

# 山梨県若手研究者奨励事業 研究成果報告書

所属機関

帝京大学 文化財研究所

職名・氏名

助教 金井拓人

## 1. 研究テーマ

縄文時代以前における山梨県産水晶の流通に関する研究

## 2. はじめに

山梨県は宝飾産業の盛んな地として全国的にも有名であり、その歴史は江戸時代に甲府市の金桜神社の神主が京都の職人から水晶の加工技術を教わったことから始まると伝承されている（甲府商工会議所, 1968）。このように山梨県の水晶利用については近世以降に注目されることが多いが、時代をさかのぼれば石器への利用は旧石器時代から、玉などの装身具への利用は主に古墳時代から開始されていることが知られている。特に水晶製石器は縄文時代の住居によっては黒曜石製石器より多くの量を出土する場合があります、全国的に見ても極めて稀な石器石材利用の姿が推定される。しかし、出土した水晶製遺物のもとになった水晶原石がどこの原産地から供給されたのかについてはほとんど明らかになっていない。そこで本研究では水晶の原産地推定手法を検討し、縄文時代以前における山梨県産水晶の流通を復元することを目的とする。

水晶の産地推定方法は大きく2つの方法に大別される。ひとつは水晶に含まれる水晶以外の鉱物（固相包有物）を利用した原産地推定方法である。Sachanbiński et al. (2008) はポーランド Lower Silesia 区の Jegłowa 2 遺跡から出土した水晶製遺物に含まれる包有物として鋭錐石、カオリナイト、緑泥石、赤鉄鉱、黄鉄鉱などを同定し、Jegłowa-Krzywina 鉱床の水晶に含まれる同様の鉱物を対象にラマンスペクトルを比較することで、Jegłowa-Krzywina 鉱床が水晶製遺物の原産地として有力な候補であることを述べている。また、金井 (2017) は山梨県笛吹市の横堰遺跡から出土した水晶製石器に含まれる電気石の化学組成分析結果から、山梨県甲州市の竹森鉱床が水晶製石器の原産地と考えられることを報告している。

もうひとつの方法は水晶そのものに含まれる微量元素を利用した原産地推定方法である。固相包有物を含まない水晶の原産地推定について、青木 (1983) は赤外線やその他の光学吸収、電子スピン共鳴 (ESR) などを利用して結晶中の不純物元素や格子欠陥を測定することで原産地の差が明らかにできる可能性を指摘している。ten Bruggencate et al. (2013) は二次イオン質量分析 (SIMS) によって水晶中の微量元素 (Ti, Ge, Th, U) 濃度や鉛同位体比を測定することで、水晶や水晶製遺物をグループ分けする方法を提案している。宝石学の観点からは、林ほか (1996) がフーリエ変換型赤外分光分析 (FT-IR) によって得られる赤外線吸収スペクトル（以下、赤外スペクトルとする）の違いが水晶の生成環境の違いを反映していると指摘しており、原産地ごとに異なる赤外スペクトルが示されている。

本研究では赤外スペクトルを用いた水晶の原産地推定手法について検討し、すでに検討が終わっている水晶中の電気石を用いた原産地推定の結果と比較することで、赤外スペクトル法の確立を目指す。さらにこの手法を遺跡出土の水晶製遺物に適用し、縄文時代以前における山梨県産水晶の流通について考察することを目的とする。

### 3. 甲府盆地周縁の水晶原産地と水晶の特徴

甲府盆地周縁には新第三紀の深成岩類が広く分布する（図1）。甲府盆地西方の岩体は甲斐駒ヶ岳花崗岩体と呼ばれる（藤本ほか: 1965, 尾崎ほか: 2002）。甲府盆地の北-東-南を取り巻いて分布する岩体は甲府花崗閃緑岩体と呼ばれ、貫入関係から昇仙峡、徳和、芦川の3つの岩体に細分される（Kato: 1968, Shimizu: 1986, 尾崎ほか: 2002, 佐藤ほか: 2015）。甲斐駒ヶ岳花崗岩体および甲府花崗閃緑岩体の貫入年代は中期中新世の14–8 Maを示す（河野・植田: 1966, 角田ほか: 1992, Saito et al.: 2007）。さらに後期中新世から前期漸新世の7.3–4.3 Maには小鳥深成岩体と小樽山火山岩体からなる東山梨火山深成複合岩体が貫入したと考えられている（三村ほか: 1984, 金丸・高橋: 2009）。

