kの $T_{1/2} = 12.5$ h)の分析精度が、良好でなかった等の点を改良することを考慮に入れて、10分間という照射条件を選択した。10分間中性子照射し、約2～3時間、冷却してのち測定した7スペクトルの一例を、図1

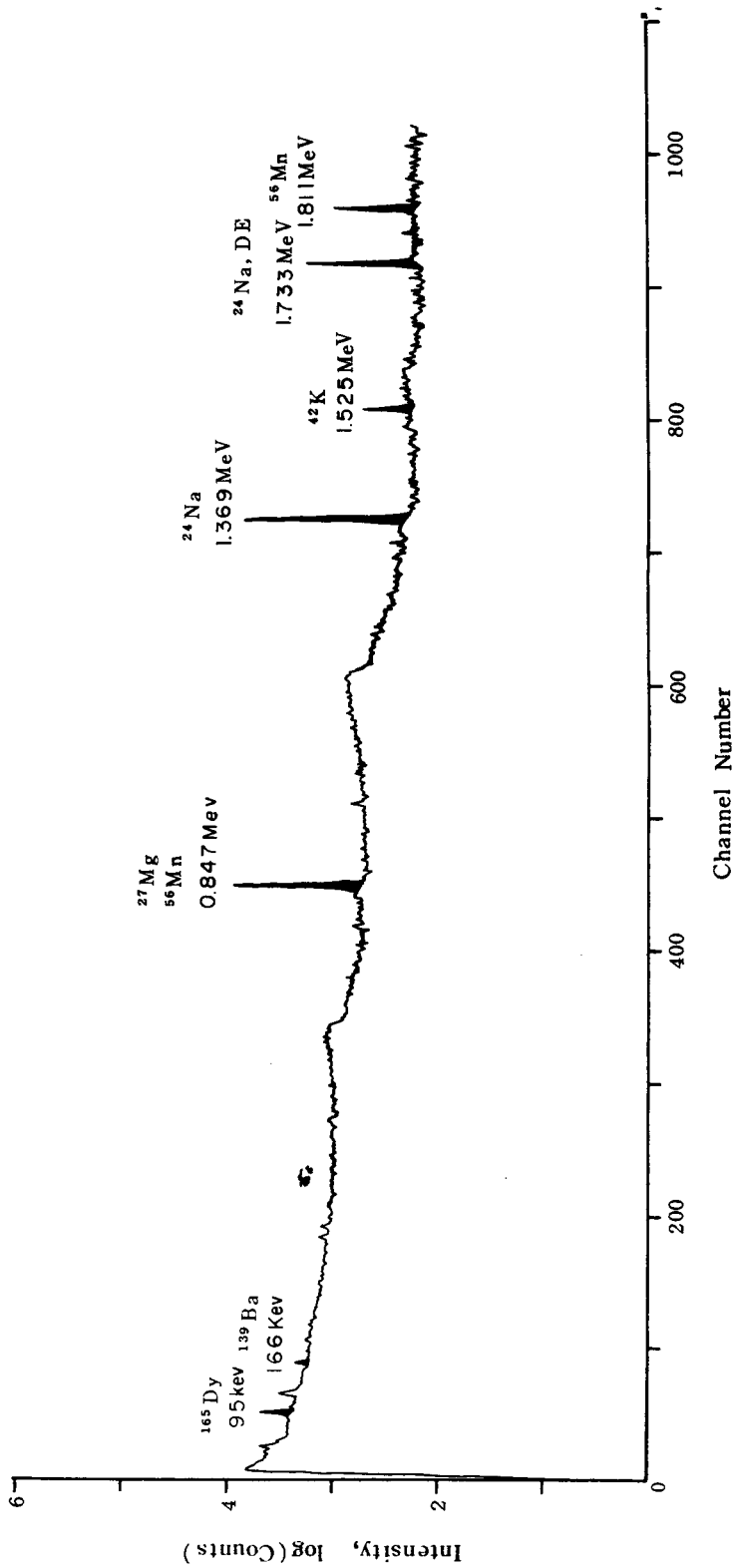


図1 10分間中性子放射化した須恵器のγスペクトル

に示してある。いづれの須恵器試料についても、その γ スペクトルのパターンは、ほぼ、同じであった。このことは、特定の須恵器試料中に、特異的な元素は含まれていないことを意味する。この γ スペクトルより、計算機が、捨り上げた約30種の核種のうち、 γ 線スペクトルと見比べて、妥当と思われるものは、95 KeVの ^{165}Dy ($T_{1/2} = 2.36 \text{ h}$)、166 KeVの ^{139}Ba ($T_{1/2} = 82.9 \text{ min}$)、847 KeVの1.811 MeVの ^{56}Mn ($T_{1/2} = 2.58 \text{ h}$)、1.369 MeVの ^{24}Na ($T_{1/2} = 15.0 \text{ h}$)、1.525 MeVの ^{42}K ($T_{1/2} = 12.5 \text{ h}$)であった。 ^{56}Mn のピークのうち847 KeVの方は、 ^{27}Mg ($T_{1/2} = 9.45 \text{ min}$)の844 KeVの光電ピークと重なるため、Mnの定量には、1.811 MeVのピークを使用した。以上の光電ピークを用いて分析した結果は、表2に示してある。また、これらの分析値の信頼度を確かめるため、JB-1、標準岩石試料を用いて、他法と比較した結果を、表3に示してある。Na、Mn、Dyの三元素は、誤差の範囲内で、よい一

表2 10分間照射による分析値 (ppm)

試料 \ 元素名	Na	K	Mn	Dy	Ba
G-1	5710	13000	104	2.85	353
A-1	10500	23800	299	3.73	574
I-1	6910	17300	116	3.55	359
I-2	7920	18800	109	3.05	376
J-1	7900	22400	237	3.79	369
L-2	6190	17700	268	2.05	371
