

## クリストバライトによる溶結凝灰岩製石棺の産地推定

山口 一裕\*・福田 正継\*\*・三宅 寛\*

\*岡山理科大学理学部基礎理学科

\*\*岡山県古代吉備文化財センター

(1999年11月4日 受理)

### 1. 緒言

古墳から出土する溶結凝灰岩製の石棺石材の原産地は、従来、肉眼的・顕微鏡的岩相、鉱物組成、全岩の粉末 X 線回折法 (XRD) などにより推定されてきた<sup>1)~3)</sup>。これに対し、筆者らは、①殆どの溶結凝灰岩中にシリカ鉱物 (石英、トリディマイト、クリストバライトの三鉱物で化学式はいずれも  $\text{SiO}_2$ ) が含まれ、特にクリストバライトが予期以上に多くの産地で特徴的に含有されていること②このクリストバライトの含有量が産地、更には層準によって広い幅で消長すること③更にはクリストバライトの格子定数 (低温クリストバライト、正方晶系、a, b) が産地によってわずかながら (約 0.06%) 変動することに注目し、従来の産地推定方法にこれらの事実を加味した新しい推定方法とその応用例について報告してきた<sup>4~6)</sup>。クリストバライトの含有量の著しいものについては、岡山県にある築山古墳の石棺石材を例に産地推定を行い、その有効性について報告した<sup>5)</sup>。そこで、本研究では、すでにその原材として二上山溶結凝灰岩と阿蘇溶結凝灰岩が挙げられてきている岡山県内の造山古墳 (岡山市) と小山古墳 (山陽町) の石棺について、クリストバライトの含有量の極めて少ない例として、石材産地の推定の可能性について検討した。

### 2. 試料と実験

造山・小山古墳の石棺は、いずれも関係する神社の境内に野ざらしに放置されており、これから比較的採取しやすく、かつ新鮮な部分を選んで試料とした。いずれも色調は灰色から暗灰色を呈し、肉眼でレンズ状に引き伸ばされた火山ガラスが認められ、溶結凝灰岩の特徴を示している。また、顕微鏡下では、斑晶としては長石類が見られ、岩石片としては火山ガラスが多く見られ、あまり脱ガラス化が進行していない。これらと比較する露頭試料として、二上山地域からは3地点5試料、阿蘇地域ではすでに指摘されている熊本県宇土市馬門より7試料、これに加え同一層準 (ASO-4) とされている大分市竹ノ上地域の強溶結部からの3試料を馬門産に対応すべく求めた。

石棺試料と比較試料の溶結凝灰岩をタングステン乳鉢で粉砕し、めのう乳鉢で#200以下の粉末試料とした。試料中のシリカ鉱物の種類と相対的含有量を求めるために、これらの粉末試料に熱燐酸処理を行い、長石や粘土鉱物などの珪酸塩鉱物を除去した。熱燐酸処理した試料中の鉱物組成と相対的含有量を求めるため、粉末 X 線回折 (XRD) 法を行った。また、溶結凝灰岩の全岩の化学組成を蛍光 X 線分析法により求めた。

### 3. 結果と考察

造山と小山古墳の石棺試料の XRD パターンを図 1 に示す。回折パターンは互いに類似し、 $2\theta$  で  $23^\circ$  付近にかけて火山ガラスの存在によるブロードな回折線が見られる。また、長石類の回折線ピークが卓越している。この結果は、顕微鏡下での観察結果と調和的である。ちなみに、二上山産の試料は、クリストバライトの回折線ピークが存在することから、火山ガラスの脱ガラス化が進んでいるものと思われ、ガラス部分が少ないという特徴が見られる。溶結凝灰岩は冷却過程で火山ガラスが脱ガラス化し、クリストバライトなどに結晶化することが知られている。阿蘇溶結凝灰岩のガラス質な部分 (弱溶結部分) では、長石類の回折線が卓越し、クリストバライトの回折線ピークは顕著ではない。どちらも長石類の回折線と火山ガラスのブロードな回折線が見られるのみで、その他の鉱物の回折線は認められなかった。このように長石類の存在によ