甲府花崗閃緑岩体には多くの鉱床が知られており（図1）、鉱化作用に関連する鉱物のK-Ar年代と母岩となる花崗岩類の放射年代が一致することから、花崗岩類の活動に伴って鉱床が形成されたと考えられている（角田ほか: 1992）。7つの産地からは無色透明な水晶が産出し、色付きの水晶が確認できたのは黒平の灰色透明な水晶と松木尾根の灰色から黒色の透明水晶である。肉眼で観察できる水晶中の包有物として、水晶峠で緑色の針状角閃石が、向山で緑色の針状角閃石および深緑色の平板状緑泥石が、松木尾根で黒色の針状電気石が、竹森で薄茶色の針状電気石がそれぞれ確認できた。なお、角田ほか（2004）は鈴庫の水晶に電気石の存在を報告しているが、本研究では顕微鏡下で観察できる大きさの電気石のみ確認できた。

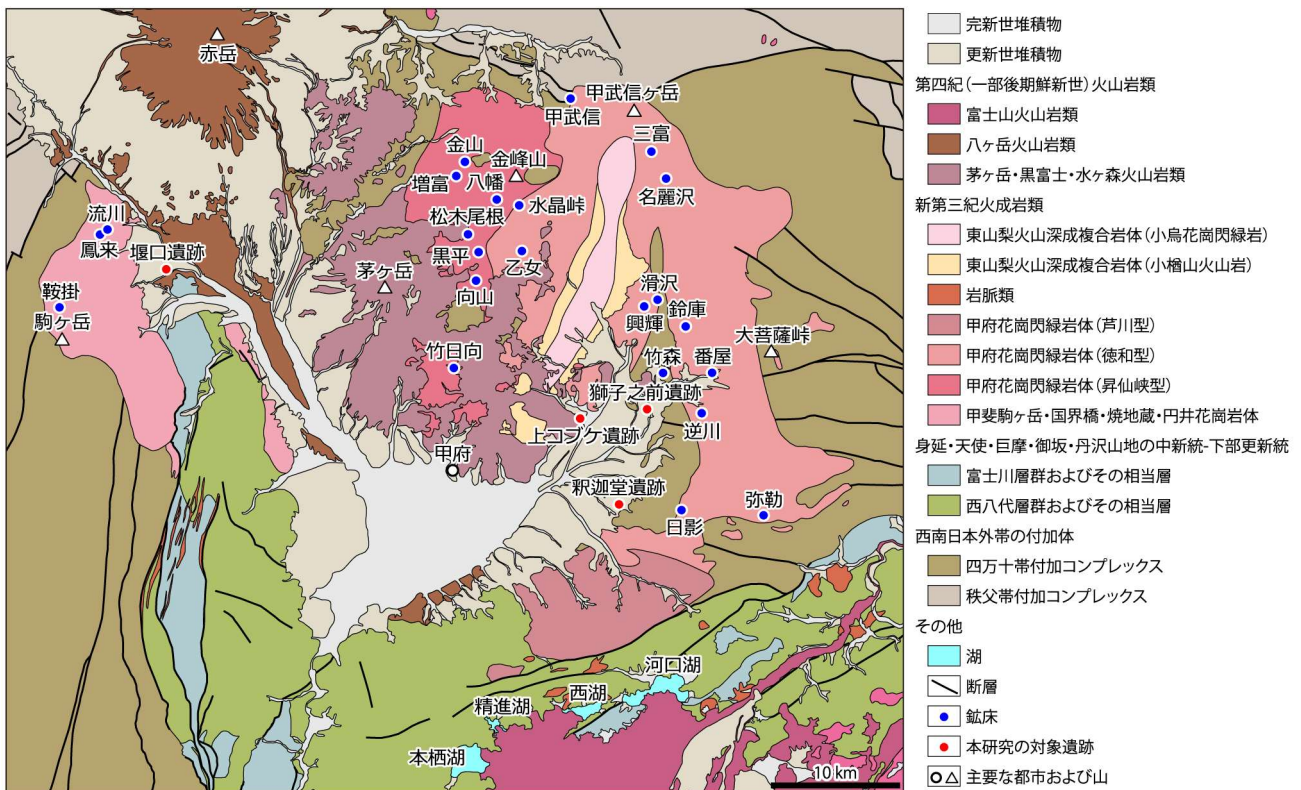


図1 金峰山周辺の地質図および鉱床位置（尾崎ほか（2002）および角田ほか（1992）をもとに作

### 4. 赤外分光分析に基づく水晶の原産地推定

#### 4.1. 分析原理および分析手法

水晶の理想的な化学組成はSiO<sub>2</sub>であるが、実際の結晶には空孔、不純物原子や転位といった様々な格子欠陥が存在する（Götze et al.: 2001）。不純物原子による欠陥として Si<sup>4+</sup>を置換

する  $\text{Al}^{3+}$ 、 $\text{Fe}^{3+}$ 、 $\text{Ti}^{4+}$ 、 $\text{Ge}^{4+}$ 、 $\text{B}^{3+}$ 、 $\text{P}^{5+}$ などの存在が知られている (Krbetschek et al.: 1997, Götze et al.: 2001)。さらに荷電平衡を保つために  $\text{Li}^+$ 、 $\text{H}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Na}^+$ といった元素が侵入し、 $\text{B}^{3+} + \text{Al}^{3+} + \text{Fe}^{3+} = \text{Li}^+ + \text{H}^+ + \text{K}^+ + \text{Na}^+ + \text{P}^{5+}$ といった電荷平衡の組み合わせが考えられている (Dennen: 1966, Müller and Koch-Müller: 2009, Baron et al.: 2014)。赤外光のエネルギー領域は分子振動や格子振動の遷移エネルギー領域と重複し、これらの振動エネルギーに対応した赤外スペクトルとして測定することができる (牧野: 2005)。水晶も不純物元素量に応じた赤外スペクトルを示すと考えられ、その赤外スペクトルは水晶の成因や原産地を反映する可能性がある (林ほか: 1996)。そこで本研究では各遺跡の水晶製石器と原産地の水晶の赤外スペクトルを比較することで水晶製石器の産地推定を試みた。分析には帝京大学文化財研究所所有のフーリエ変換赤外分光分析 (Alpha, Bruker Optics 社製) を利用した。分析法は透過法とし、分析条件は対象波数  $3650\text{--}3100\text{ cm}^{-1}$ 、分解能  $4\text{ cm}^{-1}$ 、スキャン回数 8 回、大気補正ありとした。1 試料あたりの分析回数は 5 回とし、それぞれの分析結果から後述する指標 X および指標 Y の値を算出した後に平均値を求めた。

## 4.2. 赤外スペクトルの解析

水晶の赤外分光分析は前述したように宝飾品としての水晶の鑑定に利用されている実績がある。そこで本研究では Lameiras (2012) を参考に、 $3595\text{ cm}^{-1}$  ( $\text{B}^{3+}$ )、 $3485\text{ cm}^{-1}$  ( $\text{Li}^+$ )、 $3380\text{ cm}^{-1}$  ( $\text{Al}^{3+}$ ) の赤外線吸光度 (図 2a) を利用して原産地判別指標を作成した。指標は指標  $X = \ln(A_{3485}/A_{3380})$  と指標  $Y = \ln(A_{3595}/A_{3380})$  の 2 種類とし、各指標を座標軸とする散布図を作成した (図 2b)。

