

石油地質学からみた遺跡出土アスファルトの原産地推定

氏家 良博¹⁾・相澤 武宏¹⁾・川村 啓一郎¹⁾・安田 創²⁾・上條 信彦²⁾

●キーワード：アスファルト (asphalt), 原産地 (place of origin), 石油 (petroleum), ケロジェン (kerogen), 有機熟成 (organic maturation), 石油地質学 (petroleum geology)

1. はじめに

アスファルトは、原油中の軽質分及び潤滑油留分を取り除いた残油で、黒色粘着性の常温で半固体状の物質と定義されている(石油学会：2005)。アスファルトは、高い粘性と撥水性を有し、熱を加えると容易に融解する性質を持つため、有史以前から接着剤、防腐剤、防水剤などに使用されてきた(Connan et al.：2006)。

天然アスファルトが数多く産出する中東の死海地域では、アスファルトに含まれる飽和炭化水素化合物・芳香族化合物・極性化合物(レジン・アスファルテン)の全体組成、 δD や $\delta^{13}C$ 等の同位体組成、バイオマーカーの特性を用いて、遺跡から出土するアスファルトの原産地推定が試みられてきた(例えば、Connan et al.：1992, Connan and Nissenbaum：2004)。

日本でも東北地方を中心に、北は北海道の音江遺跡から南は奈良県の橿原遺跡まで広い範囲の縄文遺跡からアスファルトが出土している(安孫子：1995)。北海道から東北地方にかけて分布する縄文遺跡から出土するアスファルトについては、バイオマーカーやパラフィン成分の分子量分析(小笠原：1999)、イオン化質量分析やガスクロマトグラフィー質量分析(小笠原・阿部：2007；Kato et al.：2008)が行われ、原産地推定が試みられてきた。

アスファルト、原油、天然ガスなどの炭化水素類の生

成は、地下数千mの深部で数百万年～数千万年の長い時間を経て、「有機熟成」(図1)と呼ばれる複雑な化学反応の結果生まれてくるものである。生物はその死後、海底や湖底に運搬され、その過程で生物体を構成する有機物は微生物分解や加水分解を受ける。嫌気的環境においては、有機物の分解があまり進行せず、単量体等となって残存する。残存する有機物は泥や砂とともに埋没作用を受け、徐々に地下深部へと運ばれてゆく。その過程で有機物は重合・縮合等の反応によりお互いに結合するようになり、やがては巨大な有機化合物、ケロジェン(kerogen)を形成するようになる。土壌中に含まれる腐植物質はケロジェンの前駆物質である。さらに埋没が進行すると、地下の温度が上昇し、ケロジェンは熱分解を受けるようになり、初めに H_2O や CO_2 を放出するようになる。埋没がさらに進むと、ケロジェンは炭化水素も放出するようになり、ケロジェンは炭素100%からなる石墨へと変化してゆく。ケロジェンから放出された炭化水素が岩石中を移動し、集積したものが石油鉱床、いわゆる油田やガス田である(Tissot and Welte：1984)。

この様にしてケロジェンから生成する炭化水素類の物理・化学的特徴を決定づけるものは、ケロジェンの起源となる有機物(生物の種類と組織)と地下で受けた熱履歴(温度と時間)である。

弘前大学大学院理工学研究科有機地質学研究室(氏家研究室)では、遺跡検出アスファルトの原産地を推定す

¹⁾ 弘前大学大学院理工学研究科 〒036-8561 青森県弘前市文京町3

²⁾ 弘前大学人文学部 〒036-8560 青森県弘前市文京町1

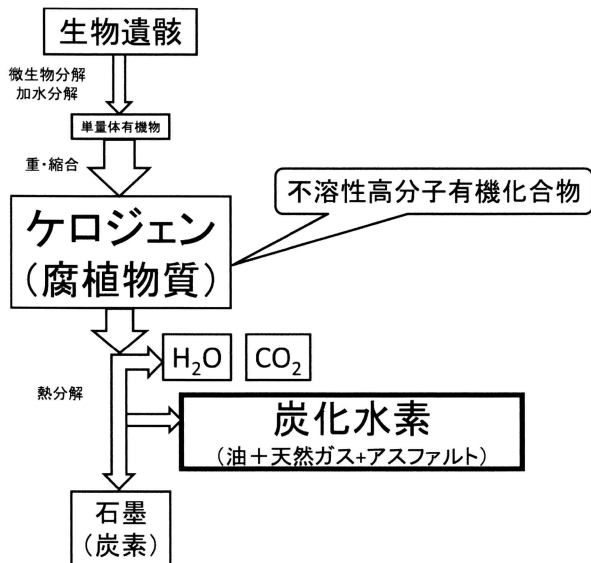


図1 有機熟成のプロセス
Fig.1 Organic maturation process

るため、元素組成とマセラル組成から起源有機物の推定を、反射率から熱履歴の解明を行っている。これまでに、青森県を中心に東北地方・北海道の縄文遺跡から出土するアスファルトについて、その分析結果を用いた原産地推定を行ってきた（氏家：2013，氏家・伊藤：2012，氏家ほか：2010，2011，2012）。本稿では、遺跡検出アスファルト試料のこれまでの分析結果をまとめるとともに、原産地推定のための傾向を検討したい。

2. 試料

分析対象は北海道，青森県，秋田県，岩手県の21遺跡23試料である（図2・表1）。天然アスファルトを産出することで有名な秋田県豊川油田をはじめ産油地帯は、東北の日本海沿岸から石狩低地帯にかけて分布する。遺跡検出のアスファルトは、この産油地帯から外れた岩手県から神奈川県太平洋沿岸域でも検出されている。これらの地域では、石鏃の基部や銚頭などの骨角器，土器や土製品の割れ面などにアスファルトが付着している例があることから、主に接着剤として用いられたとみられる。分析では、この太平洋沿岸域のうち、特に出土例の多い岩手県の試料を含めて検討した。試料の時期は縄文時代前期後葉～晩期前葉であり、中期後葉から後期の資料が多い。これは、アスファルト塊の検出例がこの時期に増加することと関連する。分析の一部は破壊分析であるため、剥落物などの文化財としての価値を損なわない

