

放射性炭素法による古代製鉄遺跡の年代測定

九州大学工学部 坂 田 武 彦

要 旨

わが国古代製鉄の起源については全くなぞである。神話によれば須佐之男命、やまたのおろちを退治すとある。すると須佐之男命以前にやまたのおろちという製鉄族がいたことになる。記録のない古代製鉄の起源について興味をもっていた筆者は、製鉄跡より出土する木炭について、古代製鉄遺跡の年代測定を試みることにした。本測定機が九州大学 RI 総合実験室に設置されたのは、昭和44年で今より約5ヶ年前のことである。筆者は5ヶ年にわたり、高島教授指導のもとに年代測定を続けてきた。本研究に対し古代製鉄年代測定件数の少ないのは、発掘件数に対して、測定用木炭が炉跡に残留していないのが原因の一つである。

1. 測定法の概要

本実験室に設置されている測定装置は、高島教授が米国ワシントン大学留学中に開発されたものを^{*})、アメリカのラジオケミストリー社により商品化されたもので、この種の装置としては、世界最高の性能を有するものといわれている。

本装置では試料を気体にし、カウンター中に封入して測定する方法をとるので、試料を常温付近で気体になすことのできるものであれば、原理的にはどんな核種でも測定することができる。このように試料を気体にしてカウンター中に封入して測定する方法では、極めて低エネルギーの β ($\beta = 0.018 \text{ MeV}$) 線がほぼ100%の計数効率で測定できるので、とくに ^3H とか ^{14}C ($\beta = 0.156 \text{ MeV}$) の測定に用いられている。 ^3H の測定では試料を水素ガスとし、 ^{14}C の測定では二酸化炭素、アセチレン、メタンなどとしている。本実験室では試料から二酸化炭素をつくり、これをルテニウム触媒によりメタンガスを合成して放射性炭素 (^{14}C) の測定による年代決定に用いている。

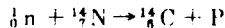
2. ^{14}C 測法の概要

1.) 天然における ^{14}C の生成

^{14}C は成層圏において、二次宇宙線の中の中性子と大気中の窒素との相互作用により次のような

^{*}) A.W.Fairhall, W.Schell & Y.Takashima, Rev.Sci. Instr., 32, 323 (1961).

反応式で生成される。



生成量は地表の1 cm² 当り、1 秒間に1.8 個で、年間総生成量を重量で表わすと6.8 kgに達する。宇宙線強度が一定であれば、一定の速度で¹⁴C が生成し、大気中の非放射性の炭素中に混入し、対流によって地表まで降下してくる。地表に達すると炭素は同化作用によって植物体中に入り、植物を食べる動物や人間の身体の中にも入る。

1960 年以降は人為的核爆発によって生じた¹⁴C も多量に宇宙線によって生じた¹⁴C と混じって自然界を循環している。

現在のところ体重 60 kg の人は1 人当たり約 10¹⁴ 個の¹⁴C 原子を身体中にもっていると見積られる。

2) 年代測定の原理

前述のように動植物は体内に¹⁴C を保有し、生存中のその濃度は空気中の炭素中の¹⁴C 濃度と等しくなる。しかし一度死滅すれば空気中の炭素との接触が断たれるから、¹⁴C の濃度はその半減期 (5720 年) ± 50 年に従って減少してゆく。

そこで古い時代に死滅した動植物の遺体中の¹⁴C 濃度を測定すれば、放射性壊変の式から、死滅した時からの経過年代が決められる。しかし通常、半減期の10 倍 (5 万 7000 年) の時間を経過すれば¹⁴C の量は始めの1000 分の1 以下になり測定不能となるので、放射性炭素による年代測定は約5 万年までの古い試料の年代がきめられる。

3. ¹⁴C 年代測定値に対する批判

わが国の考古学者の中には、本測定値に対して批判的な人がある。中国においては、ほぼ年代の判明した古墳よりの出土物に対して¹⁴C の測定を行ないその結果が公表されている。現在アメリカでは90 台余りの¹⁴C の測定機が稼動し、世界の出土物を測定し続けている。韓国でも稼動している。ところがアメリカを始めとして外国では、本測定値は信用されないという記事はみられない。余り信用されないというのは、日本の一部の考古学者だけである。これは何故か。