## 4.3. 水晶製遺物の原産地推定

作成した原産地判別図では散布図内で複数の原産地の分布範囲が重複しているため、個々の資料の原産地を 1 つに特定することは困難な場合が多い。しかし、水晶製遺物の量が比較的多い場合には、散布図内での遺物データの分布を考慮することで、各遺跡において主として利用した水晶原産地を推定することができると考えられる (図 2c)。本研究では旧石器時代および縄文時代の 8 遺跡から出土した水晶製遺物の原産地推定を実施した。

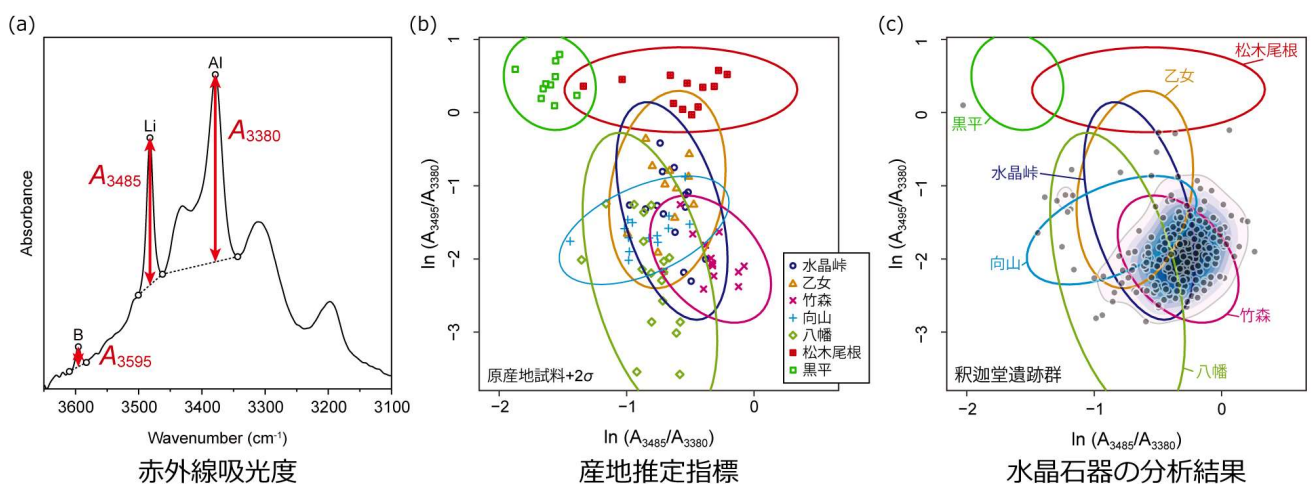


図 2 (a) 水晶の赤外分光スペクトルと、原産地推定に利用する 3 つの吸光度。(b) 7 つの原産地産水晶を利用した原産地判別散布図。(c) 積迦堂遺跡群出土の水晶製遺物を対象とした原産地推定結果。金井ほか (2020) より。

