味の素食の文化センター研究成果概要報告書

＜2018 年度研究助成＞

縄文時代，真脇遺跡ではイルカを食べていたのか!?

–土器脂質分析による日本列島における海棲ほ乳類利用の評価-

東京大学総合研究博物館・宮田佳樹

2020 年 6 月 30 日

＜2018 年度研究助成＞

縄文時代，真脇遺跡ではイルカを食べていたのか!?

－土器脂質分析による日本列島における海棲ほ乳類利用の評価－

宮田佳樹

（東京大学総合研究博物館）

【研究の目的と必要性（背景及び目標、学術的な意義や社会的な効果など）】

写真 1　真脇遺跡（石川県能登町字真脇）

真脇遺跡（石川県能登町）は，縄文時代前期末（約 6000 年前）から晩期（約 2300 年前）にかけて，約 4000 年間に渡って栄えた北陸地方の代表的な遺跡である。前期末に多量のイルカ骨と土器が同時に出土しており，当時の人々が集団でイルカ漁を行い（漁業発祥の地とのキャッチフレーズ！），土器で煮炊きしていたと考えられる最古級の事例でもある。

本研究の目的は，土器に残存する有機物の起源を脂質分析し（手法① 脂質組成（バイオマーカー分析）、手法②分子レベル炭素同位体分析），実際に，土器でイルカのような海棲ほ乳類を煮炊きしていたのかを評価することである。現在，イルカやクジラなどの海棲ほ乳類の保護に関して，国際社会からの関心が高まっているが，我々の祖先は，縄文時代以降，海棲ほ乳類資源を摂取しながら，持続的な文化を営んできたと推定される。したがって，一年間という研究期間（2019 年 4 月～2020 年 3 月）を超えた長期目標は，先史時代から近代にかけての極東アジアにおける海棲ほ乳類と人間との共存関係，食文化を実証的に評価することにつながるはずである。

