

# 火砕流堆積物中のクリストバライトの格子定数

—— 石器の原産地推定への応用 ——

松崎 琢也・新東 晃一\*・小林 祥一\*\*・三宅 寛\*\*\*

岡山理科大学大学院理学研究科

\*鹿児島県立埋蔵文化財センター

\*\*倉敷芸術科学大学産業科学技術学部

\*\*\*岡山理科大学理学部

(1998年10月5日 受理)

## 1. はじめに

岡山県内や畿内及びその周辺では家形石棺の出土が古くから多数報告されてきている。これらの石棺の石材の原産地推定について、従来からの岩石の色、岩相等による方法以外に、逸見<sup>1)</sup>は、粉末X線回折法に基づいたいわゆるパターン分析による可能性を提唱した。これに基づいて、間壁ら<sup>2)</sup>はその幾つかを“二上山ピンク石”製と決定した。その後高木ら<sup>3)</sup>が、粉末X線回折法に加えて、肉眼的・顕微鏡的観察、鉱物の組合せ及びその量比、特に斜方輝石及びガラスの屈折率を求めることにより、“二上山ピンク石”はAso-4火砕流堆積物の溶結凝灰岩の特性とよく一致することを報告し、“二上山ピンク石”の殆どに対して新たに“阿蘇ピンク石”の名称で呼ぶことを提唱した。これに加えて、一部のピンク色を呈さないものについても石棺の形態から阿蘇溶結凝灰岩であるとした。更に、石材採掘跡など考古学的見地から熊本県宇土市網津町馬門露頭が“阿蘇ピンク石”の石棺の石材の原産地であると推定した。

このような一連の原産地推定の対象とされた岡山県内の古墳としては、築山古墳（邑久郡長船町西須恵）と造山古墳（岡山市新庄下）が挙げられる。なかでも築山古墳の石棺については、上記のような原産地推定の経過の間に、別に奥田<sup>4)</sup>により考古学見地から小豆島寒霞溪の火砕流堆積物の可能性があることも指摘されている。本稿では、その築山古墳の石棺について、別の立場からの検証を考えた。幸いにもこの石棺の中には、脱ガラス化作用によって生成するとされるクリストバライトが認められる。このクリストバライトの格子定数については、産地および産状により約0.1%（aについては0.004[Å]、cについては0.007[Å]）の変化があるという知見を得ている<sup>5)</sup>。本稿では、このクリストバライトの格子定数の変化を石棺石材の原産地の推定への応用を探るものである。

## 2. パターン分析

### 2.1 パターン分析

パターン分析に供した試料を表 I に示し、通し番号①～⑫を付けた。また、珪酸鉱物(クリストバライト, 石英, トリディマイト)の有無を○印でそれぞれの欄に示し、印の大きさをそれぞれの回折線の高さに反映させた。なお、括弧の付いたものは後述する熱リン酸処理後の有無を表している。更に、次章に述べるリートベルト解析をしたものについては Rietveld の欄に求めた格子定数  $a$ ,  $c$  を記した。また、図 1～3 に未処理の粉末 X 線回折パターンを示し、図 4～6 に熱リン酸処理後の X 線パターンを示した。C はクリストバライト, Q は石英, T はトリディマイト, F は長石の回折線を示している。

築山古墳の石棺については箱部と蓋部についてサンプリングした(表 I ①②)。この両者は、いずれもクリストバライトの非常に高い回折線が見られることや長石の形態も一致することから、同一パターンであるとした。即ち、この石棺の箱部と蓋部の原産地は同一であるとした。

次に前述したとおり築山古墳の石棺の原産地は馬門とされているが、その露頭は岩相の違いから 20 層に区分されている。そのなかの 15 試料について回折パターンを求めた結果、クリストバライトの回折線の高低、石英の有無、長石の形態により二つのタイプに分類した。一つは 11 試料、他方は 4 試料となった。前者の 11 試料については、クリストバライトの高い回折線が見られ長石も確認でき、更に石英の回折線が僅かながら認められる。このパターンは馬門 14 (表 I, 図 1 ④) に代表され、その 11 試料を一括してタイプ 14 と呼ぶこととする。残りの 4 試料は、クリストバライトの回折線は低く、長石はタイプ 14 と異なった形態を示し、石英は認められなかった。このパターンは馬門 7 (表 I, 図 1 ③) に代表され、その 4 試料を一括してタイプ 7 と呼ぶこととする。

