

黒曜岩岩体内部での化学組成の変化について

吉谷昭彦¹⁾・西田史朗²⁾・川口 優³⁾

I はじめに

人類は黒曜岩を原材として、約5～3万年前から生産用具を製作し、これを用いてきた。生産用具の製作に関わる技術の進歩は社会の発展をもたらすと共に、技術の伝播を伴う交流もまたその一翼になった。遺跡から出土する黒曜岩製の石器の原材がどこの産地のものであるかを明らかにする試みが、さまざまな角度からなされてきた。この試みは、人類史上での人的交流をもふくんだ社会的ネットワークの実態を明らかにすることができるかと期待されているところである。(鈴木, 1969; 東村, 1980; 藁科・東村, 1983; 興水ほか, 1994; など)。

日本列島に分布する黒曜岩の原産地と言われている箇所では、255箇所を数える。しかしながら石器の原材である黒曜岩の原産地を厳密に特定するには、いくつかの困難な問題点が指摘される。黒曜岩の原産地を特定する方法として現在行われているのは、各種の化学分析データを用いて、統計処理に基づいた確率論的な推論によって産地特定を行う方法が主流である。そのような方法をとる理由はいくつか挙げられるが、重要と思われるものを以下に挙げることにする。

その1つは、黒曜岩の原産地といわれている箇所が、黒曜岩岩体が直接に露出するところが少なく、礫層や崖錐堆積物の分布域であることが多い。他の1つの重要な理由は、遺跡から出土した黒曜岩製石器を非破壊で各種の化学分析、とくに蛍光X線分析に供することを求めることが通常であると言うことである。この場合、非破壊での分析精度について破壊して粒度を揃えた粉末試料の分析精度との厳密な検討が未だ不十分なままで残されている。

すなわち、黒曜岩が礫層や崖錐堆積物の構成礫として産出するが多い。このような産状をしめす黒曜岩の産地を二次原産地と呼んでいる。二次原産地の場合、黒曜岩礫供給源を単一の黒曜岩岩体に求めることが困難である。さらに軽石流堆積物やブロック火山砕屑岩流堆積物など、火山噴出物中に礫として黒曜岩がふくまれる場合には、その黒曜岩礫が異質礫あるいは類質礫なのか、本質礫なのかを区別する必要が生じる。従って、黒曜岩の原産地特定の方法として、統計処理を導入した方法を

¹⁾ 自宅：〒680-0945 鳥取県鳥取市湖山町南2丁目147-21

²⁾ 自宅：〒631-0806 奈良県奈良市朱雀4丁目6-15

³⁾ (株)ウエスコ：〒690-0047 鳥根県松江市嫁島町16-1

キーワード：黒曜岩 (obsidian), 化学組成 (chemical composition)

取ることが望ましいとされるのである。

以上のことから、黒曜岩製石器の化学分析結果に基づいた黒曜岩の原産地推定には、化学分析の精度はもちろんのこと、黒曜岩の原石の産状などにも十分に留意して行われるべきであることを認識する必要がある。

黒曜岩を原料とする石器を、どこで、どのような技術で製作したのか、また、黒曜岩の原産地はどこで、どのようにして原石を採取したのか — などは、人類史を明らかにする上で重要な課題である。しかしそれらの課題を究明する上で、最も基本的な問題が未解決のままに残されている。それは、黒曜岩岩体 — 溶岩あるいは岩脈 — の内部での化学組成変化がみとめられるか、どうかという問題である。また、1個の黒曜岩塊あるいは比較的大きな礫のどの部分をとってみてもほぼ均質な化学組成を示すであろうか。一般に黒曜岩はガラス質流紋岩の縁辺急冷相として生成したとの考えが受け入れられている。とすれば岩体内あるいは岩塊内での微量元素の分布が不均質である可能性が考えられる。黒曜岩岩体あるいは岩塊内部での化学組成変化の有無を問題にするのは、黒曜岩製石器の原料の産地を推定するための重要な基礎資料を提供することになるばかりではなく、この問題を無視しては、黒曜岩の原産地を特定することが困難となるからである。幸いにして、従来の研究では各原産地での化学組成の偏差は小さいと判断され、従って岩体や岩塊内での化学組成変化はほとんどないとの認識の上になって研究が進められている。しかしながら、黒曜岩岩体あるいは岩塊内部での有意な化学組成変化がみとめられるとすれば、大きな問題を提起することになり、ひいては黒曜岩製石器からの黒曜岩の原産地推定法に再検討をせまることにもなりかねない。したがって、黒曜岩岩体あるいは岩塊の内部の化学組成変化の有無を、是非とも明らかにする必要があると考える。

本論文は黒曜岩岩体が露出している原産地を選び、岩体内および岩塊内での化学組成変化の有無について、諸実験の結果に基づいて検討した結果をまとめたものである。黒曜岩原産地として選定したのは、静岡県中伊豆町カワゴ平、島根県隠岐郡五箇村久見、大分県東国東郡姫島村観音崎、長崎県佐世保市東浜淀姫および鹿児島県出水市日東の5箇所である。各原産地で、黒曜岩の産状を調査するとともに、岩体から系統的に試料を採取し、諸実験に供した。

筆者らのうち、川口は姫島・日東および九州全域を1998年度鳥取大学教育学部卒業研究の対象とした。さらに、久見については、それぞれ鎌田麗子(旧姓 油崎)、原 優理子(旧姓 小島)、伊藤真介が、鳥取大学教育学部卒業研究の対象とし、調査・研究を進めた。西田は、分析機器の使用の便宜をはかるとともに吉谷とともに本論文の草稿を検討した。

II 黒曜岩の産状と試料の採取

黒曜岩の原産地として選定し、系統的な試料の採取を行った5箇所の位置を図1に示した。以下にそれぞれの原産地での黒曜岩の産状などの概略を記述する。

(1) 静岡県中伊豆町カワゴ平

天城火山の側火山（荒牧・葉室，1977）とされているカワゴ平には、デイサイト質の溶岩流，火砕流堆積物など火山噴出物が分布している。火砕流堆積物のなかには，黒曜岩片をふくむデイサイト質軽石流堆積物もみとめられる。

カワゴ平付近の林道沿いの切り取り法面には黒曜岩の大規模な露頭が観察できる。この露頭で黒曜岩の試料を採取し，実験に供した。試料は黒曜岩の流理構造を考慮して岩体内での化学組成の差異の有無についての結果が得られるように配慮して採取した（図2）。