【研究の特徴（創造性、独自性、発展性など研究の深さや広がり）】

土器で調理した食材を、二つの手法を用いて包括的に復元するのが本研究の肝である。バイオマ

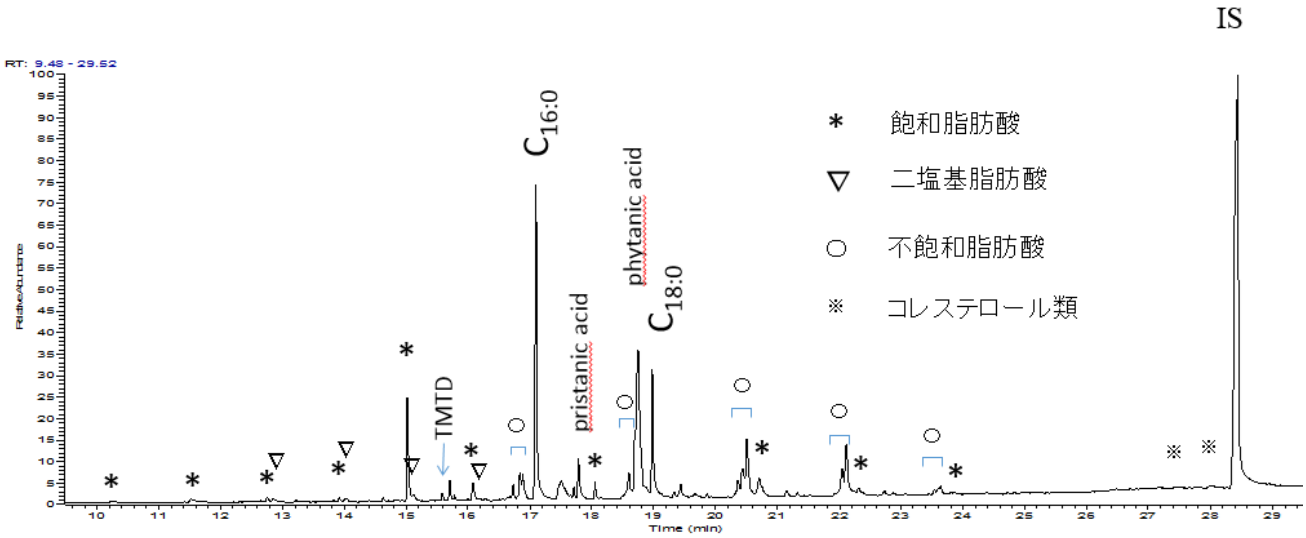

図1　真脇遺跡出土土器(ISMW10)から抽出した脂質成分の部分クロマトグラム

ーカー解析（手法①）は、土器に残存する有機物情報から、調理起源物質を推定する方法である。図１は，真脇遺跡から出土した土器群の代表例として，ISMW 10 から抽出した脂質成分の GC-MS による部分クロマトグラムに主要成分の同定結果を図示したものである。この図を例にバイオマーカー解析を行ってみる。炭素数 14 から 24 までの直鎖状飽和脂肪酸が検出された。特に多いのは，パルチミン酸（$C_{16:0}$）とステアリン酸（$C_{18:0}$）である。また，これまで水棲動物のバイオマーカーとして報告されてきたプリスタン酸，フィタン酸，TMDT などのイソプレノイド類とともに，加熱調理のマーカーである炭素数 16, 18, 20, 22, 24 の環状有機物（Alkylphenyl alkanoic acids, APAA-C_{16}, C_{18}, C_{20}, C_{22}, C_{24}），コレステロール類がセットで検出され，海産物を調理したことを裏付ける結果が得られた。APAA 類は通常天然に存在せず、不飽和脂肪酸が 270℃、ないし、300℃まで加熱されないと生成しないため、土器で煮炊きしたことを示すバイオマーカーである。

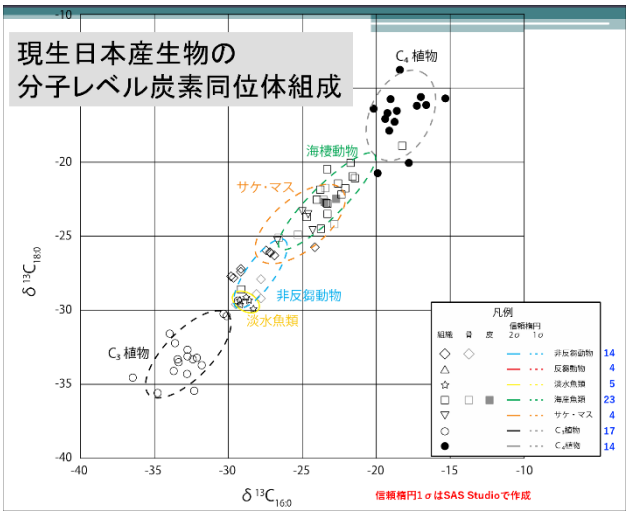

図２． 現生日本産生物のパルミチン酸・ステアリン酸の分子レベル炭素同位体組成。信頼楕円は、1σで示した。

また，土器から抽出した脂質の 80-90%を占める脂肪酸であるパルミチン酸・ステアリン酸の分子レベル炭素同位体組成を、各食材（生物）グループの領域と比較することにより、同位体地球化学的手法②によっても、調理した食材の割合を推定することができる。図２に、その基準となる、現生日本産生物のパルミチン酸・ステアリン酸の分子レベル炭素同位体組成による領域図を示す。C_3 植物、陸獣、サケ・マス類、魚類・海獣類を含む海棲動物、C_4 植物と各食材（生物）グループによって、分子レベル炭素同位体組成の領域が異なることがわかる。

したがって，手法①とともに，手法②を真脇遺跡土器に適用すれば，より確からしく、海産哺乳類利用を評価できるようになる可能性が高いが，手法の信頼性を向上させるために，過去の生態系推定に活用できる，現生の海棲ほ乳類試料の選択が重要である。従って，過去ならびに，現代の海洋環境動態解析に関する学際研究が不可欠である。