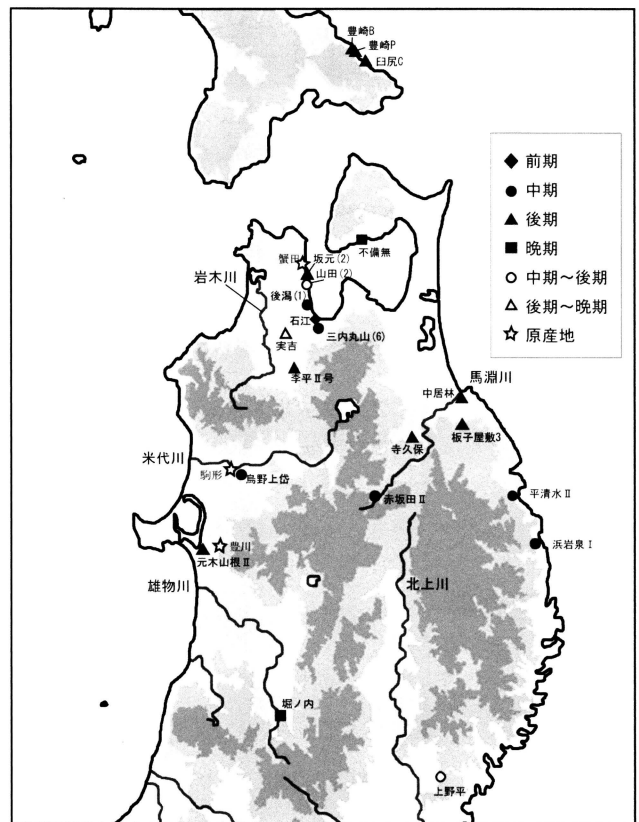


図2 アスファルト分析試料と主な遺跡および油田の位置
Fig.2 Map of the archaeological sites and oil wells from where asphalt samples were collected

程度の試料を採取した。試料分析に際しては、6機関より試料提供の協力を賜った。

3. 分析方法

3.1. アスファルトのブリケット作成

3.1.1. 試料の包埋

反射顕微鏡観察を行うために、ビューラー社製エポキシ系常温硬化樹脂エポキユアーを用いて、ブリケット（包埋試料）を作成する。まずエポキユアーの主剤(20-8130-032)と硬化剤(20-1832-008)を、主剤：硬化剤=5：1の重量比で静かに混ぜ合わせる。次に観察が可能な面積が1cm²程度になるようアスファルト試料をビューラー社製の成型リングに入れ、その中に主剤と硬化剤の混合液を注ぐ。この時、試料が浮いてくるので観察したい面を上向きにして試料を入れるようにする。また混合液は、発泡を避けるため静かにゆっくりと注いでいく。その後一晩自然乾燥させ、固化していることを確認し成型リングから取り出す。そして、24時間真空でデシケーターに保存する。

3.1.2. ブリケットの研磨

ブリケットの表面の研磨は、粗研磨、中間研磨、最終研磨の3段階に分けて行う。研磨にはビューラー社製卓上型8インチ研磨機エコメット3を用いる。

(a) 粗研磨

粗研磨はビューラー社製耐水研磨紙カービメットペーパーディスク8インチ粒度#320を貼った研磨盤を用いる。研磨盤を水で濡らし、研磨盤の回転数を100rpmにし、同一方向に約20往復手動で研磨する。一方向の研磨が終了したら試料の向きを90°ずらし、同様に手動で研磨し、順に4方向研磨する。包埋された試料がブリケットの表面に浮き出てくるまで研磨を続ける。

(b) 中間研磨

中間研磨は研磨機エコメット3にビューラー社製自動研磨装置オートメット2を組み合わせて行う。ビューラー社製ペーパーディスク8インチ粒度#600を貼った研磨盤を用いる。研磨盤を水で濡らし、ブリケット1個あたりの荷重を2ポンド、研磨盤の回転数を100rpm、試料ホルダーの回転方向を反時計回りに設定し、5分間自動で研磨を行う。ブリケットに包埋されている試料が十分に表面に出るまで研磨を繰り返す。