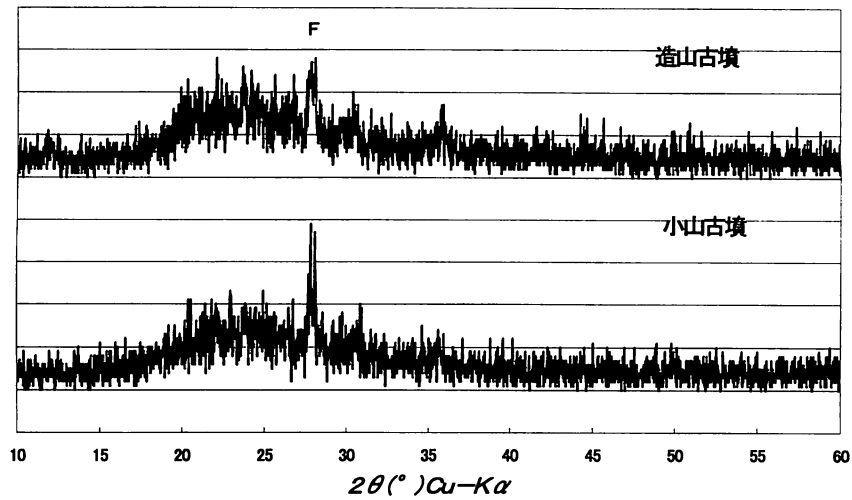


図1 溶結凝灰岩のXRDパターン(未処理)

F:長石類

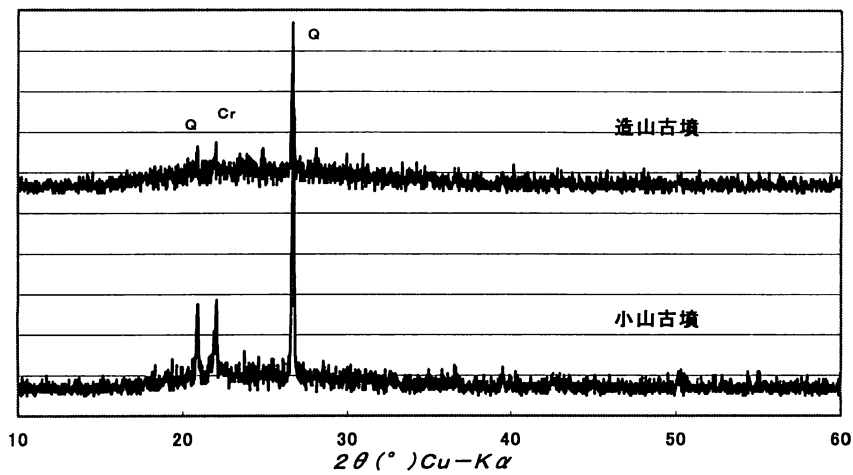


図2 溶結凝灰岩のXRDパターン(燐酸処理後)

Q:石英 Cr:クリストバライト

リクリストバライトの回折線ピークが隠されてしまうので、熱燐酸処理を行うことによって、長石類やその他共存すると思われる粘土鉱物を溶解して、シリカ鉱物の鉱物組成と相対含有量を検討した。両石棺試料の熱燐酸処理後のXRDパターンを図2に示す。長石類の回折線は消失し、石英の回折線とわずかながらクリストバライトの回折線が現れ、長石類の影響を除去することができた。溶結凝灰岩の燐酸処理後のシリカ鉱物組成と相対含有量を比較した結果を図3に示す。石英とクリストバライトの相対含有量の違いによって馬門産溶結凝灰岩のうちM-2,M-10に見られるようなクリストバライトの相対含有量が少なく、石英が多いものと、馬門産のM-7や二上山産に見られるようなクリストバライトの含有量が多く、石英が少ないものの二つのパターンに分類されることが明らかになった。さらに、クリストバライトと石英の量的関係をより詳細に検討するために、溶結凝灰岩のクリストバライトと石英の相対X線回折強度の関係を図4に示す。上述したようにクリストバライトと石英の量的関係によって大きく二つのパターンに分離している。両石棺の分布