また、土器で調理を行うと土器の内面には、「タンパク質」と「炭水化物」を主体とする炭化物が付着する（いわゆる“コゲ“である）。「脂質」は土器胎土やこの内面土器付着炭化物であるコゲに吸着する。一方、土器外面には、燃料材を起源とする“スス”と調理内容物を起源とする“吹きこぼれ”が、炎に炙られて炭化する。したがって、脂質分析を有効に活用することができれば、これら土器残存有機物の起源を詳細に検討することができる。

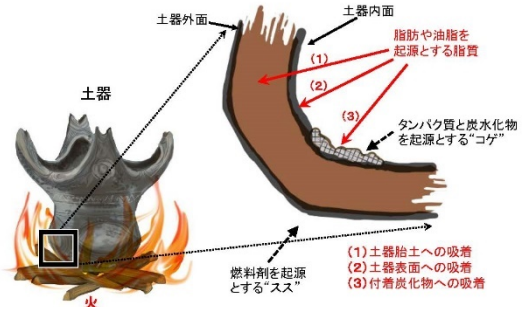

図３． 土器残存有機物とは？

【真脇遺跡出土土器】

試料として用いたのは、縄文時代前期末イルカ層を含み、前期後葉（福浦下層式）から、中期を中

図４． 土器胎土（ISMB6）;土器付着炭化物（ISMB6a）

期初頭（新保式）までの土器胎土 20 試料 20 点と土器付着炭化物 6 試料 9 点である。図４に、分析した蜆ヶ森式土器の胴下部の土器胎土、付着炭化物を一例として示す。

【分析方法】

土器残存脂質の抽出にあたっては， Correa-Ascencio and Evershed (2014)と Papakosta et al. (2015)を改良した Small Scale の直接メチル化脂質抽出分析法を用いた。粉砕した土器試料約 100 mg，及び，内・外面付着炭化物 10-30mg に，内部標準物質としてテトラトリアコンタンを加え，さらにメタノール溶液 2 mL と硫酸 200μL を加えて，70℃で 4 時間加熱後，脂質をヘキサンで抽出する。ヘキサン溶液は，ジクロロメタン飽和脱イオン水を用いて酸を除去した後，窒素気流中で蒸発乾固させ脂質を回収する。

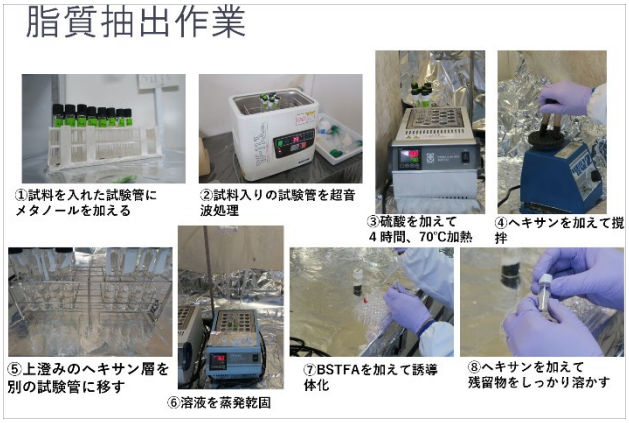

図５． 直接メチル化脂質抽出法

回収した脂質は測定直前にトリメチルシリル化して，ガスクロマトグラフ質量分析装置（GC-MS）で脂質組成を分析し（手法①），燃焼炉付ガスクロマトグラフ同位体比質量分析装置（GC-C-IRMS）でパルミチン酸，ステアリン酸の分子レベル炭素同位体組成（$\delta^{13}C_{16:0}$, $\delta^{13}C_{18:0}$）を測定する（手法②）。分析操作は東京大学総合研究博物館タンデム加速器分析室（MALT）で行った。