まず、築山古墳の石棺をタイプ 7 と比較すると、タイプ 7 のクリストバライトの回折線

表 I 石棺石材・露頭関連試料一覧

試料名	Cristobalite	Quartz	Tridymite	Rietveld	
				a [Å]	c [Å]
石棺石材試料					
①岡山県邑久郡長船町築山古墳石棺箱部	○	(○)		4.97301	6.93557
②岡山県邑久郡長船町築山古墳石棺蓋部	○	(○)		4.97419	6.93350
露頭関連試料					
③熊本県宇土市網津町馬門7 (タイプ7)	○	—			
④熊本県宇土市網津町馬門14 (タイプ14)	○	○		4.97428	6.93432
⑤大分県玖珠郡九重町粟野 (阿蘇溶結凝灰岩)	○	○		4.97435	6.93586
⑥鹿児島県始良郡加治木町和久里 (入戸火砕流)	○	(○)		4.97441	6.93368
⑦鹿児島県鹿児島市小野町 (小野石)	○	(○)			
⑧福島県西白河郡西郷村柏野 (白河石)	○	◎		4.97501	6.93717
⑨群馬県吾妻郡六合村大子付近	○	○		4.97225	6.93304
⑩福島県須賀川市江持 (江持石)	○	(○)	○		
⑪栃木県那須町芦野 (芦野石)	○	○	(○)		
⑫群馬県新田郡藪塚本町 (藪塚石)	○	○			