(c) 最終研磨

最終研磨はエコメット3研磨機にビューラー社製自動研磨装置オートメット2を組み合わせて行う。ビューラー社製バフ・マイクロクロス8インチを貼った研磨盤を用

表1 アスファルト分析試料
Table 1 List of asphalt samples

住所	遺跡名	状態	時期	出土遺構	出典	所蔵			
北海道	函館市	白尻C遺跡	後期(堂林式・三ツ谷式)	13号住居跡	函館市埋文調報第2輯	第56図10	函館市教育委員会		
			後期(手稲式)	包含層		第106図44			
	函館市	豊崎B遺跡	塊	後期末葉	8号竪穴住居跡	函館市埋文調報第7輯		第II-20図13	
	函館市	豊崎P遺跡	塊	後期中葉~末葉	2号竪穴住居跡	函館市埋文調報第7輯	第III-8図		
青森県	五所川原市	実吉遺跡	塊	後期~晩期主体	包含層	青森県埋文調報第207集	第41図14	青森県埋蔵文化財調査センター	
	青森市	三内丸山(6)遺跡	塊	円筒上層e式~中期後葉	39B号竪穴住居跡	青森県埋文調報第307集	第23図		
	青森市	石江遺跡	アスファルト内蔵土器片(底部)	前期後半(円筒下層式期)	6088号土坑	青森県埋文調報第458集	第73図		
	東津軽郡蓬田村	山田(2)遺跡	アスファルト内蔵深鉢	中期末葉~後期初頭	16号竪穴住居跡	青森県埋文調報第495集	第37図1		
	東津軽郡蓬田村	坂元(2)遺跡	塊	後期主体	包含層	青森県埋文調報第505集	第80図19		
	青森市	後潟(1)遺跡	アスファルト内蔵深鉢	中期中葉	1号土器埋設遺構	青森県埋文調報第512集	第66図1, 写真図版51		
	八戸市	中居林遺跡	塊	後期初頭	30号土坑	青森県埋文調報第454集	第37図19		
	平川市	李平II号遺跡	塊	(中期~)後期	フラスコ状ピット	尾上町調報第2集 考古-2	写真16上		平川市教育委員会
	むつ市	不備無遺跡	鉢(胴部)付着 鉢(底部)付着	晩期前葉 晩期前葉	3層 3層	弘前大学日本考古学研究室8	第229図-1 第229図-2		むつ市教育委員会
秋田県	潟上市	元木山根II遺跡	塊	後期前葉	包含層	秋田県文化財調報第362集	第17図35	秋田県埋蔵文化財センター	
	能代市	烏野上岱遺跡	アスファルト内蔵深鉢	中期末葉~末葉	3号A竪穴住居跡	秋田県文化財調報第406集	第12図1		
	湯沢市	堀ノ内遺跡	アスファルト内蔵鉢(口縁~底部)	晩期前葉(大洞BC式期)	包含層	秋田県文化財調報第432集	第241図1		
岩手県	八幡平市	赤坂田II遺跡	塊	中期末葉主体	IⅢg2号住居址	岩手県埋文調報第58集	第58図1~4	岩手県文化振興事業団埋蔵文化財センター	
	二戸市	寺久保遺跡	塊	後期主体	包含層	岩手県埋文調報第239集	p.68,p.178		
	下閉伊郡田野畑村	浜若泉I遺跡	塊	中期後葉	29号住居跡	岩手県埋文調報第276集	p.123,写真図版100-4		
	一関市藤沢町	上野平遺跡	塊	中期~後期主体	包含層	岩手県埋文調報第333集	写真図版191-2947		
	九戸郡野田村	平清水II遺跡	塊	前期中葉~中期前葉	包含層	岩手県埋文調報第449集	写真図版182		
	九戸郡軽米町	板子屋敷3遺跡	アスファルト内蔵鉢	後期中葉	12号住居跡	岩手県埋文調報第537集	第72図148		

いる。研磨盤を水で濡らした後、研磨剤としてビューラー社製の粒度 $0.05\ \mu\text{m}$ のマイクロポリッシュを8滴研磨盤に滴下する。ブリケット1個あたりの荷重を5ポンド、研磨盤の回転数を120 rpm、試料ホルダーの回転方向を反時計回りに設定し、6分間自動で研磨を行う。研磨開始から30秒経過するごとに研磨剤を1滴研磨盤に滴下し、研磨開始から5分が経過したら、水で研磨盤を洗う。研磨終了後、ブリケットを蒸留水で洗浄し、自然乾燥させる。

3.2. 元素分析

C, H, N, O の元素分析は、柳本製作所製 CHN コーダ MT-5 を使用し、分析装置の標準的な手順に従い行う。C, H, N 分析のキャリアガスには He、助燃ガスには O_2 を使用し、各々の流量を毎分 180 ml と 20 ml に設定する。各設定温度は試料分解炉 $950\ ^\circ\text{C}$ 、酸化炉 $850\ ^\circ\text{C}$ 、還元炉 $550\ ^\circ\text{C}$ 、ポンプ恒温槽 $100\ ^\circ\text{C}$ である。ブリッジカレント電流は H を 85 mA、C を 65 mA、N を 120 mA に設定する。分析にはセラミック製ポートを使用する。試料は、分析直前まで真空デシケーター内で1日以上真空乾燥させ、ザルトリウス社製セミマイクロ天秤 LE225D を用いて約 2 mg 秤量し分析する。標準試料には安息香酸 (C=68.85%, H=4.95%, O=26.20%) 及び antipyrine (C=70.19%, H=6.43%, N=14.88%, O=8.50%) を使用する。

酸素分析のキャリアガスには He を使用し、流量は毎分 180~200 ml に設定する。各設定温度は燃焼炉 $1050\ ^\circ\text{C}$ 、酸化炉 $1000\ ^\circ\text{C}$ 、還元炉 $300\ ^\circ\text{C}$ である。ブリッジカレント電流は 85 mA に設定する。

3.3. マセラル分類

石炭の顕微鏡的構成単位体であるマセラルを、反射顕微鏡下で反射率と形態的特徴から同定し、分類する方法をマセラル分類法と呼ぶ。本研究では ICCP (1998, 2001) 及び Stach et al. (1982) に基づいてマセラルを同定する。マセラルは反射率の違いから vitrinite グループ、inertinite グループ、liptinite グループの3つのマセラルグループに大別されており、さらに形態的特徴からそれぞれのマセラルに細分されている。

顕微鏡は Carl Zeiss Micro Imaging 製 Axio Imager A2m を使用する。顕微鏡の光源にはハロゲンランプを用い、波長 $546\ \text{nm}$ の単色光用フィルターを通して、倍率は 500 倍 (接眼レンズ 10 倍, 対物レンズ 50 倍) で行う。観察は油浸系で行い、浸油には Carl Zeiss 製イメージンオイル 518C を使用する。ブリケットは、研磨面を上にして水平になるようにスライドガラスに油粘土で固定し、ステージに載せて観察する。マセラル組成の測定にはポイントカウント法を用い、 $100\ \mu\text{m}$ の走査間隔で 400 点測定する。