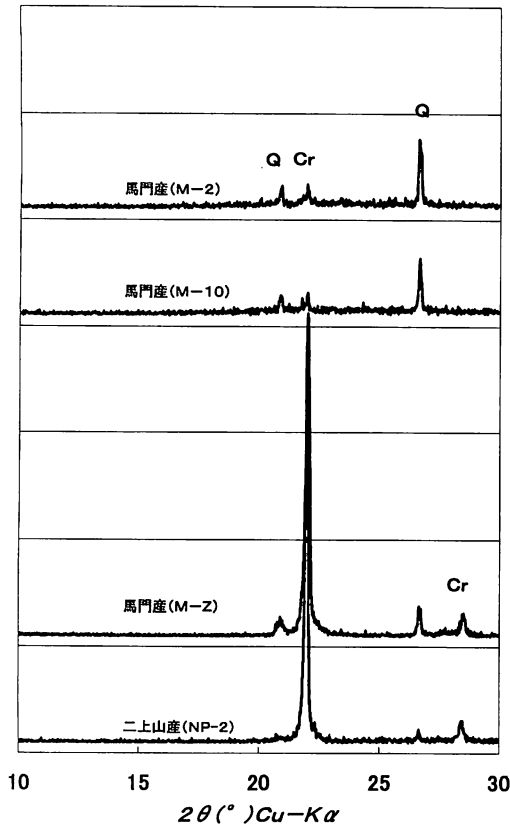


図3 溶結凝灰岩のXRDパターン  
(燐酸処理後)

は、近傍にプロットされることがわかり、クリストバライトと石英の量的関係から見ると両石棺の凝灰岩が類似していることがわかる。石棺と同様の分布をする凝灰岩は、馬門産の一部と大分市竹の上産のものであることがわかる。二上山産や馬門産の残りはクリストバライトが多い分布を示している。ちなみに、著者らの報告で阿蘇溶結凝灰岩製であると考えられた岡山県長船町築山古墳出土の石棺は、クリストバライトが多く、石英が少ない領域に分布することがわかる。このことより、築山古墳のものは、馬門産のクリストバライトの多いものに類似していることがわかる。

表1に燐酸処理後のクリストバライトと石英の量的関係とともに肉眼観察結果をあわせて示した。岩石の色調、硬さ、火山ガラスの量、燐酸処理後のシリカ鉱物組成などを考慮すると、両石棺と類似した特徴を有している原材としては馬門産5試料が考えられる。また、シリカ鉱物組成の類似性から見ると同じ阿蘇溶結凝灰岩である大分市竹の上産3試料も原材の候補として挙げられる。