M-1	5780	21500	144	2.77	452
M-3	3940	16400	117	3.04	357
P-1	4050	17400	302	2.80	396
S-1	6640	20000	348	1.59	517

表3 10分間照射で本法で得られた分析値と他法による分析値との比較 (JB-1使用)

	Na	K	Mn	Dy	Ba
本 法	21800 \pm 1340 ^{ppm}	8510 \pm 1990 ^{ppm}	1280 \pm 62.7 ^{ppm}	3.61 \pm 0.62 ^{ppm}	288 \pm 22.4 ^{ppm}
他 法 ³⁾	20800	11800	1240	4.06 4.25	454 320

致を示しているが、KとBaは、多少、精度がおちるようである。しかし、これらの結果は、本法で十分な分析結果が期待出来ることを示している。しかしながら、短時間の中性子放射化では、須恵器については、上述の五元素についての情報しか得られない。より多くの微量元素についての情報を得ようとするれば、どうしても、長時間の中性子放射化が必要となる。そこで、須恵器の1時間照射を試みた。1時間照射後、約10日間、冷却した照射試料のアスペクトルを、図2に示してある。このアスペクトルより、我々が確認した光電ピークは、図2で黒くぬりつぶしてある。Fe, Co, Sc, Pa(これは、Thの定量に用いる)、Lu, Sm, Ce, Yb, Eu, La, Rb, Cs, Ta, の光電ピークが観測された。これらのピークのうち、Fe, Co, Sc, Paには、各々、2本のピークがある。たとえば、⁵⁹Feには、1.099 MeVと1.291 MeVの2本のピークがある。各々のピークを用いての分析値と、それらの平均値を表4に示してある。両ピークとも、ほぼ一致した定量

表4 ⁵⁹Feの2本の光電ピークによるFeの定量値

	1.099 MeV のピークによる定量	1.291 MeV のピークによる定量値	平均値
A-1	27.2 mg	28.0 mg	27.6
I-1	37.0	37.8	37.4
I-2	40.0	40.8	40.4
J-1	35.9	38.1	37.0
M-1	45.8	47.3	46.6
M-3	49.3	50.6	50.0
P-1	40.8	40.8	40.8
S-1	53.8	51.7	52.8