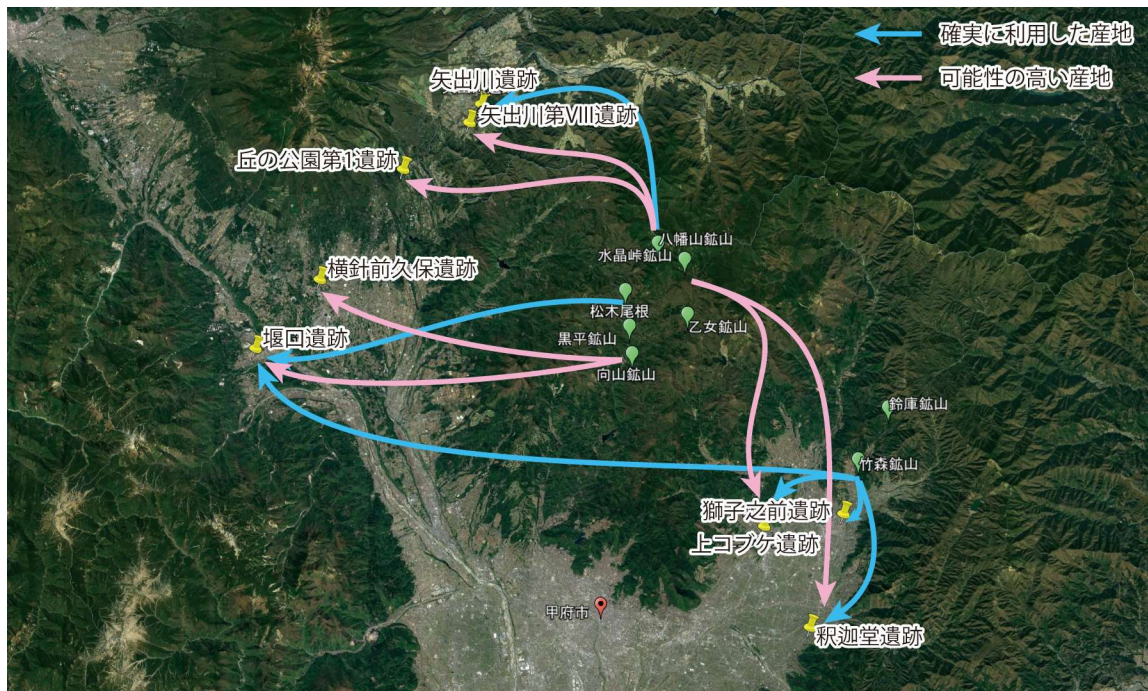


図3 本研究で推定される水晶の原産地と遺跡（消費地）の関係（航空写真は Google Earth を使用）。

解析の結果（図3）、峡東の縄文時代3遺跡（獅子之前遺跡・上コブケ遺跡・釈迦堂遺跡）については甲州市の竹森を主たる原産地として利用していたと推定される。さらに釈迦堂遺跡および獅子之前遺跡については緑色針状の角閃石と考えられる包有物を含む水晶製遺物が認められ、水晶峠の水晶も利用した可能性が高いと考えられる。同じく縄文時代の北杜市堰口遺跡については竹森および松木尾根の水晶を利用していることが確認されたが、最も多くの水晶を獲得したと考えられる原産地については明らかにできなかった。なお、濃い緑色を示す角閃石を包有物として含む水晶製遺物が認められたため、向山を利用していた可能性が高いことが推定される。八ヶ岳南麓で県内では最も古い旧石器の横針前久保遺跡では分析資料が8点しかないため解析の精度が落ちるものの、向山が最も可能性の高い産地と推定される。八ヶ岳東麓の丘の公園第一遺跡・矢出川遺跡・矢出川VIII遺跡については八幡山の水晶を主として利用していたと考えられる。

## 5. 議論

水晶の原産地推定手法としては本研究で検討した赤外分光分析に基づく手法のほかに、水晶中の包有物を利用する手法がある。金井・保坂（2018）は水晶製遺物に含まれる電気石の化学組成分析に基づいて、堰口遺跡・獅子之前遺跡・上コブケ遺跡・釈迦堂遺跡の水晶製遺物の中に竹森を原産地とする水晶が存在することを報告している。本研究ではまず赤外分光分析に基づく原産地推定の結果と、先行研究である電気石を利用した原産地推定の結果の比較を行った。本研究で赤外分光分析を実施した水晶製遺物のうち竹森産と考えられる電気石を含む資料は10資料あり、これらの資料を赤外分光分析で分析した結果、すべてのデータが図1bの楕円内にプロットされた。このことから、赤外分光分析は包有物の化学組成分析同様に原産地推定に利用できると判断できる。一方図2bで示した原産地試料の $2\sigma$ 確率楕円をみると、黒平および松木尾根は比較的独立した領域を持つ。ほかの5つの原産地については $2\sigma$ 範囲が重なっており、この領域にプロットされた1つ1つの資料がどの原産地の水晶