黒曜岩の外観上の特徴として以下の諸点が挙げられる。黒色で不透明，斜長石や石英の結晶を多数ふくむ。ガラス部は小粒の集合体状をなし，破断面はザラメ状となっている。全般に細かな割れ目が発達し，脆弱である。

カワゴ平溶岩流の噴出年代は， ^{14}C 法で $2,830 \pm 120$ 年 BP（倉沢：1972）とされ，埋蔵文化財関係者からは，カワゴ平の黒曜岩は石器の原材として利用されなかったとされている。

（2）島根県隠岐郡五箇村久見

隠岐群島には広範囲に鮮新統に属するアルカリ流紋岩である隠岐流紋岩が分布している。隠岐流紋岩は，溶岩，溶結凝灰岩をふくむ軽石流堆積物や降下火砕物などの噴出物からなる。隠岐流紋岩は随所に黒曜岩をふくむが，とくに五箇村久见到に分布する溶岩や岩脈には黒曜岩をふくむことが多く，良質の黒曜岩を産出することで知られている。

久見地区東方の日本海に臨む急崖には，アルカリ流紋岩とこれを貫くパーライト質の同質貫入岩とが発達する。アルカリ流紋岩溶岩は4枚みとめられ，下位から2枚目の溶岩の1露頭から黒曜岩試料を採取した（図3）。採取試料は，径2～15cmのパーライト球状塊中にふくまれている。パーライトの繊維状ガラスの長軸方向は，溶岩や黒曜岩にみられる流理の走向・傾斜とは高角で斜交する。

採取した試料はさらに黒曜岩を細かく分割し，球状の黒曜岩の中心部と縁辺部とで化学組成の違いがみとめられるかどうかを検討する実験試料とした（図4）。

（3）大分県東国東郡姫島村観音崎

国東半島北方の沖合いに浮かぶ姫島には，鮮新統および更新統の火山岩類が広く分布している。姫島西部の西浦地区と観音崎には黒曜岩をふくむ溶岩や，黒曜岩の岩脈が発達する。姫島産黒曜岩は色

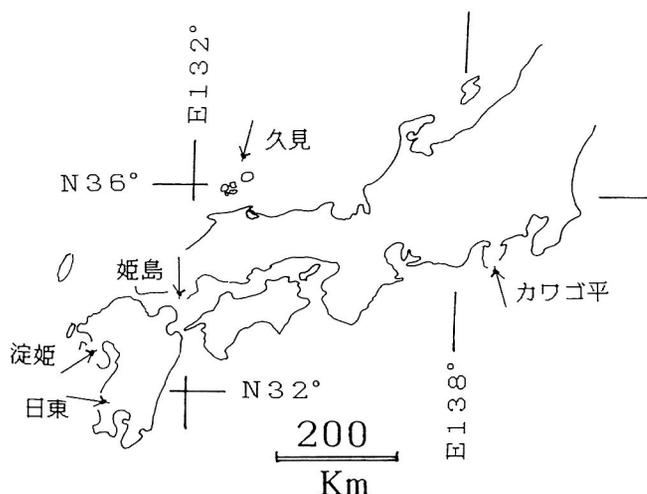


図1 黒曜岩試料採取地点
Fig. 1 Location of obsidian samples.

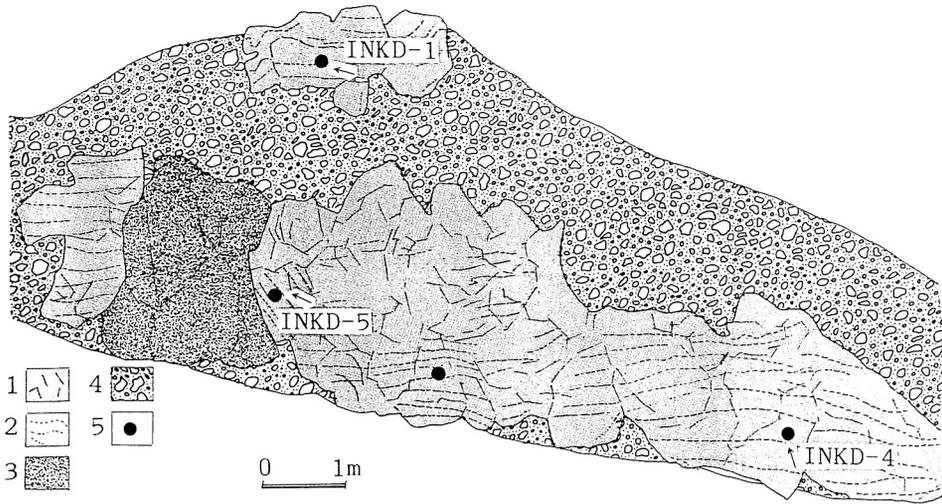


図2 伊豆半島・中伊豆町カワゴ平での林道にみられる黒曜岩溶岩の露頭
 1. 黒曜岩 4. 崖錐堆積物(被覆層)
 2. 黒曜岩にみられる流理構造 5. 分析用試料の採取ポイント
 3. 多孔質でガラス質の流紋岩

Fig. 2 The obsidian out-crop along the forest road at Kawago-daira, Nakaizu-cho, Izu Peninsula.

- | | |
|---------------------------|--|
| 1. Obsidian | 4. Debris |
| 2. Flow structure | 5. Sampling point of obsidian specimen |
| 3. Porous glassy rhyolite | |

調によって、灰黒色と灰白色のものに分けられる。前者は黒曜岩の岩脈を構成し、後者は溶岩にふくまれることが多い。さらに灰白色黒曜岩には、流理構造が顕著にみとめられる。いずれの黒曜岩にも晶子をふくむことが少なく、全体として表面がざらついており、吸湿性が大きいのが特徴の1つとなっている。

観音崎付近には、赤色の流紋岩溶岩を貫いて3本の黒曜岩の岩脈がみとめられる(図5)。このうちの1本の岩脈を選び、灰黒色黒曜岩の試料を採取した。試料採取は、岩脈内部での水平および垂直方向での化学組成の変化の有無を検討できるように配慮して行った。すなわち、A→B→C列は縁辺部から中心部へ、①→②→③列は下部から上部へとなるように試料採取をおこなった(図6)。