筆者はこのなぞを解明するために次の実験を試みた。年輪の数えられる屋久杉について年代測定を行なった結果、本測定機は極めて正しく年輪を年代的に示していることが判明した。測定操作に当っては、操作に熟練した人であること、熟練した者が試料採取から化学処理、ガス調整から精製測定まで一貫して綿密に行ない、測定回数によるその平均値から、実年代に近い値が求められることは明らかである。¹⁴C による年代測定法は、現在のところ他に類のない超高度な年代測定機であるといえる。

4. 古代製鉄跡の年代

KURI …… 九州大学 RI 実験室記号

KURI	県名	地名	紀元	年代
0001	福岡	焼山	AD	309 ± 30
0005	"	鬼面	"	389 ± 30
0029	"	上和白	"	883 ± 20
0022	長崎	苓岐	"	894 ± 20
0017	"	"	"	475 ± 30
0040	"	"	"	1240 ± 20
0041	福岡	野方	"	577 ± ?
0050	石川	細呂木	BP	1744 ± 34
0073	福岡	大谷	"	2118 ± 40
0068	石川	トレンチ	"	2286 ± 44
0097	福岡	生松原	"	1060 ± 20
0101	"	黒崎	"	950 ± 40
0102	"	ちいさこべ製鉄製銅所	"	2137 ± 40
0149	熊本	玉名	"	1150 ± 25
0151	"	荒尾	"	1141 ± 20
0153	"	玉名	"	1215 ± 25
0154	神奈川	足柄市	"	1302 ± 20

以上の測定用木炭は、古代製鉄炉跡より採取したものである。

0143	熊本	玉名(斉藤山貝塚)	"	2375 ± 50
------	----	-----------	---	-----------

斉藤山貝塚は、吾が国考古学上最も古い鉄器の出土地とされている所である。その貝塚の貝の年代を測定したところ、上記の値が得られた。

5. 測定結果と考察

古代製鉄跡はそのほとんどが土中に埋れていて発見がなかなか困難である。古代史の宝庫といわれている福岡県下においては、古代製鉄跡の数は数えきれない程多く、油山を中心としてその山麓一帯に分布している。今宿焼山の一地区だけでも鉄滓の出土している所が10ヶ所以上もあって、畑の岸を鉄滓を混ぜて築いている所もある。しかし鉄滓は容易に発見されるけれども、使用された木炭の残留している炉跡は比較的少ない。福岡市今宿焼山地区には約120基余りの古墳が実在している。製鉄によっていかにこの地が栄えたかを知ることができる。古墳の盛土に、製鉄の灰や鉄滓などが混入して築かれている点は興味あるものといえる。

筆者のこれまでの調査によれば、大分県国東半島の海岸とその周辺も古代製鉄群の存在している

所である。全国的に探せばどれだけあるのか推定すら不可能である。すなわち、砂鉄と、燃料となる森林のある所に、製鉄跡のない所はないといっても過言ではあるまい。

この数多い製鉄跡の中から、本当の初期製鉄跡を探し出すことは容易なことではないのである。調査の的をいかにしぼるかはこれからの課題であるが、筆者はとりあえず、縄文土器を伴う鉄滓の出土地について調査をしぼり、その地の炉体の確認と木炭の採取につとめたい考えである。

古代製鉄跡の学術的究明については、現代の鉄鋼製錬学を専攻している者でも、現地に立てば頭をかしげることが多く、簡単な様で実はなかなか複雑である。冶金学を専攻していない者がこれを常識で論ずることは非常に危険である。

6. 筆者の見た製鉄跡

筆者は、昭和44年10月、島根県飯石郡吉田村菅谷において行なわれた、日本鉄鋼協会主催のたたら製鉄復元操業に参加し、炉の基礎工事より操業に従事して、その記録係を担当した。現在各地で発掘される製鉄遺跡は、主として火成岩地帯の風化堆積層を、いろいろの型に堀り抜いて造られている。炉体の傾斜角度は水平から30°の登り勾配まであり、横幅は0.5 m～1.00 m、長さ4～7 mの登り釜を見ているが炉型は全く一致していない。これらと復元操業の行なわれた菅谷たたらとを比較して、菅谷たたらは極めて改良された、たたら炉である。これを参考にして古代の野たたらを究明するには多少無理があるように思われる。