値を与えており、ここでは、その平均値をとって、Feの定量値とした。同様に、Co, Sc, Pa, についても、両ピークとも定量に用いることが出来ることが判ったので、ここでは、その平均値をとって、各々の元素の定量値とした。また、標準試料を用いての、他法による分析値との比較では、Sc, Cs, Co, Fe, Rb, Ce, Lu, Th は比較的よい一致を示したが、Ybについては、かなり大きな差異を示した。また、La, Eu については、数本のピークが観測されるが、それらのピークを用いての定量結果は、互いに、かなり異なり、この点においても、分析化学的に今後の問題を残した。しかしながら、1時間照射においても、本法はほぼ有効であることがわかった。1時間照射による須恵器の分析結果を表5に示してある。なお、念のため、須恵器の微量元素組成を標準岩石試料、JG-1, JB-1と比較してみた。表6にJG-1, JB-1の微量元素組成を示してある。³⁾

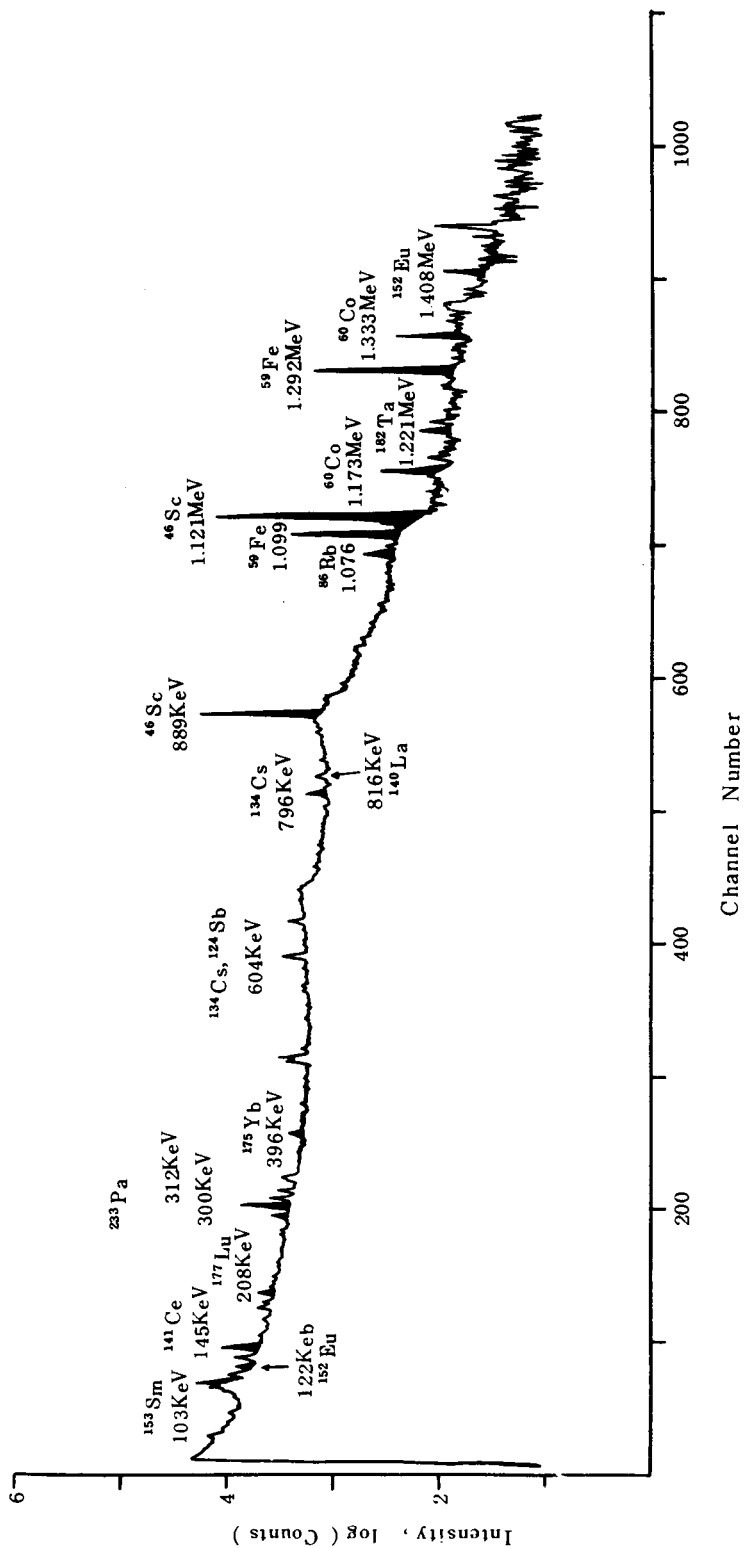


図2 1時間中性子放射化した須恵器のスペクトル

表5 1時間照射による分析値 (ppm)

	Co	Th	Rb	Cs	Sc	Ta	Ce	Sm	Lu
A-1	6.6	18.1	71.9	5.9	12.2	0.8	76.4	2.8	0.7
I-1	6.2	16.1	77.9	7.0	11.5	1.1	76.3	5.6	0.8
I-2	5.8	19.3	74.5	5.7	12.8	0.7	74.8	7.0	0.9
J-1	7.8	17.6	64.9	7.9	14.2	1.2	79.9	6.6	0.8
M-1	7.1	19.9	91.0	9.7	12.9	0.5	89.4	—	0.7
P-1	10.9	17.7	71.9	6.0	11.8	0.7	75.3	2.8	0.7
S-1	16.4	9.2	69.0	5.0	17.7	—	56.6	5.7	0.3