(4) 長崎県佐世保市東浜淀姫

佐世保市付近には中新統および鮮新統が広範囲に分布している。東浜に所在する淀姫社付近に黒曜岩が産出することは古くからよく知られていたが、近年まで黒曜岩の露頭が確認されないままに至っていた。1994年頃に淀姫社の背後の丘陵地が住宅用地として造成された際に、新設の道路の切り割り法面に黒曜岩礫をふくむ流紋岩の自破碎溶岩が露出した(図7)。1995年8月に吉谷がはじめてこの露頭を発見して予備調査を行った。1996年3月に鎌田・伊藤・原とともに淀姫社付近の詳細な地質調査を行った。その調査の結果、黒曜岩礫と観察されたものは、もともと流紋岩溶岩に球体ないし楕円体の礫状黒曜岩としてふくまれていたものであって、溶岩が流動中に自破碎する過程で礫状となっ

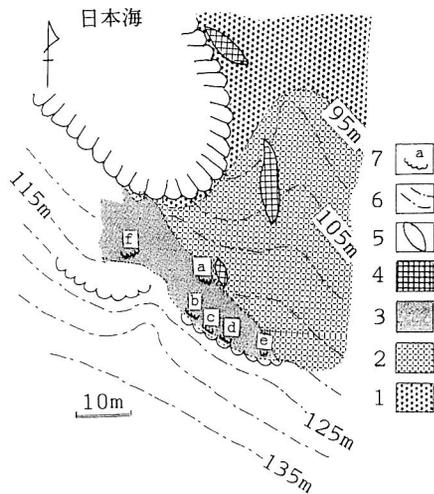


図3 久見での流紋岩類の分布状況
 1. 流紋岩溶岩Ⅰ 5. 流紋岩溶岩Ⅳ
 2. 流紋岩溶岩Ⅱ 6. 等高線(海拔高度)
 3. 流紋岩溶岩Ⅲ 7. 分析試料採取
 4. 黒曜岩岩脈ポイント

Fig. 3 The distribution aspect of rhyolite in Kumi, Oki Island
 1. Rhyolite lava I
 2. Rhyolite lava II
 3. Rhyolite lava III
 4. Obsidian dyke of specimen
 5. Rhyolite lava IV
 6. Contour line
 7. Sampling point

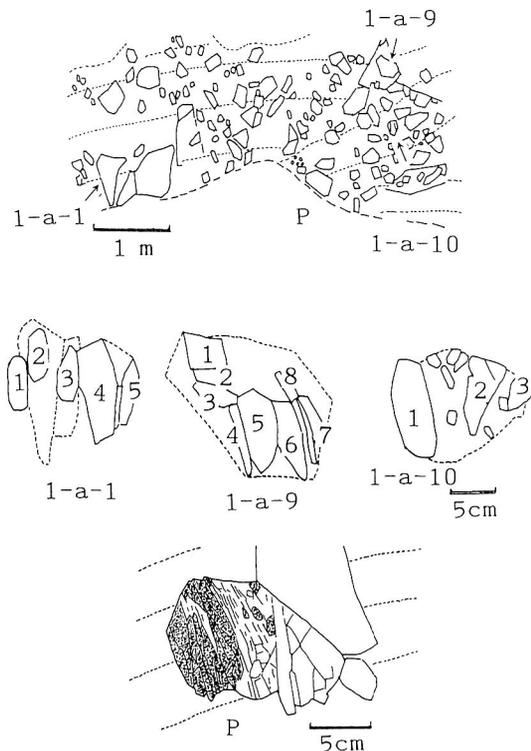


図4 分析試料採取 a ポイントでの試料位置と、分析試料の細片の試料番号

Fig. 4 Sampling point of specimen at "a" point and the specimen number.

たと結論づけられた。

流紋岩溶岩は、ガラス質流紋岩の乾陸での自破碎溶岩であって、不明瞭ながら流理構造がみとめられる。黒曜岩礫は随所にふくまれ、いずれも不規則な割れ目によっていくつかの小岩片の集合体のような形状をなす。復元すると長径 10~25cm の球ないし楕円体の岩塊であったと推測される。これらの黒曜岩塊のいくつかを採取し、岩塊内での化学組成の相異の有無を検討する試料とした。

(5) 鹿児島県出水市日東

鹿児島県北部には中新統が発達しているが、出水市東部の日東開拓地に流紋岩溶岩の大きな露頭が見い出された。この流紋岩溶岩の地質年代は明確ではないが、恐らく上部中新統に属するものと推定される。

流紋岩溶岩には流理構造が顕著に発達し、黒曜岩がブロック状、小岩塊状に随所にふくまれる。黒曜岩塊が集中的にふくまれている箇所では、熱水変質作用を顕著に受けて母岩である溶岩は完全にモンモリロナイトをともなうカオリン鉱物などの粘土化をうけている。黒曜岩は晶子を比較的多くふくむが、透明度はやや高い。全般的に軟質である。