7. 古代鉄滓について

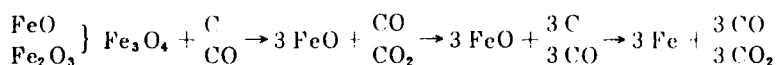
出土する古代鉄滓は次の3種に大別することができる。

1. 鉄滓の表面が含水酸化鉄に覆われているもの。
2. 含水酸化鉄がほとんど含まれていないもの。
3. 両者混合のもの。

1と3は主として二次製錬（大鍛冶場）跡より出土し、2は主として古代製鉄登り釜跡より出土していることが多い。これを冶金学的に究明すれば次のように理論づけることができる。

砂鉄は火成岩を母岩としてできた磁鉄鉱（ Fe_3O_4 ）の微粒子である。母岩の風化作用によりこれらが分離したものをいろいろの方法によりこれを集めて製鉄原料としている。これらの中には永年の風化作用により、その表面が赤鉄鉱（ Fe_2O_3 ）化しているものもある。

砂鉄を登り釜の中にて還元すれば次の反応式により海綿鉄が造られる。



還元中の FeO (酸化第一鉄) は、赤熱の炉材中の SiO_2 と 1080°C にて化学反応を行ない $2\text{FeO} \cdot \text{SiO}_2$ (Fayalite) を生成する。この Fayalite が登り釜鉄滓の主成分である。これは主として登り釜の吸気孔 (ホド) 近くの高温部にて生成したものと考えられる。

古代製鉄人達が鉄を造る過程で最も苦心したであろうと思われる珪酸鉄の生成について、すなわち、砂鉄を還元すれば、砂鉄は金属鉄になる前に必ず酸化第一鉄の状態を経過せねば金属鉄になることはできない。この酸化第一鉄は炉材中の珪酸 (SiO_2) ときわめて容易に化学反応を行ない珪酸鉄となるものである。この珪酸鉄は炭素によっては、還元不可能な安定な化合物である。現在冶金学を専攻していない人の中にはこの珪酸鉄を見て、これを天然の鉄鉱石と誤認している人にめぐり会うことがある。

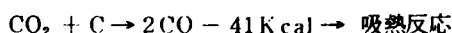
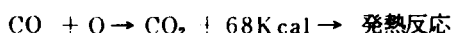
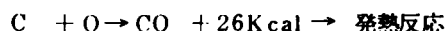
大鍛冶場滓とは、古代人が二次製錬場を大鍛冶場とっていたかどうか筆者は知らないが、文章の都合で二次製錬場を大鍛冶場とする。ここは登り釜にて還元された鉄と、その中に含まれる未還元のスダ鉄とを、フイゴを用いて吹き分けを行なった所で、二次製錬のさい生成したものが大鍛冶場滓である。この鉄滓の中には微粒の鉄が含まれていたらしく、これが風化作用により含水酸化鉄となり、外観上は本当の鉄滓らしさを示している。

これら出土の鉄滓を、鉱物顕微鏡下にて観察することにより、当時の製錬温度、複雑な操業が行なわれていることなど冶金学には極めて興味ある問題である。さらにこの鉄滓の区別に異義をもたれる人には、古代の登り釜滓とその近くの大鍛冶場滓との、比較検討をおすすめする。さらにいづれとも判別し難い鉄滓の出土については、鉄滓の鉱物組成等により、当時行なわれた二次製錬の方法ならびに製錬温度などについて、検討せねば現地では結論を出せないことが多い。

古代製鉄の鉄滓は、同一地で出土したものであっても、鉱物学的にはなかなか複雑である。珪酸鉄を主成分とするもの、含水酸化鉄を主成分とするもの、酸化第一鉄を主成分とするもの、炉体片に熔着しているものなどあって、鉱物学的には百種百様の組織を示すことが多く、これらは当時の複雑な製錬技術を示しているものと考えられる。