3.4. アモルフィナイト反射率の測定

反射率は、顕微鏡下でブリケットに一定強度の単色光を試料表面に対し垂直に入射させ、その反射光の強度を光電増倍管で検出し、標準試料と比較して求める。顕微鏡と光源は、マセラル分類に用いたタイプを使用した。反射率測定装置には、J & M Analytic AG 製顕微分光光度計 MSP200 を使用し、50 倍の対物レンズで測定する。アスファルトは油浸により、その表面が変質するため、浸油をつけずに乾燥系で反射率の測定を行う (Xiao et al.: 1998)。標準試料には、GADOLINIUM-GALLIUM- GARNET (反射率=10.80%), SAPHIR (反射率=7.70%) 及び、Scott 社製減光ガラス (反射率=4.38%) を使用する。測定対象はアスファルトの主成分である amorphinite とする。amorphinite は、liptinite グループに属する不定形質無組織で蛍光を発するマセラルである。1 試料につき 50 点反射率を測定する。

3.5. クラスタ分析

元素分析、マセラル分類、反射率測定によって導き出された H/C 原子比、O/C 原子比、liptinite の含有率、vitrinite の含有率、inertinite の含有率、amorphinite 反射率を変数として、各々の値の最小値が 0、最大値が 100 になるように規格化し、クラスタ分析を行う。分析ソフトは IBM SPSS Statistics (version 21.0) を使用する。元素組成 (H/C 原子比と O/C 原子比)、マセラル組成 (liptinite の含有率、vitrinite の含有率と inertinite の含有率)、amorphinite 反射率の重みが

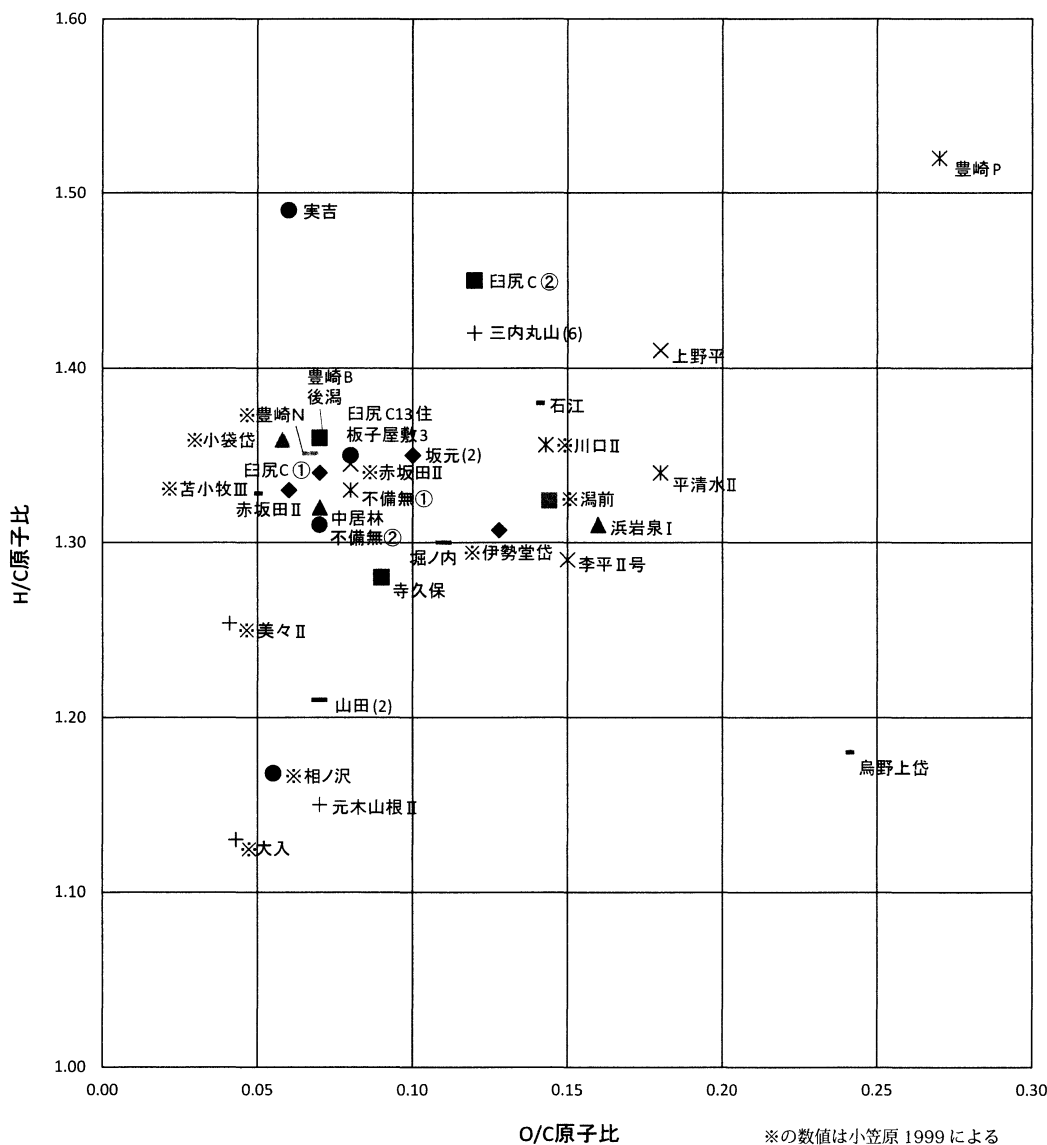


図3 アスファルト試料の元素組成比 (van Krevelen ダイアグラム)
 Fig. 3 Atomic H/C and O/C ratios of asphalt samples on van Krevelen diagram