表6 JG-1, JB-1の微量成分³⁾ (ppm)

	Co	Th	Rb	Cs	Sc	Ta	Ce	Sm	Lu
JG-1	4.0 ~ 11	11.5 ~ 14	181 ~ 207	10.1 ~ 10.6	6.54 6.44	2.9	41.9 ~ 47	4.15 ~ 5.4	0.22 ~ 0.52
JB-1	27 ~ 49	7.8 ~ 11.8	34 ~ 44.9	1.0 1.3	25.6 27.5	4.4	65 ~ 67.9	4.7 ~ 5.1	0.29 ~ 0.33

次に本法によって得られた分析結果から 大阪南部窯址群出土の須恵器の化学組成を若干、考古学的考察に結びつけてみよう。目下のところ、これら分析結果から、考古学的考察をしていくための特別の手がかりは何もないので、比較的、良好な分析結果を与えた10時間照射の結果を用いて考察を試みた。図3は、その試行の一つである。Mnの絶対量を横軸にとったのは、Mnが分析元素の中で、最も信頼度の高い分析値を与えるということと、全体的に眺めて、Mnの分析結果が、産出窯の特性を微妙に表示しているように思われたからである。また、縦軸にK/Naをとったが、この比は、岩石の種類によっても異なるが、同一種の岩石でも、風化が進行すると、この比が大きくなることから、K/Naの比が、須恵器の材料となる粘土の産出地の特性を示す指標になるかもしれないと期待したからである。図3の結果をみると、標準岩石のJG-1とJB-1のMn量は須恵器と比べて大きく、逆に、K/Na比は小さいことがわかる。須恵器に注目すると、同一窯址出土の、M-1, M-2, M-3; G-1, G-3; I-1, I-2; R-1, R-2は近接した領域に分布していることがわかる。(M-2, R-1, R-2の分析値は前報より採用した)。ここで、G群とI群が製作年代が異なるにもかかわらず、近接した領域に分布するのは、地理的にみて、その窯址場所が、ともに、同じ信太丘陵北部にあり、かつ、距離的にみても、1km程度し