図６． ガスクロマトグラフ質量分析装置（手法①）

図７． ガスクロマトグラフ質量分析装置（手法２）

【真脇遺跡出土土器脂質分析結果】

バイオマーカー分析（手法①）の結果の代表例は、図１に示した通りである。以下、土器胎土、付着炭化物、ほぼ全ての試料に共通するバイオマーカーをあげる。パルチミン酸（$C_{16:0}$）とステアリン酸（$C_{18:0}$）を中心とした直鎖状飽和脂肪酸。加えて、水棲動物のバイオマーカーとして報告されてきたプリスタン酸，フィタン酸，TMDT などのイソプレノイド類がフルセットで検出され、さらに、加熱調理のマーカーである炭素数 16, 18, 20, 22, 24 の環状有機物（Alkylphenyl alkanoic acids, APAA-C_{16}, C_{18}, C_{20}, C_{22}, C_{24}），コレステロール類も同時に検出され，海産魚類や海獣類を調理したことを裏付けられるバイオマーカー解析結果が得られた。

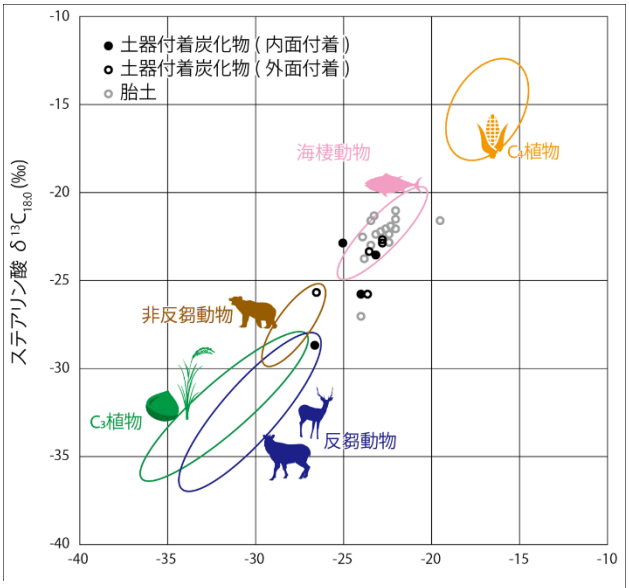

図８． 土器胎土・付着炭化物のパルミチン酸・ステアリン酸の分子レベル炭素同位体組成

次に、パルミチン酸・ステアリン酸の分子レベル炭素同位体組成について考えてみる。図８は、土器胎土と土器付着炭化物の分子レベル炭素同位体組成をまとめて表示したものである。多くの試料のパルミチン酸・ステアリン酸の分子レベル炭素同位体組成は、海棲動物の領域を中心に分布し、海産魚類か海獣類を土器で煮炊きしたとするバイオマーカー分析の結果と整合的である。ここで、土器胎土と土器付着炭化物とに分けて考えてみる。