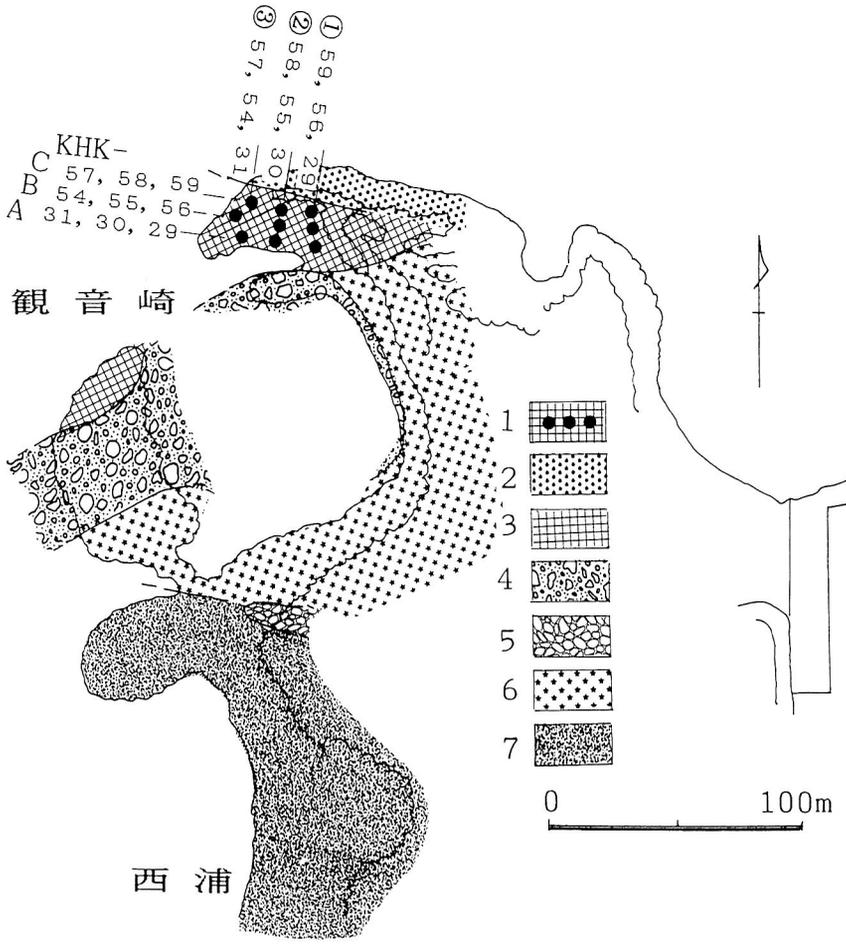


図5 姫島・観音崎付近の地質図と分析試料の採取ポイント及び試料番号

- | | |
|----------------|-------------|
| 1. 分析試料の採取ポイント | 5. 崖堆積物 |
| 2. 黒曜岩岩脈Ⅱ | 6. 白色流紋岩岩脈 |
| 3. 黒曜岩岩脈Ⅰ | 7. 赤色流紋岩溶岩Ⅰ |
| 4. 火道角礫岩 | |

Fig. 5 The geological map of Kannon-zaki in Himeshima and sampling point and number of specimen.

- | | |
|---------------------|-------------------------------------|
| 1. Sampling point | 5. Talus deposits |
| 2. Obsidian dyke II | 6. White rhyolite dyke |
| 3. Obsidian dyke I | 7. Reddish coloured rhyolite lava I |
| 4. Vent breccia | |

流紋岩溶岩の露頭の概略および試料採取位置を図8に示した。試料の一部は、ダイヤモンドカッターで小岩片に分割し、それぞれについても分析を行った(図9)。

以上の5箇所の黒曜岩原産地では多数の試料を採取したが、各種の実験に供した試料は以下のもので、試料番号を付して示した。

カワゴ平産黒曜岩試料 (INKD)

観音崎産黒曜岩試料 (KHK)

4-a~d

5-a

久見産黒曜岩試料 (OGK)

I-a-1-1~5

I-a-9-1~8

I-a-10-1~3

54~59

淀姫産黒曜岩試料 (YO)

2-4-b・d・f

6-1-a~d

日東産黒曜岩試料 (KSN)

3-A~H

III 実験および実験結果

(1) 試料の調整

- 1: ダイヤモンドカッターで試料をほぼ2分し, 1つは後日に再検討が必要となる場合のことを考慮し, かつ完全標本としての意味をもふくめて残すことにした。他の1つは実験試料とした。
- 2: 実験試料からさらに岩石薄片用のチップをダイヤモンドカッターで切断して残したあと, ハンマーで砕き, 碎片から可能な限り水和層を除去した。
- 3: 水和層を除去した細片試料を蒸留水に浸し, 高周波洗浄器で付着した鉄, その他の汚れを丹念に取り除いた。
- 4: 高周波洗浄後の試料を約60°Cで恒温乾燥機で乾燥した。
- 5: 乾燥後の細片試料のうち, 厚さ1mm程度の平滑な面を持つ小チップをEPMAを用いた分析用試料として残した。その他はタングステンカーバイト製の乳鉢・乳棒を用いて粉碎した。
- 6: 粉碎試料を篩別し, 100~200および200~300メッシュの2種の粉末試料に調整した。
- 7: 100~200メッシュの粉末試料は, 屈折率測定に用いた。
- 8: 200~300メッシュの粉末試料は, 波長分散型粉末X線装置(WDX)を用いた分析に供した。粉末試料を10tプレス器を用い, 厚さ3~5mmの塩化ビニル性錠剤型のリング試料を作製し, これをWDX分析に用いた。
- 9: WDX分析に用いたリング試料は, さらにエネルギー分散型蛍光X線分析装置(EDX)による分析に用いた。

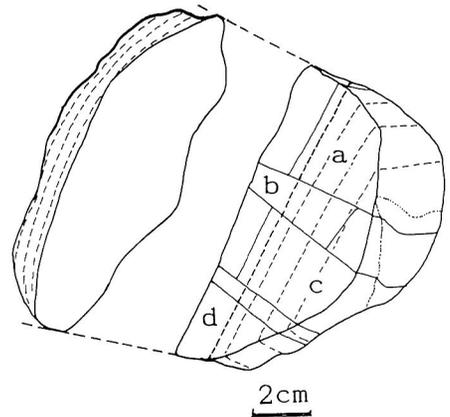
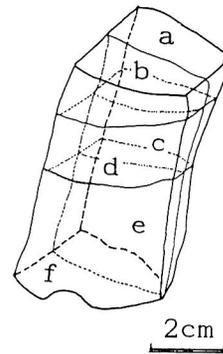


図6 採取した黒曜岩の細片化した分析試料及び試料番号

Fig. 6 The fine specimen from sampled obsidian and their specimen number.

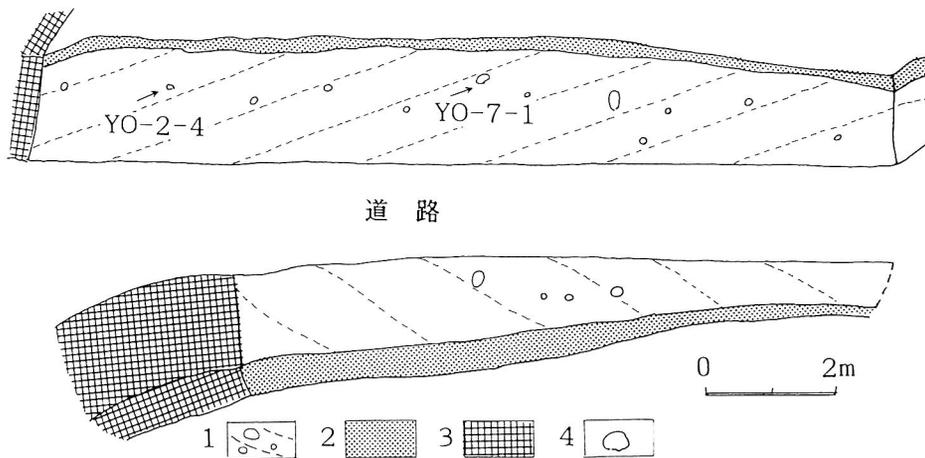


図7 佐世保市東浜淀姫社裏の道路の切割りに露出する自破碎流紋岩溶岩

1. 黒曜岩礫をふくむ流紋岩溶岩の流理構造 3. コンクリート擁壁
2. 表土 4. 黒曜岩礫（一部を採取）

Fig. 7 The autobrecciated rhyolite lava distributing along the road-side at Yodohime - shya, Sasebo City