全岩分析により求めた SiO<sub>2</sub> 含有量と熱燐酸処理後の(101)回折線強度から

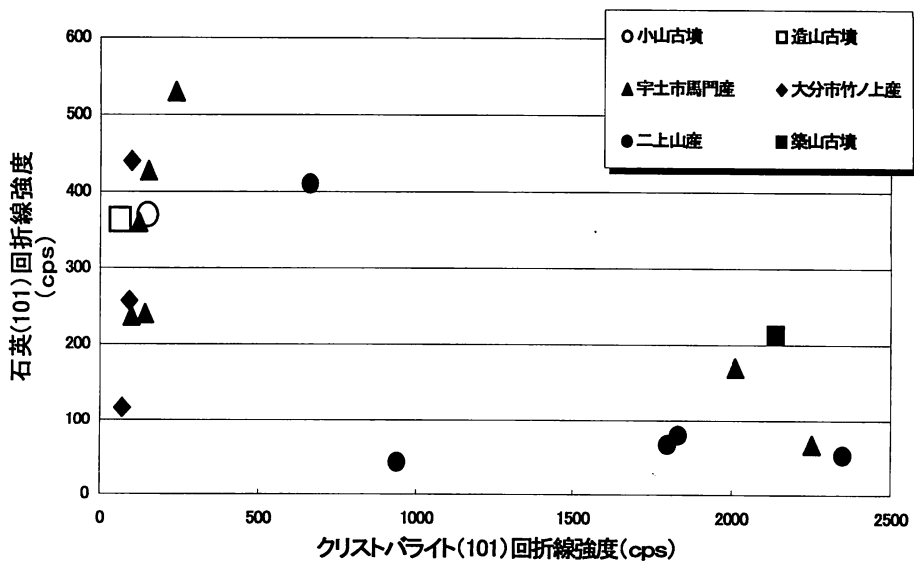


図4 溶結凝灰岩のクリストバライトと石英の相対X線回折強度

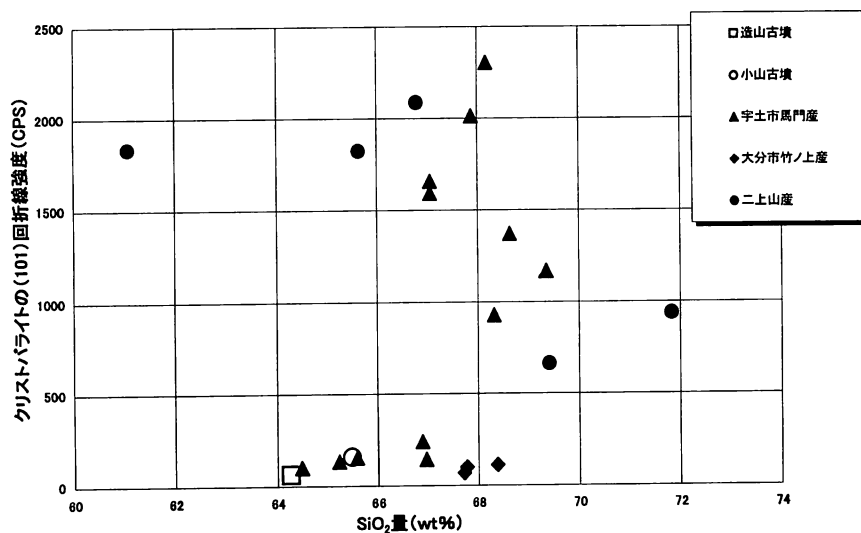
表1 溶結凝灰岩の肉眼観察結果と粉末X線回折法により求めた鉱物組成

試料名	色	硬さ	未処理					磷酸処理後				採取地	
			Cr	Q	T	G	F	Cl	C	Q	T		G
石棺	造山古墳	灰	軟	△	◎	○			△	◎	○		岡山市新庄下造山古墳
	小山古墳	濃灰	やや硬	△	◎	○			○	◎	○		赤磐郡山陽町小山古墳
馬門産	M-1	灰	軟	○	○	◎	◎		○	◎	○		熊本県宇土市網津町馬門
	M-2	灰	軟		△	◎	○		○	◎	○		同上
	M-9	灰	軟	△	△	◎	◎		○	◎	○		同上
	M-10	灰	軟	○	△	◎	◎		○	◎	○		同上
	M-U	灰	軟		○	◎	◎		○	◎	○		同上
	M-Y	白灰	軟	◎				◎	△	△			同上
	M-Z	白灰	軟	◎				◎	○				同上
竹の上産	Oita-1	黒灰	超硬	△		◎	○			◎	○		同上
	Oita-2	黒灰	超硬			◎	○		○	◎	○		大分市竹の上
	Oita-3	濃灰	超硬			◎	○		○	◎	○		同上
	NP-2	淡桃	やや硬	◎	△			○	△	◎	△		奈良県香芝市屯鶴峰
	NP-3	淡桃	やや硬	◎				○	△	◎			同上
二上山産	Don-1	薄灰	軟	○		◎	○	△	◎	○		△	同上
	RX309	褐	硬	◎	△		○		◎	△			大阪府太子町磯岳
	RX311	灰	硬	◎	○	△	○		◎	△			奈良県香芝市二上山