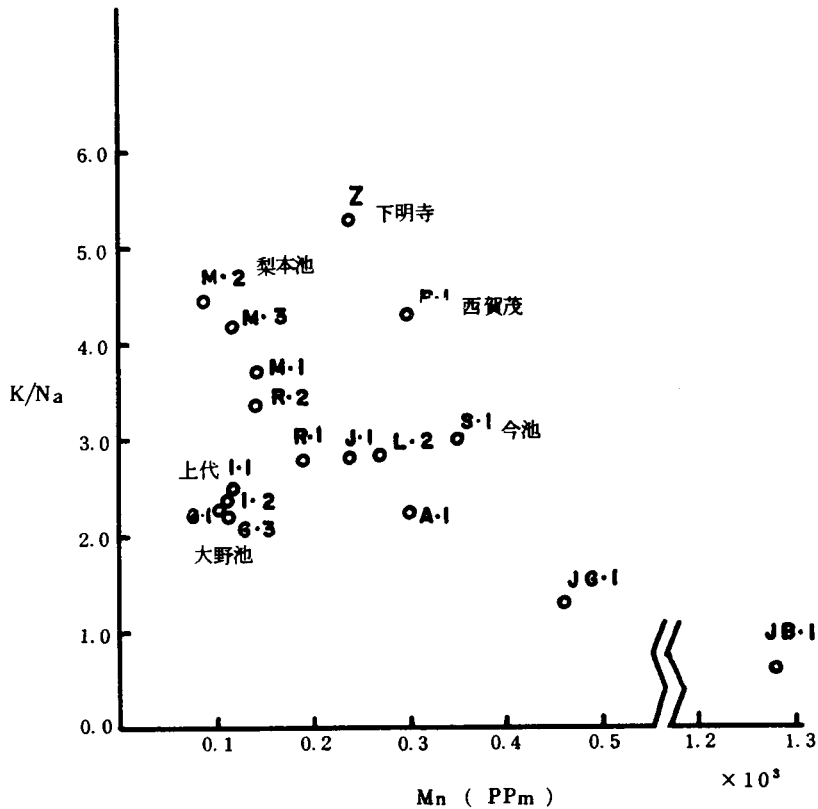


図3 K/Na と Mn の相関関係

か離れていないことから ほぼ、同じ性質の粘土を使っていた可能性が強く、この結果が妥当と考えられる。また、信太丘陵東部の窯址出土の J, L, A も、図3では、近接した領域に分布しており、これに反して、産地が全く異なると推定される R (香川県, カメヤキ谷), P-1 (京都市西賀茂), S-1 (奈良県今池瓦), Z (カシハラ, 下明寺遺跡)等は、若干、離れた領域に分布していることがわかる。大阪南部群に比べて、P-1, S-1 の特異性は、微量元素においても見出される。すなわち、Co 量は P-1, S-1 は共に多く、Sc は S-1 に多い。また、Th 量は S-1 に相当少ないことが表5から判る。数少ないデータからの速断は危険であるが、以上の結果から、Mn ~ K/Na の間の相関関係が、須恵器の産地の特性を表示し得るのではないかと思う。少なくとも、

同一窯址出土の須恵器は外見上の色合いが異っていても、Mn～K/Naの関係は類似しており、このことは、同一窯では、ほぼ、同一粘土を須恵器の材料に使っていたことを裏づけている。しかしながら、同じ大阪南部窯址出土のものでも、地域的、距離的に窯が少し離れると、Mn～K/Naの関係は少し異なり、違った粘土を使っていたことを暗示している。このことは、化学組成的にみて、大阪南部群の全体としての平均値を求めることは、産地分析からみて、意義はなく、むしろ、一つの窯の平均組成を求め、窯単位の産地分析を行う方が、より有効であることを示している。我々は、以上の考察を一層有意義にするために、奈良平城宮から出土した須恵器で、考古学的にみて、大阪南部窯から来たと推定されるものについて、上記の試行を目下検討中である。

4. 文 献

- 1) 三辻利一, 考古学と自然科学 第5号 59 (1972)
- 2) 高橋誠一, 史林 54巻 5号 79 (1971)
- 3) A. Ando et al, Geological Survey of Japan 153 (1971)

本研究を進めるにあたり、標準試料については、京都大学教養、西村進氏に、また、中性子照射については、京都大学原子炉ホットラボの諸氏に、種々、お世話になりました。ここに厚くお礼申し上げます。