1 : 1 : 1 になるように変数を調整し、階層クラスターを選択し、分析を行う。

4. 分析結果と討論

4.1. 元素組成

アスファルトの起源物質であるケロジェンの元素組成を表すには一般に van Krevelen ダイアグラム、すなわち水素対炭素原子比 (H/C 原子比) を縦軸に、酸素対炭素原子比 (O/C 原子比) を横軸にとるグラフを利用する (図3)。van Krevelen ダイアグラム上では、生物の種類や組織により値が大きく異なり、藻類起源のケロジェンは未熟成では H/C 原子比が高く、O/C 原子比はあまり高くない。一方高等植物の材 (木質) 起源のケ

ロジェンは有機熟成度に関係なく H/C 原子比が低く、O/C 原子比は未熟成では高い値を示す。植物の葉、花粉、孢子等を起源とするケロジェンは両者の中間的な値を示す (Tissot and Welte : 1984)。有機熟成が進行すると、熱分解によりケロジェンの水素及び酸素の含有率が徐々に減少し、相対的に炭素の含有率が増大し、van Krevelen ダイアグラム上では原点方向に向かう。

遺跡検出アスファルトの元素組成を、van Krevelen ダイアグラム上に表した (図3)。分布は、O/C 原子比 0.05~0.10、H/C 原子比 1.30~1.40 の範囲に比較的集中する。岩手県赤坂田II 遺跡の試料は、小笠原 (1999) の試料とほぼ同じ試料を用いており、それに近い値が出ている。地域的には苦小牧III 遺跡をはじめ、北海道から岩

手県域の遺跡が含まれ、地域差は認められない。なお、産油地である駒形に近い烏野上岱遺跡は、O/C 原子比 0.24, H/C 原子比 1.18 で、上記の集合に比べ、O/C 原子比が高く、H/C 原子比が低い。また豊川油田に近い元木山根Ⅱ遺跡は O/C 原子比 0.07, H/C 原子比 1.15 で、H/C 原子比が低い。

4.2. マセラル組成

石炭や堆積岩中の有機物を構成するマセラルは、vitrinite グループ、inertinite グループ、liptinite グループの 3 つのマセラルグループに分類される (Stach et al.: 1982)。vitrinite グループは高等植物の材 (木質) 由来のマセラルであり、陸上の影響の強い環境下で堆積したものと推定されている。liptinite グループのマセラルは、植物の花粉・孢子、樹脂、表皮、藻類等多岐に

渡る起源物質から由来しているが、vitrinite グループよりは陸上からの影響が少ない環境に堆積したと推定されている。inertinite グループは、堆積時に野火 (山火事) 等で焼かれたマセラルから主に構成されている。この様に、マセラルの組成は起源有機物や堆積環境に強く影響を受けている。

遺跡検出アスファルトのマセラル組成を、liptinite, vitrinite, inertinite を端成分とする三角ダイヤグラムで表した (図 4)。一般にアスファルトの特徴は amorphinite の含有率が非常に高いことである (氏家: 2013, 氏家・伊藤: 2012, 氏家ほか: 2010, 2011, 2012)。amorphinite は、liptinite グループに属す不定形質無組織で蛍光を発するマセラルである。amorphinite の起源は多岐にわたり、藻類、腐植物質、強く生物分解を受けた水生植物・陸生植物・動物遺骸・バクテリア等に