1. The flow structure of rhyolite lava including obsidian breccia
2. Soil
3. Defence
4. Obsidian breccia

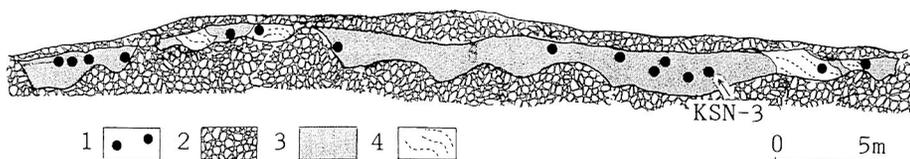


図8 出水市日東開拓地に露出する黒曜岩をふくむ流紋岩溶岩の露頭

1. 分析試料の採取ポイント 3. 粘土化の顕著な部分
2. 被覆層（表土など） 4. 流理構造
- Fig. 8 The out-crop of rhyolite including obsidian at Nitto, Izumi City.
1. Sampling point of specimen 3. Hydrothermal alteration part
2. Soil 4. Flow structure

表1 波長分散型蛍光 X 線分析における測定条件

Table 1 The measurement condition of wave dispersion X-ray analysis.

	N a	K	C a	F e	R b	S r
スペクトル(Å)	11.910	3.742	3.359	1.937	0.927	0.877
2θ値(°)	55.200	69.980	61.975	57.525	26.625	25.150
測定時間(sec)	60	60	60	40	40	40
分光結晶	T A P	G e	G e	L i F	L i F	L i F
検出器	P C	P C	P C	S C	S C	S C

10：200～300 メッシュ粉末試料は、別途 50mg 程度を秤量し、放射化分析の試料とした。なお、放射化分析に供した試料は分析後に廃棄した。

11：粉末試料の残余やリング試料、黒曜岩の細片試料等はすべて試料番号を付して保管している。

(2) 実験方法の概略

波長分散型蛍光 X 線分析装置 (WDX) は、奈良教育大学・三辻研究室の理学電機 3270 型を用いた。分析した元素は Na, K, Ca, Fe, Rb, Sr の 6 元素である。測定条件は表 1 に示した。なお印加電圧・電流はそれぞれ 50KV, 50mA である。標準試料として花こう閃緑岩標準試料 (JG-1) を用いた。分析した黒曜岩試料の特性 X 線強度の JG-1 の特性 X 線強度に対する比を求め、その値を標準化値とした。この標準化値をもとに、各元素について求めておいた検量線を用いて各元素の酸化物の含有量を算出した。

EPMA は、奈良教育大学・西田研究室に設置されている OXFORD-ISLS を使用して分析を行った。測定条件は加圧電圧：20KV, フィラメント電流：100 μ A, 照射電流： 0.65×10^{-9} A, 分析倍率 200 倍, 測定総カウント数：630K カウントである。分析した元素は Si, Al, Fe, Mg, Ca, K, Ti の 8 元素であった。標準試料として星ヶ塔産黒曜岩など化学組成が既知の試料を用い、8 元素の酸化物重量%を求めた。Fe については、Total Fe_2O_3 ($T-Fe_2O_3$) として求めた。エネルギー分散型蛍光 X 線分析装置 (EDX) は、京都大学原子炉実験所の薬科研究室に設置されており、これを用いて分析を行った。この装置は励起用の ^{55}Fe , ^{109}Cd の放射性同位体元素を Si (Li) 半導体検出器と組合せたものとなっている (薬科・東村, 1983)。測定した元素は Fe, Mn, Ba, Rb, Sr, Zr, Y の 7 元素である。黒曜岩試料として、WDX 分析に用いたプレスしたリング試料を使用した。標準試料は JG-1 のリング試料 (粉末) を用いた。

放射化分析は、京都大学原子炉実験所の諸施設を用いて行った。これは、共同利用研究課題として行ったものである。黒曜岩の粉末試料を正確に秤量してポリエチレン製袋に封入し、分析を行った。分析した元素は ^{46}Sc , ^{59}Fe , ^{140}La の 3 元素であって、標準試料として JG-1 の粉末試料を用いた。

屈折率測定は、奈良教育大学・西田研究室に設置されている京都フィッシュントラック製の温度変化型屈折率測定装置 (RIMS 86) を用いて行った。測定は 1 試料について 30 粒ほどについて行った。測定誤差は $\pm 0.2\%$ である。

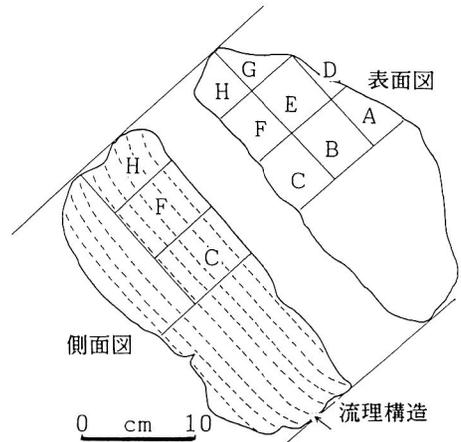


図 9 日東地区で採取した黒曜岩の細片化した分析試料と番号

Fig. 9 The fine specimen from the obsidian sampled at Nitto, and the specimen number.