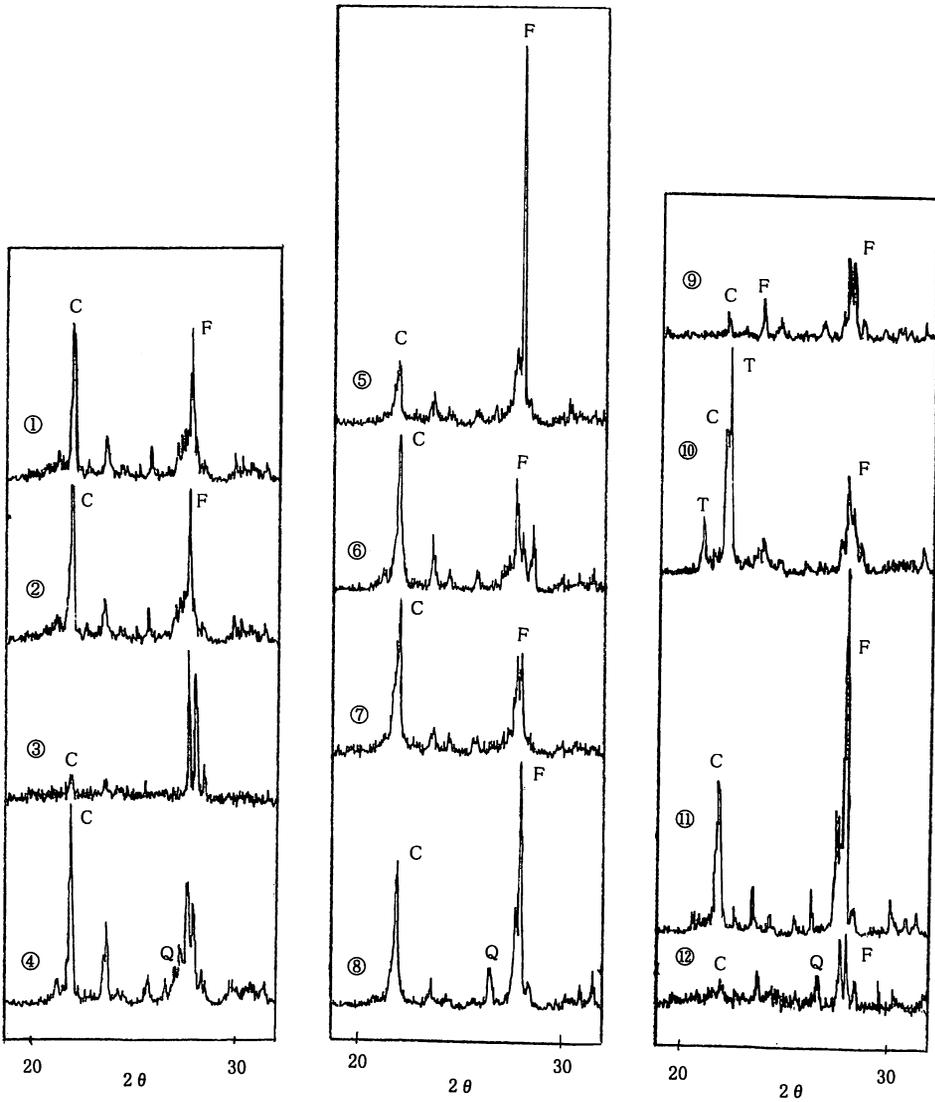


図1 粉末X線回折パターン  
①~④  
C:クリストバライト  
Q:石英  
F:長石

図2 粉末X線回折パターン  
⑤~⑧  
C:クリストバライト  
Q:石英  
F:長石

図3 粉末X線回折パターン  
⑨~⑫  
C:クリストバライト  
Q:石英  
T:トリディマイト  
F:長石

が極めて低く、またガラスが多いことから、明らかに異なるパターンと考えられる。即ち、馬門を産地とすることは不可能との結果となった。次に、タイプ14と比較すると、クリストバライトが高いことや長石の形態が一致し、ほぼ同一のパターンと考えられる。即ち、タイプ14からは原産地と考え得る結果となった。しかし、更に詳細に観察すれば、このタイプ14には石英の回折線が僅かながら認められる。これに対して、石棺には石英が全く見られないことから完全なパターン的一致とは見られず、馬門を原産地とすることに若干の