含有鉱物の表示は、Cr:クリストバライト、Q:石英、T:トリディマイト、

G:ガラス、F:長石、Cl:粘土鉱物とする。

ピークの大きさを記号で表し、◎:非常に多い、○:ある、△:少ない

図5 溶結凝灰岩のSiO<sub>2</sub>量とクリストバライト量の関係

求めたクリストバライト量の関係を図5に示す。SiO<sub>2</sub>量は、二上山産の2試料を除いて、すべて狭義のデイサイト領域に広範囲に分布する。この範囲内で両石棺はSiO<sub>2</sub>量、クリストバライト量はいずれも最も低値を示すものであり、このことのみからすれば馬門産3試料が一致する。馬門産のクリストバライト量の変動幅は広いが、当露頭ではピンク色を呈する下層と灰色を呈する上層とが鮮明に区別され、前記石棺に近いもの

はいずれも上層に属するものである。即ち、色調による肉眼識別とよく一致する結果となった。馬門の現在の自然崩壊露頭では灰色即ち上層部は、その堅牢性において小山古墳のものと同様に極めて類似するが、造山古墳の石棺は、より堅固な特性を生かしての作成物であるので、岩相にへだたりがあるもののいわゆる強溶結部といわれている大分市竹ノ上産をあわせて図示したが、 $\text{SiO}_2$ 量が石棺より3~4 wt%程度多い約68wt%の狭い領域に分布する。竹ノ上産の強溶結凝灰岩は、色調が灰黒色で且つガラス質光沢を示し、石棺と同様にクリストバライト量は極めて少ない。Aso-4層には馬門上層とこの強溶結部との中間の岩相を示すものがあるのかもしれない。二上山溶結凝灰岩については色調、 $\text{SiO}_2$ 量とクリストバライト量ともに大きく変動するが、 $\text{SiO}_2$ 量が同程度含有されている馬門のものと比較するとより多くのクリストバライトを含有していることが分かる。

以上から、岩相、色調、硬さなどの肉眼観察結果や顕微鏡観察結果と合わせて、シリカ鉱物の鉱物組成、特にクリストバライトの含有量と全岩分析から得られた $\text{SiO}_2$ 量から検討すると造山、小山両古墳から出土する溶結凝灰岩製石棺の原材は、馬門産 Aso-4 の上層部の溶結凝灰岩に対応するものと推定された。