(3) 実験結果について

実験結果は WDX による分析結果を主体にして記述し、他の実験結果は必要に応じて検討することにする。なお、WDX 分析以外の結果については別稿にてまとめて公表する予定である。WDX 分析結果を表 2 に示した。

カワゴ平産黒曜岩試料、INKD-5、INKD-4、INKD-1 の順に溶岩の下部→上部での位置を示している。Na₂O、CaO、Sr は下部→上部の方向に減少の傾向を示す。これに対して、K₂O および Rb は下部→上部へ増加の傾向を示す（表 3）。WDX 分析の誤差範囲は±5%である。これをやや大きく越える分析値の差異がみとめられるのは、CaO、Rb および Sr である。INKD-4 試料は a~d の 4 部分に分割して分析されたが、1 つの試料中での化学組成の測定誤差範囲を超える有意な差異はみとめられなかった。

久見産黒曜岩試料は、OGK-1、OGK-10、OGK-9 の順に溶岩の下部→上部にむかう位置で採取されている。分析値の差異が分析誤差範囲を超えるものは、露頭 I-a での下部から中央部へ、10.4%の増加を示した Na₂O のみである。各試料は塊状黒曜岩の内部における化学組成変化を検討するために、さらに細かく分割し、それぞれの分割片の分析を行った（図 4）。なお、溶岩内部での化学組成変化を検討するために用いた分析値は、各塊状試料での細片試料のうちの核部の分析値を用いた。すなわち、OGK-I-a-1-3、OGK-I-a-9-5、OGK-I-a-10-2 である。

OGK-I-a-1 試料では、核部→縁辺部にむかって Na₂O 含有量が 5.1~9.1%も増加する（表 3）。他の酸化物や元素に関しては、測定誤差範囲内の変化を示しただけであった。

姫島・観音崎の黒曜岩岩脈から系統的に採取した試料の WDX 分析値から、岩脈の垂直方向での分析値の変化について検討した。表 3 に示されているように、測定誤差範囲を超える分析値の変化がみとめられたのは、KHK-56→NHK-54 での Na₂O の 6%増加のみであった。垂直方向にも水平方向にも、WDX 分析値の測定誤差を超える変化はみとめられなかった。

淀姫産黒曜岩については、2 つの塊状黒曜岩をいくつかの細片に分割し、それぞれの細片の分析を行った。YO-2-4 および YO-7-1 試料とともに、塊状試料内での WDX 分析値の有意な変化はみとめられなかった。

目東産黒曜岩の分析試料は KSN-3 のみであるが、この塊状試料は 8 個の細片に分割され（図 9）、それぞれの細片部分の分析値が求められた。WDX による分析値の挙動を見ると、測定誤差範囲を超えた変化がみとめられたのは、KSN-3-C→KSN-3-H にむかっての Na₂O の増加（9.4%）のみである。

以上、黒曜岩原産地の 5 箇所から採取した試料について、黒曜岩岩体および岩塊内部での化学組成の変化があるか否かを WDX による分析値から検討した。その結果、カワゴ平産黒曜石では Na₂O、CaO、Rb、Sr にかなりの変化がみとめられた。久見産黒曜岩では Na₂O に、姫島・観音崎産黒曜岩では Na₂O にやや大きな変化がみとめられた。淀姫産黒曜岩では顕著な分析値の変化みとめられず、

表2 波長分散型蛍光 X 線分析結果
(酸化物, 全鉄は重量%で, 他は ppm 濃度で示した)

Table 2 The result of chemical analysis by means of wave dispersion X-ray analysis. (The contents of oxides and total Fe are shown in wt % and the others are in ppm.)

	試料番号	Na ₂ O	K ₂ O	CaO	Total Fe	Rb (ppm)	Sr (ppm)
カワゴ平	INKD-1	3.316	2.399	2.086	1.843	70	283
	INKD-4-a	3.457	2.369	2.246	1.963	65	295
	INKD-4-b	3.419	2.364	2.226	1.825	67	293
	INKD-4-c	3.491	2.330	2.398	1.899	65	305
	INKD-4-d	3.404	2.382	2.206	1.835	67	293
	INKD-5-a	3.491	2.288	2.510	1.838	63	328
久見	OGK-I-a-1-1	3.735	4.711	0.558	2.049	214	0
	OGK-I-a-1-2	3.898	4.907	0.554	2.051	213	0
	OGK-I-a-1-3	3.635	4.628	0.546	2.050	211	0
	OGK-I-a-1-4	3.925	4.782	0.560	2.049	212	0
	OGK-I-a-1-5	4.001	4.805	0.562	2.049	213	0
	OGK-I-a-9-1	3.989	4.789	0.563	2.046	214	0
	OGK-I-a-9-2	3.999	4.810	0.562	2.049	212	0
	OGK-I-a-9-3	3.972	4.803	0.558	2.047	214	0
	OGK-I-a-9-4	4.069	4.818	0.565	2.044	212	0
	OGK-I-a-9-5	4.014	4.821	0.559	2.049	213	0
	OGK-I-a-9-6	3.966	4.810	0.558	2.039	211	0
	OGK-I-a-9-7	4.025	4.807	0.560	2.057	212	0
	OGK-I-a-9-8	3.984	4.793	0.560	2.039	212	0
	OGK-I-a-10-1	3.979	4.789	0.561	2.053	211	0
	OGK-I-a-10-2	3.956	4.825	0.554	2.062	212	0
OGK-I-a-10-3	3.928	4.801	0.565	2.050	211	0	
淀 姫	Y0-2-4-b	4.155	3.991	0.919	1.548	135	121
	Y0-2-4-d	4.168	3.986	0.915	1.553	136	121
	Y0-2-4-f	4.230	3.991	0.915	1.558	136	121
	Y0-7-1-a	4.133	3.961	0.917	1.571	137	122
	Y0-7-1-b	4.152	3.978	0.921	1.563	139	123
	Y0-7-1-c	4.177	3.961	0.911	1.566	136	122
	Y0-7-1-d	4.143	3.961	0.913	1.553	139	122
姫 島	KHK-29	3.847	3.534	0.509	1.169	98	67
	KHK-30	3.931	3.555	0.511	1.162	97	66
	KHK-31	3.843	3.500	0.511	1.187	97	67
	KHK-54	4.059	3.568	0.513	1.152	98	70
	KHK-55	3.959	3.542	0.519	1.167	97	70
	KHK-56	3.828	3.500	0.509	1.172	97	69
	KHK-57	3.943	3.632	0.511	1.149	100	70
	KHK-58	3.990	3.560	0.525	1.149	99	69
	KHK-59	3.893	3.534	0.509	1.162	98	68
日 東	KSN-3-A	2.708	4.930	0.865	1.223	206	118
	KSN-3-B	2.652	4.908	0.885	1.261	205	119
	KSN-3-C	2.699	4.908	0.883	1.241	205	124
	KSN-3-D	2.702	4.925	0.875	1.241	206	120
	KSN-3-E	2.752	4.934	0.881	1.233	207	120
	KSN-3-F	2.699	4.900	0.899	1.258	205	122
	KSN-3-G	2.730	4.921	0.889	1.261	205	124
	KSN-3-H	2.955	4.930	0.881	1.258	206	122

表3 黒曜岩の岩体、岩塊内での化学分析値に基いてのそれぞれの変化について

Table 3 The chemical composition difference found in obsidian bodies and gravels as for some elements, based on the chemical analysis.