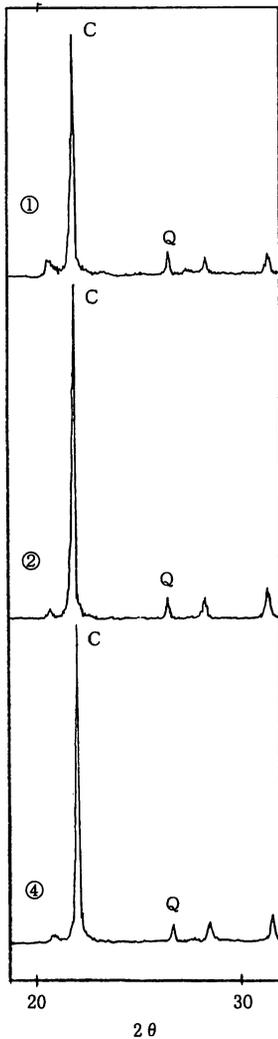


図4 熱リン酸処理後の粉末X線回折パターン①②④  
C: クリスタバライト  
Q: 石英  
F: 長石

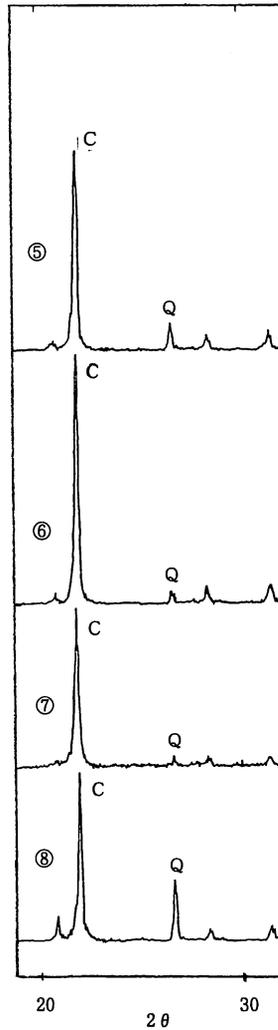


図5 熱リン酸処理後の粉末X線回折パターン⑤~⑧  
C: クリスタバライト  
Q: 石英  
F: 長石

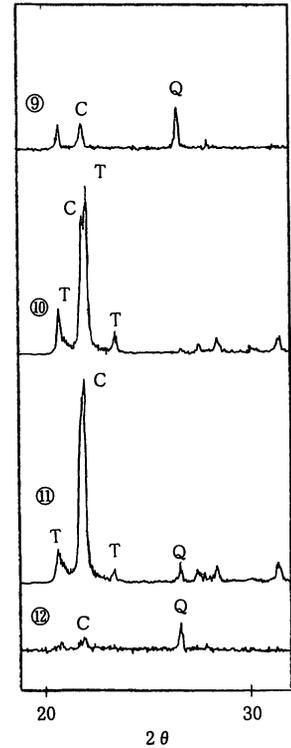


図6 熱リン酸処理後の粉末X線回折パターン⑨~⑫  
C: クリスタバライト  
Q: 石英  
T: トリディマイト  
F: 長石

疑義を挟むこととなった。

## 2.2 熱リン酸処理

長石が珪酸鉱物に対してその回折線を覆うことがあるので、長石を除去してのパターンを比較することを考えた。これに関して、珪酸鉱物に殆ど影響がなく、珪酸塩鉱物を完全に除去できる熱リン酸処理を試みた。築山古墳の石棺箱部・蓋部及び馬門14 (図1 ①②④) に対してこの処理を施した(図4 ①②④)。その結果、築山古墳の石棺両部の未処理のパターンには見られなかった石英の回折線が僅かながら見られ、その存在を知り得た。この処

理後の石棺と処理後の馬門14を比較すると、残ったクリストバライトと石英の相互関係がよく一致した。

以上から、築山古墳の石棺の原産地は、従来通り馬門であり、なかでもタイプ14に属する露頭と結論したい。

ここで馬門以外の他産地の溶結凝灰岩の傾向との比較も必要であると考え、遠隔地であることや運搬手段の関係等の考古学的な見地から、従来岡山県内の石棺の原産地としては全く考慮されなかった溶結凝灰岩について、そのなかで石材として採掘されてきたものについて、上記と同様な手法を試みて比較した。なお、クリストバライトを欠く石材溶結凝灰岩については記載を省略した。

まず、各試料のパターンの特徴は、大分県産の阿蘇溶結凝灰岩(図2⑤)は、長石の極めて大きな回折線がある。鹿児島県産の入戸火砕流(図2⑥)は、クリストバライトの高い回折線があり長石の形態は築山古墳の石棺とよく似た傾向を示す。同県産の小野石(図2⑦)は、クリストバライトの大きな回折線があり、長石の大きな回折線が見られる。福島県産の白河石(図2⑧)は、他産地よりも大きい石英の回折線が見られる。群馬県吾妻郡産(図3⑨)は、クリストバライトの非常に低い回折線あり、また石英が認められる。福島県産の江持石(図3⑩)は、トリディマイトの高い回折線が見られる。栃木県産の芦野石(図3⑪)は、石英が認められ、長石の大きな回折線が見られる。群馬県の藪塚石(図3⑫)は、クリストバライト、石英及び長石のいずれの回折線も認められるが極めて低く、ガラスが多い傾向がある。

次に、これらの試料にも前述したようなことからリン酸処理を施した結果(図4～図6)、いずれの試料からも僅かながら石英の存在が認められ、溶結凝灰岩中には普遍的に存在することが考えられた。また、芦野石(図6⑪)からはトリディマイトが認められた。

なお、入戸火砕流については、築山古墳の石棺と馬門よりもよく一致し、考古学的に考慮の対象にされないものについても一致するものがあることを知り得た。

### 3. リートベルト解析

パターン分析において、築山古墳の石棺と馬門が一致することを熱リン酸処理を併用することから結論付けたが、更に確実なものとするために次のことを考えた。即ち、同一層準の溶結凝灰岩であれば、クリストバライトは一定の格子定数を示すものと考えて、上記両試料中について比較することを試みた。

クリストバライトの格子定数を求めるにあたっては、正確な値を求めるためにクリストバライトを単独で抽出することが不可欠である。しかし、溶結凝灰岩中のクリストバライトの生成過程からすれば、これは極めて困難であることは明瞭である。そこで、前述の熱リン酸処理をした試料について格子定数を求めることにした。しかし、この処理でも除去不可能な火山ガラス及び必ず伴う石英を消去するためリートベルト解析法を用いることと

した。使用したプログラムは、RIETAN (Izumi, 1985) である。理想的粉末パターンを求める構造データは、クリストバライトの格子定数に  $a = 4.69637[\text{\AA}]$ ,  $c = 6.92563[\text{\AA}]$ <sup>6)</sup> を用いた。