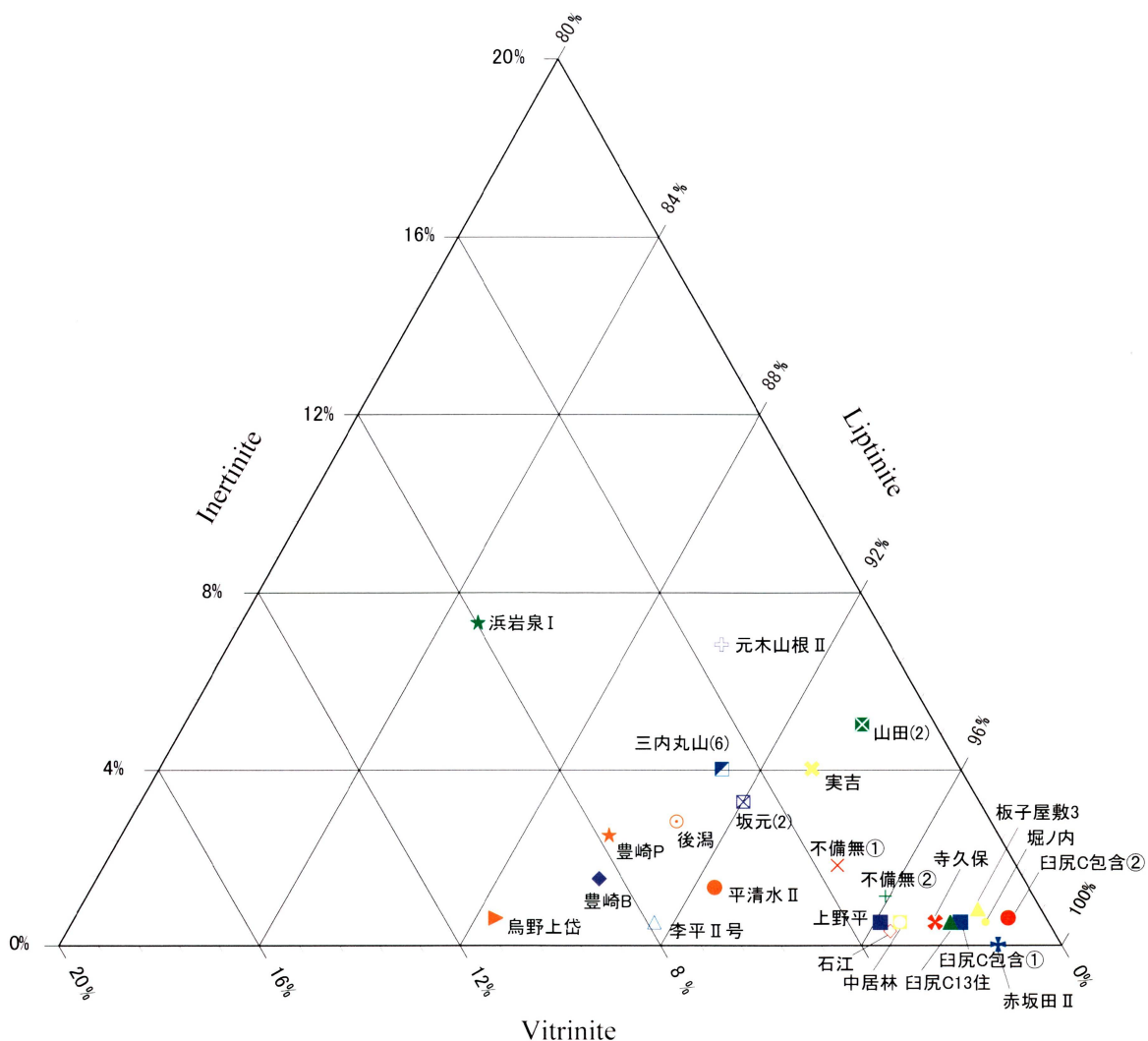


図 4 アスファルト試料のマセラル組成
Fig. 4 Maceral compositions of asphalt samples

由来する (Xiao et al.: 1998)。本分析の結果でも大部分の試料は amorphinite の含有率が 90% を超えており、最低でも浜岩泉 I 遺跡のアスファルトの 84.7% である。今回測定した試料の中では、amorphinite 以外の liptinite グループに属すマセラルは同定できなかった。浜岩泉 I 遺跡と元木山根 II 遺跡は、inertinite が若干高い。また、烏野上岱遺跡は vitrinite が若干高い。

4.3. アモルフィナイト反射率

マセラルの反射率はマセラルの種類により大きく異なるが、有機熟成が進行すると、各マセラルの反射率は上昇することが知られている (Stach et al.: 1982)。

遺跡検出アスファルトに含まれる amorphinite の反射率の平均値を図 5 に示す。白尻 C 遺跡および豊崎 B・P 遺跡など、北海道南部の遺跡群は、5.73~5.94% と反射率は類似した値を取る。北海道南部の遺跡を含む反射率 5.50~6.60 の試料は、青森県下北・南部地域や岩手県域に多い。一方、石江遺跡、山田 (2) 遺跡、坂元 (2) 遺跡など青森県津軽地域や、烏野上岱遺跡など秋田県域の一部の試料を中心に反射率が低いものがある。

4.4. クラスタ分析

遺跡検出アスファルトの分析値を基にしたクラスタ分析の結果を図 5 に示す。縦軸は分析試料、横軸は結合距離を示している。結合距離の数値が小さいほど、試料間の結びつきが強い。結合距離 15 を基準とすると、全てのアスファルトは 2 つのクラスタに分かれる。さらに結合距離 6 を基準とすると 3 つのクラスタに分かれる。なお、クラスタは、本稿で分析したデータをもとにクラスタ間の距離を定義する距離関数のひとつであるウォード法を用いて算出したものであり、今後より産地推定に有効な分析法で新しい変数が得られれば、デンドログラムが変化する可能性があることを付け加えておく。仮に、図 6 上から白尻 C 遺跡包含層①から上野平遺跡までのまとまりを A グループ、李平 II 号遺跡から烏野上岱遺跡までを B グループ、三内丸山 (6) 遺跡から浜岩泉 I 遺跡までを C グループとする。

まず、原産地に近い遺跡の試料をみると、駒形に近い烏野上岱遺跡と豊川油田に近い元木山根 II 遺跡は、結合距離 6 を基準とすると B と C 別々のグループに分かれ