なのかを特定することは困難である。そのため現段階では、水晶製石器のデータの分布範囲と特定の原産地のデータの分布範囲とを比較して、主として利用した原産地を推定するに限定せざるを得ない。赤外分光分析を利用した水晶の産地推定は萌芽段階にあるが、前処理不要かつ非破壊で透明な水晶に適用できる手法であり、今後の原産地データの蓄積が期待される。

前述したように解析結果から得られる情報は限りがあるものの、本研究により峡東地域と中北地域、また八ヶ岳東麓の遺跡で主として利用していた水晶産地が異なっていた可能性が見えてきた。総括すると、各遺跡において特定の原産地の水晶が集中的に利用されているものの、その原産地のみに依存せず他の原産地の水晶も利用されている姿が復元できた。このように石材を特定の原産地のみに依存しないことは黒曜石と同様であり、石器石材獲得の実態を理解するうえで重要な結果を得ることができた。今後は遺跡によって利用した水晶原産地が異なる要因が地理的なものなのか、時代的な違いに基づくものなのか明らかにしたい。そのため、より多くの遺跡から出土した水晶製遺物を対象に原産地推定を実施する計画である。

## 謝辞

資料の分析にあたっては、釈迦堂遺跡博物館（釈迦堂遺跡群）、山梨県立考古博物館（獅子之前遺跡、上コブケ遺跡 B 区）、北杜市教育委員会および北杜市埋蔵文化財センター（堰口遺跡）、北杜市教育委員会および北杜市考古博物館（丘の公園第一遺跡、横針前久保遺跡）、長野県川上村教育委員会および川上村文化センター（矢出川遺跡）、長野県埋蔵文化財センター（矢出川 VIII 遺跡）の協力を得た。山梨市観光課の温井一郎氏には乙女鉱山の調査においてご協力をいただいた。山梨学院大学の保坂康夫博士には赤外分光分析の補助にご協力いただいた。2次元カーネル密度推定にはオックスフォード大学の Brian D. Ripley 教授によるフリー統計環境 R 用パッケージ MASS (Version: 7.3-51.4) に含まれる kde2d 関数を利用した。以上の方々に御礼申し上げます。

## 文献

- 青木孝志, 1983 「水晶考古学」 中村龍雄（編）『矢出川 水晶考古学』 pp. 55–62.
- 尾崎正紀・牧本 博・杉山雄一・三村弘二・酒井 彰・久保和也・加藤碩一・駒澤正夫・広島俊男・須藤定久, 2002 『20 万分の 1 地質図幅「甲府」』 産業技術総合研究所地質調査総合センター.
- 金井拓人, 2017 「石英石器に含まれる針状包有物の同定と石英産地の推定」『横堰遺跡』 笛吹市埋蔵文化財調査報告書 37 pp. 14–16.
- 金井拓人・保坂康夫, 2018 「石英石器産地推定へのアプローチ」『日本旧石器学会第 16 回研究発表・シンポジウム予稿集』 pp. 23–25.
- 金井拓人・保坂康夫・金井麻美, 2020 「水晶の原産地推定：山梨県内の 4 つの縄文遺跡における例」 文化財科学 80 pp. 1–16.
- 金丸龍夫・高橋正樹, 2009 「東山梨火山深成複合岩体を構成する火砕岩類の地質および構造とコールドロンの形成プロセス」 日本大学文理学部自然科学研究所研究紀要 44 pp. 121–137.
- 河野義礼・植田良夫, 1966 「本邦産火成岩の K-Ar dating (IV) -東北日本の花崗岩類-」 岩石鉱物鉱床学会誌 56 pp. 41–55.