消去する石英と火山ガラスについては、まず石英に対して、その格子定数  $a = 4.912397[\text{\AA}]$ ,  $c = 5.40385[\text{\AA}]$  (Willetal, 1988) を用いた。

次に問題は火山ガラスの消去であるが、V. Bouska<sup>7)</sup>が、火山ガラスのパターンは、vitreous silica 即ちガラス質シリカのパターンが最も類似するとしていることに注目して、便宜上バイレックスガラスを用いることを試みた。即ち、市販の粉末クリストバライト (Respirable Cristobalite Quantitative XRD Standard) とこれにバイレックスガラスを混合した両試料についてのリートベルト解析の結果、両者のずれは  $a$ ,  $c$  共に  $\pm 0.0005[\text{\AA}]$  に止まったので、バイレックスガラスの回折パターンをもって、溶結凝灰岩中の火山ガラスを消去し得るものとした。なお、トリディマイトが存在する試料については、トリディマイトがクリストバライトと一部、極めて近接する回折線を持つことから、この解析の対象から外した。

上記のような方法によりクリストバライトの格子定数を求めた結果を表 I 及び図 3 に示した。図 3 は、縦軸に  $a$ , 横軸に  $c$  をとり、その格子定数の分布を示したものである。なお、リートベルト解析による格子定数のばらつきは  $\pm 0.0003[\text{\AA}]$  と考えている。このばらつき値は次のように求めた。熱水性石英脈を構成する石英を  $1500^{\circ}\text{C}$  で 24 時間加熱して生成したクリストバライトと得られたクリストバライトに熱リン酸処理を施したものに対してリートベルト解析した。その結果は、この両者の差違がリン酸処理によるものかリートベルト解析そのものによるものかは不明であるが、いずれにしても今回の方法である熱リン酸処理後にリートベルト解析する場合のばらつき値とみなした。

まず、築山古墳の石棺蓋部 (表 I, 図 7 ②) を馬門 14 (表 I, 図 7 ④) と比較するとリートベルト解析によるばらつき最大の範囲内に求められた。また、入戸火砕流 (表 I, 図 7

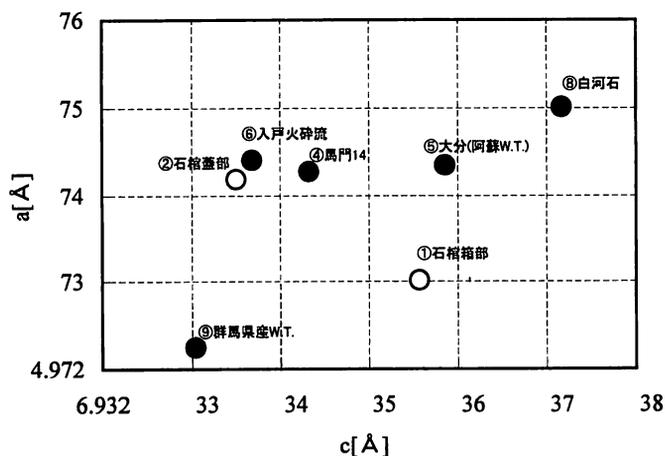


図 7 クリストバライトの格子定数  $a$ ,  $c$  の分布傾向

⑤)とは前述したパイレックスガラスによるずれの範囲に求められ、馬門14(表I, 図7④)よりも更に近くに求められた。次に箱部(表I, 図7①)を馬門14(表I, 図7④)と比較するとばらつきの範囲を大きく脱する結果となった。しかしながら、馬門と同源の火砕流とされる大分県産の阿蘇溶結凝灰岩(表I, 図7⑤)との図上での距離を考慮すれば、箱部は馬門14及び大分県産からその距離とほぼ同程度の隔たりと見なされ、他のいずれよりもこの二つに近い位置関係を示した。

以上から、築山古墳の石棺の蓋部に関しては馬門露頭を原産地とする従来の結果を完全に支持する結果を得た。しかし、箱部についてはこの支持には若干の疑問を残す結果となった。