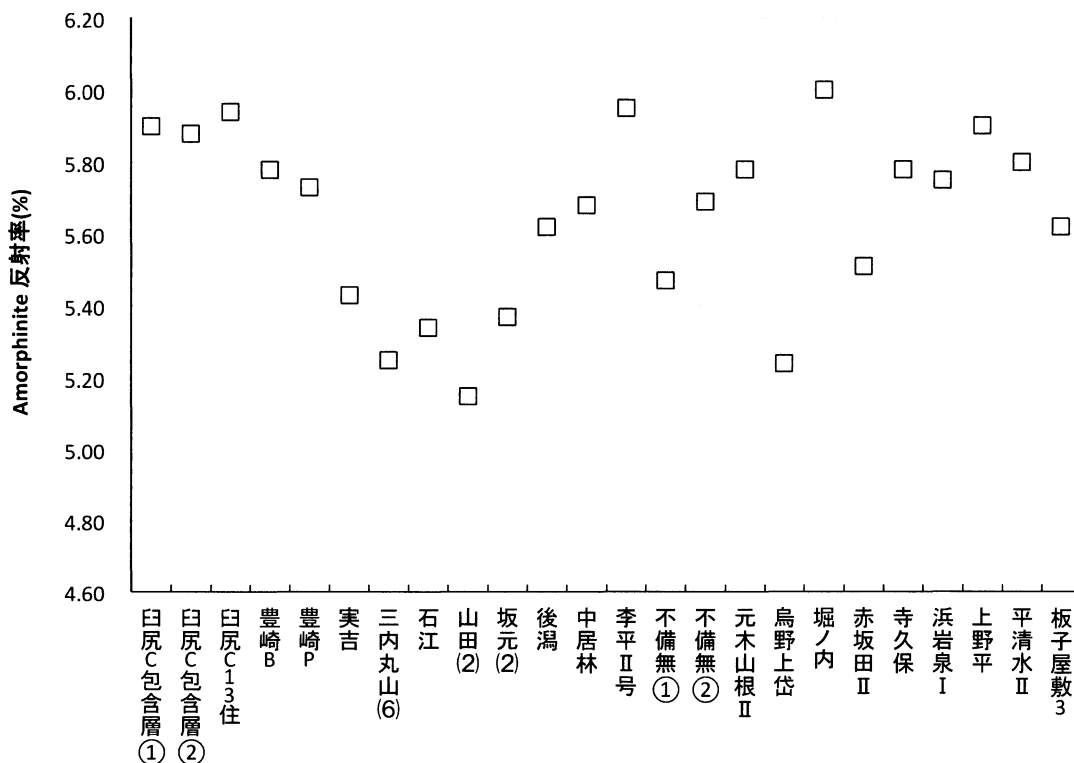


図 5 アスファルト試料の amorphinite 反射率
Fig. 5 Amorphinite reflectance of asphalt samples

Ward 法を使用するデンドログラム

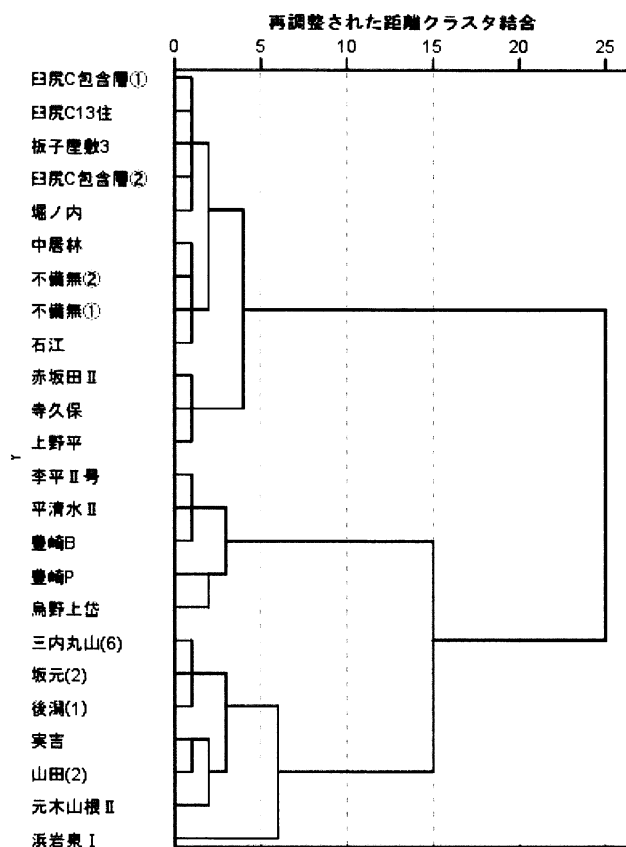


図6 アスファルト試料の元素組成, マセラル組成, amorphinite 反射率に基づくクラスター分析結果

Fig. 6 Result of cluster analysis based on elemental composition, maceral composition and amorphinite reflectance of asphalt samples

る。ただし、結合距離は比較的近い。その理由は、両アスファルトを生み出した根源岩が同じ女川層であること(佐々木：2012MS)であろう。すなわち女川層中でケロジェンが熱分解され、ケロジェンから放出されたアス

ファルトが別々に移動して、一方は豊川油田から、他方は駒形から産出しているのである。アスファルトの起源や有機成熟過程が類似していたため、両者の結合距離は非常に近い結果となったと考える。一方、B・Cグループから外れるAグループについては、精製による成分の変質や添加物の有無、そして未知の産地の可能性などの要因を探ってみる必要がある。

遺跡ごとにみると、白尻C遺跡の試料はAグループ、豊崎B・P遺跡の試料はBグループに属し、遺跡単位でまとまっており、各遺跡単位におけるアスファルトの供給元は同じだったと考えられる。地域的にみるとAグループは、北海道から下北半島、岩手県域の遺跡が比較的多い。またCグループは津軽半島域の遺跡が多い。時期的には、前期の石江遺跡はAグループに属す。中期になるとB・Cグループの遺跡が多くなり、後期以降、再びAグループが増加し、晩期の2遺跡はAグループである。まだ分析数を増加していく必要があるものの、時期と地域によって傾向が見られた点は、アスファルトの産地や加工法が関連していると考えられる。

謝辞

分析に際しては下記の機関、個人よりご協力、ご教示を賜った。末筆ながら、記して感謝申し上げる。

函館市縄文文化交流センター、青森県埋蔵文化財調査センター、秋田県埋蔵文化財センター、岩手県文化振興事業団埋蔵文化財センター、平川市教育委員会、阿部千春、佐々木榮一、坪井睦美(順不同、敬称略)