8. 炉内温度

炭素の燃焼生成熱量は次の式の示すとおりである。



上式の示すとおり、還元は赤熱炭素の直接還元力よりも CO ガス還元の力がはるかに大きい。炭素は $\text{C} \rightarrow \text{CO} \rightarrow \text{CO}_2$ になるまでに 94Kcal の発熱を行なうがこれは次の赤熱炭素の表面によっ

て-41Kcalの熱が吸収されることにより、送風孔近くの温度は極めて高温となるが、次の赤熱炭素に熱は吸収されて、温度は上昇しなくなると共に温度は送風量に比例してほぼ一定となる。送風量について、フィゴの口は出土しているけれども、その本体のフィゴはまだ見たことがない。

9. 古代製鉄の燃料

登り釜の中に残留している木炭を試料として、その年代を測定する場合、試料中に吸着しているモダンの ^{14}C を化学処理により完全に除去せねばならない。この処理過程において5%の水酸ナトリウムの水溶液に浸したのち、これをビーカー中にて加温する。いくつかの試料の中で溶液は黒褐色の重油状となり、木炭は完全に分解しているものがある。炭化の進んでいる木炭は全く分解しない。分解したものは一見木炭のようであるが化学的には黒色の木材である。炉中に木材が残留しているということは、当時の登り釜に使用された燃料は木炭ではなく、ほとんど木をそのまま用いていたらしい。試料は溶液の着色を認めぬまで何回も酸とアルカリ溶液により化学処理を行ない、溶液は棄却し不溶の残留物についてのみ測定が行なわれるから、アルカリに溶解して残留精製の木炭が得られないものは ^{14}C の測定試料にはならない。

10. ^{14}C 年代と考古学年代について

最近の物理測定機は、試料を装入したのちボタンを押せば結果が定量的に表示されるよう極めて精巧にできているものが多い。 ^{14}C 測定機をこれらの測定機と比較した場合精巧さにおいてはおとらぬが操作については、ボタン一つで定量する訳にはゆかない。操作測定に対する修得が必要である。

筆者は常に ^{14}C 濃度既知の標準ガス^{*)}を用い、その測定を行ないつつ、測定機の感度を観察しながら試料ガスの測定を行なっている。試料ガスは、当日調製測定を行ない、これを予備測定とし、一週間経過したのち、試料ガスは精製測定を3回行ない、その平均値により年代を出している。ただし考古学者の納得しない測定値に対しては、残りの同一試料を用い、再度化学処理より出発して再度測定を行なうことがある。結果が前回と一致すればこれは正しい測定値として、そのまま記録することになっている。

これまでの測定結果によれば、考古学者の用いている土器編年とは必ずしも一致しない。一致しないのが本当ではあるまいか。

例えば、現在の東京本郷の弥生町から珍しい土器が出た。これを基準に、この世代を弥生と決

*) N. B. S. シュウ酸

められたでは一考を要するからである。紀元前三世紀前後の日本の文化を出土の土器によって統一的に考えること自体が不合理ではあるまいか。なぜならば、現在実在する島根県菅谷たたらを参考にして、古代製鉄を類推するにこれは参考にならぬ程事實はきわめて複雑である。製鉄跡調査中良く須恵器が出土する。出土木炭による製鉄年代は古い。考古学者の土器編年では須恵器はきわめて新しいようである。

古代人といっても、鉄の造れる者に須恵器の造れぬ筈はない。粘土製の土器を製鉄用登り釜に入れて焼けば、土器中に含まれる酸化鉄は還元されて須恵器色独特の焼物が容易に造れることは明らかである。須恵器の量産された時代は考古学者の須恵器の製造年代とほぼ一致するようである。これは事実として B.C. 1～2 世紀の土器層の下層から須恵器が出土している。考古学年代を基準にすれば、これは落ちこみとするか、伏せるか、いずれにしても無理がある。¹⁴C 実測の結果、文化の歴史はきわめて複雑であるといえる。これは明らかに落ち込みではなく、この集落では A.D. になっても厚手の縄文土器を使用していたと思われる所もあれば、B.C. 時代にすでに須恵器を使用していた集落もあるようである。考古学の土器編年によれば、複雑な過去を余りにも土器によって統一視してはいないかと考えられる点が多い。