#### 4. 終わりに

溶結凝灰岩中のクリストバライトの生成機構や過程からすれば、入戸火砕流の溶結部の例が示すように、時代も地域も起源火山活動も異なるものについても、それら格子定数が一致することは当然可能なことである。従って、格子定数のみによる原産地の推定は不可能であることは云うをまたない。しかし同一地点且つ同一層準であれば同値を示すことに着目したものである。即ち、パターン分析の結果或いは考古学的考慮から提言された結果を、更に追認するために極めて有効な手段としてその実用を提唱するものである。

また、石器石材の岩石が、例えばサヌカイトのような組織が極めて小さく均質な場合と異なり、溶結凝灰岩ではその最大の特徴であるそのユータキシティック組織がしばしば粗なため、相当量の採取試料が必要となる。これに対し、原岩は別として、石器の破壊試料は少量に限られるのが通常であれば、粉末X線回折パターンの比較には自ずから限度を予期せざるを得ない。これを補う手法としてこの方法の有効性を提唱するものである。

なお、馬門露頭からの15試料は、いずれも石材の採掘跡の状況及び古墳時代の採掘技術・製器技術に基づく考古学的な考察から軟溶結部のみに限ったが、これに対して他産地の溶結凝灰岩として扱ったものはいわゆる強溶結部も含まれていることを付記したい。

今後更に試行を重ねたく、差し当たっては同じく岡山県内で築山と同じく阿蘇溶結凝灰岩とされ更には馬門産とされているものの、岩相が築山とは明らかに異なる造山古墳の石棺に対してもアプローチを考えている。

#### 謝 辞

岡山県古代吉備文化財センター福田正継課長補佐には、県内の試料収集に便宜を図っていただいた。また、熊本県宇土市教育委員会の高木恭二先生には、“阿蘇ピンク石”をNHKテレビで放映以来、西日本各地の多数の石棺試料と提唱された馬門の露頭の詳細な試料の供与を惜しまれなかった。本研究の推進に、その一部を使用させていただいたことを改めて記し、御礼言上としたい。

## 参考文献

- 1) 逸見吉之助：X線回折法による岩石の同定，倉敷考古館研究集報第9号，倉敷（昭和49年）
- 2) 間壁忠彦・間壁霞子：石棺研究ノート(1)，石棺石材の同定と岡山県の石棺をめぐる問題，倉敷考古館研究集報第9号，倉敷（昭和49年）
- 3) 高木恭二・渡辺一徳：石棺研究への一提言 — 阿蘇石の誤認とピンク石石棺の系譜 —，古代文化，第42巻第1号，京都（平成2年）
- 4) 奥田 尚：自然科学を考古学に応用するにあたって，古代学研究第118号，大阪（昭和63年）
- 5) 松崎琢也・新東晃一・小林祥一・三宅 寛：日本文化財科学会第15回大会研究発表要旨集，216-217（1998）
- 6) W. W. Schmahl, I. P. Swainson, M. T. Dove and A. Graema-Barber : Zeitschrift fur Kristallographie **201**, 125-145 (1992)
- 7) Vladimir Bouska : Natural glasses in english, Czechoslovakia (1993)

## Lattice Constant of Cristobalite in Pyroclastic Flow Deposits

— Application of it's constant to presuming locality of stoneware —

Takuya MATSUZAKI\*, Koichi SHINTO\*\*, Shoichi KOBAYASHI\*\*\*  
and Hiroshi MIYAKE\*\*\*\*

\*Master of Science,

\*\*\*\*Faculty of Science,

Okayama university of science

Ridai-cho 1-1, Okayama 700-0005 Japan

\*\*Kagoshima prefectural archeological center

6252 Hiramatsu, Aira-cho, Aira-gun, Kagoshima 899-5652, Japan

\*\*\*College of Science and Industrial Technology,

Kurashiki university of science and the arts,

2640 Nishinoura, Taurajima-cho, Kurashiki 712-8505, Japan

(Received October 5, 1998)

The locality of material rock used for stone coffins made of welded tuff has been presumed mainly by the X-ray powder diffraction pattern analysis. Some welded tuff contains cristobalite and we have already reported the fact that there is 0.1% variation of the cristobalite's lattice constant depending on the locality and occurrence when it is defined by the Rietveld method with the thermal phosphoric acid treatment. This time we picked up a historic site in Tsukiyama, Osafune-cho, Oku-gun, Okayama prefecture, using the fact for more detailed presumption of the locality.