- 佐藤興平・柴田 賢・内海 茂, 2015 「甲府盆地周辺の花崗岩体の年代と南部フォッサマグナ地域の構造発達史における意義」 群馬県立自然史博物館研究報告 19 pp. 95–109.
- 角田謙朗・高橋 泰・今井裕之, 2004 「山梨県竹森産水晶の産状」 山梨大学教育人間科学部紀要 6 pp.9–21.
- 角田謙朗・西戸裕嗣・清水正明, 1992 「甲府盆地周縁の花崗岩類に伴う鉍床の K-Ar 年代」 資源地質 42 pp.147–153.
- 林 政彦・間中裕二・高木秀雄, 1996 「天然と合成クォーツ、特に水晶における FT-IR と CL 像による特徴」 宝石学会誌 21 pp. 27–32.
- 藤本丑雄・一木建二・亀井節夫・桂田 保・河内洋佑・宮崎 元・小沢昭三・佐藤芳治・徳岡隆夫・山田哲雄, 1965 「赤石山地北部の花崗岩類と糸魚川–静岡構造線」 地球科学 76, pp. 15–24.
- 三村弘二・加藤祐三・片田正人, 1984 『御岳昇仙峡地域の地質. 地域地質研究報告 (5 万分の 1 図幅)』 地質調査所 61p.
- Baron, M. A., Stalder, R., Konzett, J. and Hauzenberger, C.A., 2014 “OH-point defects in quartz in B- and Li-bearing systems and their application to pegmatites” *Physics and Chemistry of Minerals* 42 pp. 1–10.
- Dennen, E. H., 1966, “Stoichiometric substitution in natural quartz” *Geochimica et Cosmochimica* 30 pp. 1235–1241.
- Götze, J., Plötze, M. and Habermann, D., 2001 “Origin, spectral characteristics and partial applications of the cathodoluminescence (CL) of quartz - a review” *Mineralogy and Petrology* 71 pp. 225–250.
- Kato, Y., 1968 “Petrology of the Tertiary granitic rocks around Kofu Basin, central Japan” *Science Reports of Tohoku University, series 3*, 10 pp. 241–312.
- Krbetschek, M. R., Götze, J., Dietrich, A. and Trautman, T., 1997 “Spectral information from minerals relevant for luminescence dating” *Radiation. Measurements* 27 pp. 695–748.
- Lameiras, F. S., 2012 “The relation of FTIR signature of natural colorless quartz to color development after irradiation and heating” Morozhenko, V. (Ed.) “Infrared Radiation” InTech, Rijeka pp. 41–56.
- Müller, A. and Koch-Müller, M., 2009 “Hydrogen speciation and trace element contents of igneous, hydrothermal and metamorphic quartz from Norway” *Mineralogical Magazine* 73 pp. 569–583.
- Sachanbiński, M., Girulski, R., Bobak, D. and Łydźba-Kopczyńska, B., 2008 “Prehistoric rock crystal artefacts from Lower Silesia (Poland)” *Journal of Raman Spectroscopy* 39 pp. 1012–1017.
- Saito, S., Arima, M., Nakajima, T., Misawa, K. and Kimura, J., 2007 “Formation of distinct granitic magma batches by partial melting of hybrid lower crust in the Izu arc collision zone, central Japan” *Journal of Petrology* 48 pp. 1761–1791.
- Shimizu, M., 1986 “The Tokuwa batholith, central Japan: An example of occurrence of illmenite-series and magnetite-series granitoids in a batholith” *The University Museum, The University of Tokyo, Bulletin* 28 145p.
- ten Bruggencate, R. E., Fayek, M., Brownlee, K., Milne, S. B. and Hamilton, S., 2013 “A combined visual-geochemical approach to establishing provenance for pegmatite quartz artifacts” *Journal of Archaeological Science* 40 pp. 2702–2712.