	試料番号	Na ₂ O	K ₂ O	CaO	T-Fe ₂ O ₃	Rb	Sr
上部	INKD-1		↑+4.8%			↑+11.1%	
	INKD-4						↓+14.1%
下部	INKD-5	↓+5.3%		↓+20.3%			
上部	OGK-1-a-9-5	↓+1.4%	↑+4.1%	↓+2.3%	↓+0.6%		
	OGK-1-a-10-2	↑+10.4%		↑+0.9%			
下部	OGK-1-a-1-3						
縁辺部	OGK-1-a-9						
核部		↓+2.1%	↓+0.6%				
縁辺部	OGK-1-a-10	↑+4.9%		↑+1.9%			
核部			↓+0.7%		↓+0.4%		↓~+10.5%
縁辺部	OGK-1-a-1	↑+5.1%	↑+3.7%	↑+2.8%			
核部		~+9.1%					
縁辺部	YO-7-1-a			↑+0.6%	↑+1.1%	↑+0.7%	
	YO-7-1-b						
核部	YO-7-1-c	↓+1.0%			↑+0.8%		
縁辺部	YO-7-1-d	↑+0.8%		↓+0.9%		↓+2.2%	
縁辺部	YO-2-4-b		↑+0.1%	↑+0.4%			
核部	YO-2-4-d	↓+0.3%			↓+0.3%	↓+0.7%	
縁辺部	YO-2-4-f	↓+1.2%	↓+0.1%		↓+0.3%		
上部	KHK-58	↑+1.5%	↑+0.5%	↑+2.7%			
	KHK-55				↓+1.5%		
下部	KHK-30		↓+0.3%		↑+0.4%		
縁辺部	KHK-54	↑+6.0%	↑+1.9%	↑+0.7%		↑+1.0%	↑+1.4%
	KHK-55						
核部	KHK-56				↓+1.7%		
縁辺部	KSN-3-A	↑+2.1%	↑+0.4%				
核部	KSN-3-B			↓+0.3%	↓+3.1%		
縁辺部	KSN-3-C	↓+1.7%		↑+0.2%	↑+1.6%		↓+5.0%
縁辺部	KSN-3-D						
核部	KSN-3-E	↓+0.8%	↓+0.1%				
縁辺部	KSN-3-F	↑+1.9%	↑+0.6%	↓+2.7%	↓+2.0%		
縁辺部	KSN-3-H	↑+9.4%	↑+0.6%		↑+1.3%		
核部	KSN-3-F			↓+2.0%			
縁辺部	KSN-3-C		↓+0.1%	↑+1.8%			

すべて測定誤差範囲内での変化であった。最後に日東産黒曜岩に岩塊内での化学分析値に大きな変化がみとめられたのは Na_2O であった。なお、EDX 分析値や EPMA 分析値についてもほぼ同様の結果が得られている。屈折率測定値には、ほとんど差異がみとめられなかった。

IV 考察およびまとめ

WDX 分析を行った元素は、Na, K, Ca, T- Fe_2O_3 , Rb, Sr である。これらの元素のうちで共生関係が比較的密接と考えられるのは、Na, K とりわけ K と Rb, Ca と T- Fe_2O_3 , とくに Ca と Sr である。これらの関係は黒曜岩原産地ごとの化学的特性を考慮してもみとめられる (表 2)。

カワゴ平、久見、日東の 3 箇所では、黒曜岩の露頭は、顕著な熱水変質作用を受けており、その結果、カオリン鉱物を主体とし、モンモリロナイトを伴う粘土鉱物が生成している。熱水変質作用を受けた際に、黒曜岩から溶脱する成分は、熱水系の P-T 条件など物理化学的条件によって異なるが、熱水系が酸性で比較的低温 (100~200°C 程度) と考えれば、Na, K, Ca であって、とくに Na, Ca が多いと考えられる。さらに熱水変質作用を受けた岩石は一般に Rb が増加し、Sr が減少することは良く知られていることである。

風化作用等によって水和層が黒曜岩に形成されるが、この水和層でも成分の溶脱が考えられる。分析に供した黒曜岩試料は可能な限り水和層を除去する調整を行ったものであるが、化学分析値を検討すると、熱水系による熱水変質作用の影響は、風化作用による水和層の形成よりもより核部まで及んでいる可能性も指摘される。

カワゴ平産黒曜岩試料の WDX 分析値を検討すると、溶岩の下部→上部で増加するのは Rb, また同方向で減少するのは Na_2O , CaO, Sr である。これは、分析試料の水和層の除去が不十分であったことによるとも考えられるが、ほかに溶岩全般におよぼした熱水変質作用の影響も考慮されなければならないかも知れない。

カワゴ平産黒曜岩と同様に熱水変質作用を受けて、粘土化帯の形成がみとめられる久見および日東産の黒曜岩試料の WDX 分析値を検討すると、カワゴ平産黒曜岩の分析結果とは異なる結果が得られた。すなわち、久見でのアルカリ流紋岩溶岩の露頭 I-a では、上部および下部で Na_2O , K_2O , CaO が減少し、とくに下部で Na_2O 含有量が中央部のそれに比して 10.4% も減少している。ところがおなじ露頭の黒曜岩試料 OGk-I-a-1 および OGK-I-a-10 (いずれも細片試料) の WDX 分析値では、核部→縁辺部の方向に Na_2O , K_2O , CaO とともに増加している (表 3)。なかでも Na_2O は最大で a-1 試料で 9.1%, a-10 試料で 4.9% の増加をしめしている。日東産黒曜岩試料のうち、KSN-3 試料の細片試料、H・F・C の相互の関係をみると、WDX 分析結果をみるかぎり、核部から一方の縁辺部へむかって Na_2O が 9.4% 増加する。以上のことから粘土化帯を伴う熱水変質作用を全般的に受けた黒曜岩は、WDX 分析結果からみると Na_2O および一部の全鉄の分析値に測定誤差範囲を越える差異が、岩体および岩塊内にみとめられることが指摘される。この傾向は試料調整