引用文献

- 安孫子昭二 1995 「アスファルト」加藤晋平・小林達雄・藤本 強(編集)『縄文文化の研究 8 社会・文化』雄山閣 pp.205-222
- 氏家良博 2013 「函館市内の縄文遺跡から出土するアスファルトの原産地推定」『函館市委託研究「函館市縄文文化特別研究」報告書』pp.6-17 (弘前大学函館縄文文化交流センターのホームページ上で公開)
- 氏家良博・布施辰弥・下総麻衣子・相澤武宏 2010 「山田(2)遺跡出土のアスファルトの成分分析と原産地の推定」『青森県埋蔵文化財調査報告書 第495集 山田(2)遺跡』青森県教育委員会 pp.294-300
- 氏家良博・伊藤秀平 2012 「不備無遺跡から出土したアスファルトの成分分析と原産地の推定」関根達人・上條信彦(編集)『下北半島における亀ヶ岡文化の研究 青森県むつ市不備無遺跡発掘調査報告書(弘前大学人文学部日本考古学研究室研究報告 8) 第二分冊 本文編 2』弘前大学人文学部付属亀ヶ岡

文化研究センター pp.89-95

氏家良博・伊藤秀平・金今さやか・相澤武宏 2012「後潟（1）遺跡出土のアスファルトの成分分析と原産地の推定」『青森県埋蔵文化財調査報告書 第512集 四戸橋富田遺跡・後潟（1）遺跡II』青森県教育委員会 pp.119-122

氏家良博・金今さやか・下総麻衣子・相澤武宏 2011「第3節 坂元（2）遺跡出土のアスファルトの成分分析と原産地の推定」『青森県埋蔵文化財調査報告書 第505集 坂元（1）遺跡・坂元（2）遺跡』青森県教育委員会 pp.141-147

小笠原正明 1999「アスファルトの化学分析と原産地」考古学ジャーナル 452 pp.2-5

小笠原正明・阿部千春 2007「天然アスファルトの利用と供給」小杉康・谷口康浩・西田泰民・水ノ江和同・山野健一（編集）『縄文時代の考古学 6 ものづくり―道具製作の技術と組織―』同成社 pp.256-267

佐々木榮一 2012『能代市二ツ井町駒形“オイルサンド採掘地”見学会資料』NPO（豊川をヨイショする会） 7p

石油学会 2005「アスファルト」石油学会（編集）『石油辞典』丸善 pp.74

Connan, J. and Nissenbaum, A. 2004 “The organic geochemistry of Hasbeya asphalt (Lebanon): comparison with asphalts from the Dead Sea and Iraq” *Organic Geochemistry* 35 pp.775-789

Connan, J., Nissenbaum, A. and Dessort, D. 1992 “Export of Dead Sea asphalt to Canaan and Egypt in the Chalcolithic-Early Bronze Age (4th-3rd millennium)” *Geochimica et Cosmochimica Acta* 56 pp. 2743-2759

Connan, J., Nissenbaum, A., Imbus, K., Zumberge, J. and Macko, S. 2006 “Asphalt in iron age excavations from the Philistine Tel Miqne-Ekrin city (Israel)–Origin and trade routes” *Organic Geochemistry* 37 pp.1768-1786

International Committee for Coal and Organic Petrology (ICCP) 1998 “The new vitrinite classification (ICCP System 1994)” *Fuel* 77 pp.349-358

International Committee for Coal and Organic Petrology (ICCP) 2001 “The new inertinite classification (ICCP System 1994)” *Fuel* 80 pp.459-471

Kato, K., Miyano, A., Ito, J., Soga, N. and Ogasawara, M. 2008 “The search for the origin of bitumen excavated from archaeological sites in the northernmost island in Japan by means of statistical analysis of FI-MS data” *Archeometry* 50 pp.1018-1033

Stach, E., Mackowsky, M.T.H., Teichmüller, M., Taylor, G.H., Chandra, D. and Teichmüller, R. 1982 “Stach's textbook of coal petrology (third revised and enlarged edition)” Gebrüder Borntraeger 535p

Tissot, B. P. and Welte, D. H. 1984 “Petroleum formation and occurrence, 2nd edn.” Springer-Verlag 699p

Xiao, X., Wilkins, R.W.T., Liu, Z. and Fu, J. 1998 “A preliminary investigation of the optical properties of asphaltene and their application to source rock evaluation” *Organic Geochemistry* 28 pp.669-676

(2014年6月5日受付, 2014年8月21日受理)

Identification of the Origin of Asphalt Excavated from Jōmon Period Archaeological Sites Based on Petroleum Geological Data

Yoshihiro UJIIÉ¹⁾, Takehiro AIZAWA¹⁾, Keiichiro KAWAMURA¹⁾,

So YASUDA²⁾ and Nobuhiko KAMIJO²⁾

- 1) Faculty of Science and Technology, Hirosaki University, 3 Bunkyo-cho, Hirosaki, Aomori Prefecture 036-8561, Japan
 - 2) Faculty of Humanities, Hirosaki University, 1 Bunkyo-cho, Hirosaki, Aomori Prefecture 036-8560, Japan
-

Asphalt, which is archaeological bitumen used as an adhesive and waterproofing agent, has been widely excavated from Jōmon Period archaeological sites across northeastern Japan. Asphalt remains from 21 archaeological sites in the area ranging from Hokkaido to Akita and Iwate Prefectures in Japan were compared by applying the elemental and maceral composition analysis and reflectance measurement techniques used in petroleum geology to source rocks. Elemental and maceral compositions of asphalt samples were strongly affected by the identity of the source organisms that had been transformed into the asphalt. However, reflectance was affected by the degree of maturation of the organic materials, by the diagenesis process that occurred during burial, and therefore the chemical changes of the organic material in the sediment. No geographical feature characteristic to a particular region was recognized in any of the elemental and maceral composition analyses or reflectance measurements of asphalt samples. Cluster analysis of asphalt samples on the basis of these three variables—elemental composition, maceral composition and reflectance—indicated that archaeological and natural asphalt samples were divided into three clusters, the first originating from bitumen in source rocks of oil fields, the second from altered bitumen, and the third from bitumen in small oil seepages. Cluster analysis showed that several asphalt samples from a site belonged to the same cluster.