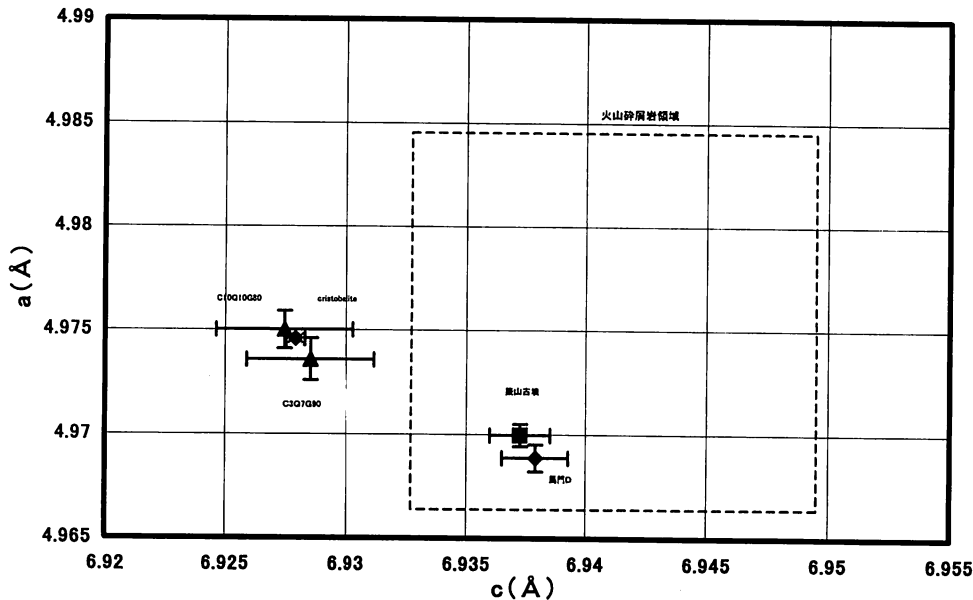


図6 クリストバライトの格子定数

筆者らは、クリストバライトを利用した石材の産地推定の方法をより確かなものにするために、リートベルト解析法によってクリストバライトの格子定数を求めてきた。本例試料のようなクリストバライト量が極めて少量の場合、石英やトリディマイトのようなクリストバライト以外のシリカ鉱物やガラス物質の影響が大きくなり、正確に格子定数を決定することが困難になるが、石材の産地推定の基礎的資料とするために、これらの影響について検討した。XRD用標準試料(NBS1879)粉末クリストバライトに燐酸処理後の石棺の鉱物組成(火山ガラス、石英、クリストバライト)とほぼ同様の組成になるようにパイレックスガラス粉末と合成石英粉末の混合した試料を調整し、リートベルト解析ソフトRIETAN<sup>7)</sup>を用いて格子定数を求めた結果を図6に示す。クリストバライト試料の格子定数と混合試料中のクリストバライトの格子定数は誤差範囲内で一致した。このことより、試料中に存在する火山ガラスや石英の影響をリートベルト解析法で、ある程度除去できるものと考えられる。ただし、共存する石英の含有量が増加すると測定値のばらつきが大きくなる傾向にある。また、精密な格子定数測定のためには十分な量の試料が必要である。クリストバライト含有量が少ない試料では大量の試料を熱燐酸処理する必要があること、石棺は貴重な考古学的資料であり試料採取に制限を受けることなどから、石棺や溶結凝灰岩中のクリストバライトの格子定数は測定中である。さらに、溶結凝灰岩中には一部トリディマイトが共存するものがみられ、トリディマイトの結晶学的データの欠如が

らリートベルト法ではその影響を完全に除去することができず、クリストパライトの格子定数を精密に決定することは現時点では不可能であることがわかった。

#### 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・間壁菫子：石棺研究ノート（1），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，古代文化，第42巻第1号，京都（平成2年）
- 4) 松崎琢也・新東晃一・小林祥一・三宅寛：火砕流堆積物のクリストパライトの格子定数，岡山理科大学紀要，第34号A，109-116（1998）
- 5) 山口一裕・福田正継・三宅寛：日本文化財科学会第16回大会研究発表要旨集，140-141（1999）
- 6) 泉 富士夫：X線および中性子回折図形のRietveld解析，鉱物学雑誌，第17巻第1号，37-50（1985）

## Sourcing of the stone coffins made of welded tuff by cristobalite

Kazuhiro YAMAGUCHI\*, Masatsugu FUKUDA\*\*, Hiroshi MIYAKE\*

\*Department of Applied Science, Faculty of Science  
Okayama University of Science

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

\*\*Ancient Kibi Cultural Properties Center

Nishi-Hanajiri 1325-3, Okayama 701-0136, Japan

(Received November 4, 1999)

The sourcing of stone coffins made of welded tuff excavated from two tomb sites in Okayama prefecture was studied. 15 samples of Aso-4 welded tuff and Nijohsan welded tuff were used as references. The chemical composition of the samples was obtained by X-ray fluorescence spectrometry. The samples were then treated with phosphoric acid to estimate the amount of SiO<sub>2</sub> (cristobalite and quartz). Semi-quantitative analysis of cristobalite and quartz was carried out using a X-ray diffraction analysis. It was clarified that the welded tuff of the stone coffins was similar in the relative amount of cristobalite and the chemical composition to the upper part of Aso-4 welded tuff from Makado in Uto city.