の際に注意深く水和層を除去しても現れるものと考えられる。

一方、粘土化帯もほとんどみとめられず、また顕著な熱水変質作用を受けていないと判断される姫島・観音崎産黒曜岩からの試料についての WDX 分析値は、岩体内での変化のほとんどが測定誤差範囲のものであった(表3)。ただ、KHK-54, 55, 56 での Na_2O 分析値は、岩脈の核部→縁辺部の方向に6%増加していることがみとめられる。

粘土化帯を伴わず、熱水変質作用もほとんど受けていないと考えられる淀姫産黒曜岩は、顕著な風化作用を受けている。核部→縁辺部の方向に Na_2O は YO-7-1 では1~0.8%の減少、YO-4-2 では片方の縁片部にむけて1.2%の増加と、傾向は一定していない。他の元素についても同様である(表3)。

熱水変質作用あるいは風化作用のいずれを受けているかどうかにかかわらず、本論文で対象とした黒曜岩の各元素の含有量の変化の傾向を見ると、変化量の大きい順は大略的には Na_2O 、 CaO 、 K_2O 、 $\text{T-Fe}_2\text{O}_3$ である。一方、微量元素である Rb、Sr についてみると、熱水変質作用を顕著に受けている場合に Sr 含有量の変化が大きい傾向にあり、Rb の変化量は Sr のそれに比して小さい。しかし、変化の方向性には規則性がみとめられない。ただ、Sr の変化方向は、 Na_2O の変化方向とほぼ一致するようである(表3)。

伊豆半島・カワゴ平、隠岐・久見、佐世保市東浜・淀姫、姫島・観音崎および出水市・日東に産出する黒曜岩について、岩体内および岩塊内での元素組成の変化を、波長分散型蛍光 X 線分析法(WDX)による分析値に基づいて検討した。その結果、構成元素のほとんどは変化量が WDX 分析の測定誤差範囲内であった。しかしながら、顕著な風化作用や粘土化帯を伴う熱水変質作用を受けている場合には、分析測定誤差範囲を越える変化量がみとめられる場合がある。とくに Na_2O 、Sr にその傾向が顕著である。このような場合には、分析値の偏差に注意して綿密な検討を加える必要がある。

WDX 分析によって得られたデータは、黒曜岩の岩体あるいは岩塊内での構成元素の相異が測定誤差範囲内のものであることを示している。したがって、黒曜岩製石器の WDX 分析による黒曜岩の原産地推定が十分に可能であると結論される。WDX 分析の測定誤差範囲は±5%を最大とし、その範囲内での誤差は正規分布をなすものとする。仮に WDX 分析値の偏差が測定誤差範囲を越える場合は、分析データとして使用することを避けなければならない。また、黒曜岩の一次原産地の状況をよく把握し、風化作用あるいは熱水変質作用を顕著に受けているか、どうかについての情報を得ておく必要がある。なお、黒曜岩の構成元素、とりわけ微量元素のエネルギー分散型蛍光 X 線分析(EDX)や放射化分析の有効性と限界についての検討は、別稿で行う予定である。

謝 辞

黒曜岩の分析にあたり、三辻利一教授(現・大谷女子大)、藁科哲男博士・中野幸広技官(京都大

学原子炉実験所)には機器の使用の便宜をはかっていただいた。また、鳥取大学の卒業研究として調査・分析作業に従事した諸氏や埋蔵文化財担当の自治体関係者の方がたにお世話になった。以上の方がたに謝意を表する次第である。なお、この研究は、京都大学原子炉実験所の共同研究として行った。

文 献

- 荒牧重雄・葉室和親 (1997). 東伊豆単成火山群の地質, 東京大学震研彙, 52, 235-278
- 倉沢 一 (1972). 伊豆半島の火山・火山岩. 「伊豆半島」, 155-184. 東海大学出版会刊
- 興水達司・戸村健司・河西 学・吉川和男 (1994). 中部・関東地方の遺跡出土黒曜石の原産地－山梨県の遺跡出土黒曜石の原産地推定例－. 帝京大学山梨文化財研究所研究報告, 5, 113-128.
- 鈴木正男 (1969). フィッシュトラック法による黒曜岩の噴出年代とウラン濃度の測定 (第1報)－石器時代黒曜石製石器の原産地推定に関する基礎的研究－. 第四紀研究, 第8巻, 第4号, 123-130.
- 東村武信 (1980). 考古学と物理科学. 学生社刊.
- 藁科哲男・東村武信 (1983). 石器原材の産地分析. 考古学と自然科学, 16, 59-89.

(2002年10月1日受付, 2003年11月6日受理)

On difference of chemical composition found in any-part of obsidian body and gravel

Akihiko YOSHITANI¹⁾, Shiro NISHIDA²⁾ and Yu KAWAGUCHI³⁾

1) Home, 147-21 Minami 2 Chome, Koyama-cho, Tottori City, Tottori 680-0945, Japan

2) Home, 6-15 4Chome, Sujaku, Nara City, Nara 631-0806, Japan

3) WESCO Co., 16-1 Yomeshima-cho, Matsue City, Shimane 690-0047, Japan

In the latest year, many Palaeolithic sites have been excavated in Japan. We can recognize many kinds of stone as the raw material of stone implements from the sites due to such excavation. Among these stone implements, obsidian ones are especially important. In usual, obsidian source points are estimated by the physical and chemical analyses. Such examination is very important, because the obsidian net-works will be able to clarify in Palaeo- and Neolithic age.

However, if there are some-what difference chemical composition in any-part of obsidian body and gravel, the source points of obsidian can not be estimated exactly.

In this paper, as a fundamental examination, such difference of the chemical composition of obsidian based on the wave dispersion X-ray analysis will be described.

We come to the conclusion that the chemical difference found in any-part of obsidian body and gravel is recognized within $\pm 5\%$ range except for Na_2O .