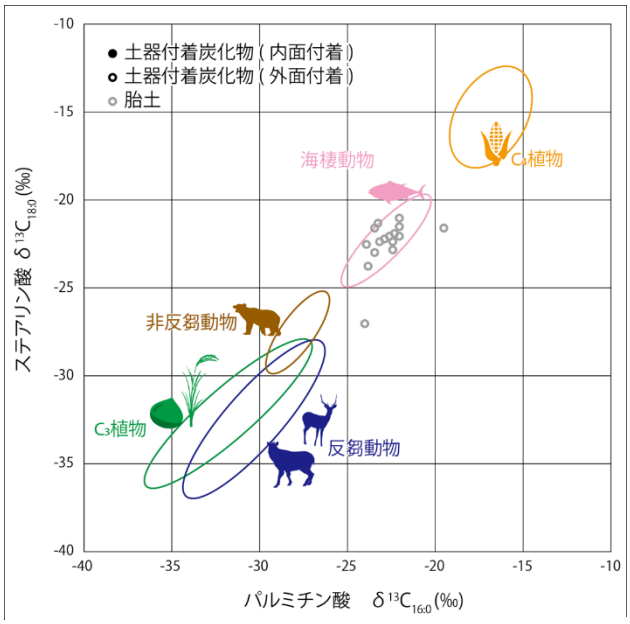

図９． 土器胎土のパルミチン酸・ステアリン酸の分子レベル炭素同位体組成

図９は、土器胎土の分子レベル炭素同位体組成をプロットしたものである。2 点例外があるものの、土器胎土から抽出された脂質はほぼ海棲動物領域の中心に分布しており、非常に均質な同位体組成を示している。つまり、海産魚類・海獣類というバイオマーカー分析の結果と整合的である。

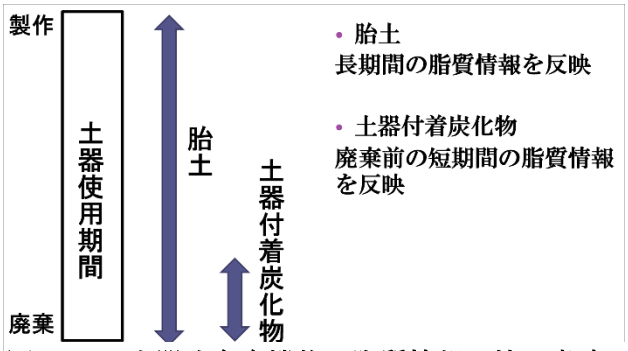

図１０． 土器残存有機物の脂質情報の持つ意味

ここで、土器残存有機物の脂質情報の持つ意味に関して考えてみる。土器付着炭化物は、土器が壊れて、廃棄した直前に生成した炭化物と考えられるため、廃棄直前の非常に短期間の情報を保持していると考えられる。一方、土器胎土には、もし、土器の器種（種類）によって使い分けなどが存在しないならば、土器付着炭化物に比べて、相対的に長い期間の平均的な脂質情報が保存されている可能性が高い。今回の胎土の情報を考えると、おそらく、海棲動物主体とする均質なスープが染みこむようなイメージであろうか。

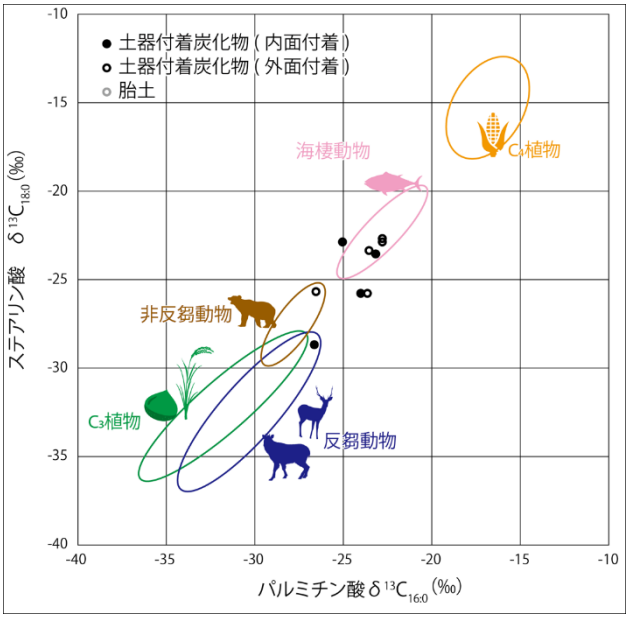

図１１． 土器付着炭化物のパルミチン酸・ステアリン酸の分子レベル炭素同位体組成

次に、土器付着炭化物に関して考えてみる。図１１は、内・外面土器付着炭化物の分子レベル炭素同位体組成をプロットしたものである。海棲動物を主体とするものの、陸獣・C_3 植物、反芻動物などの陸上の生物の影響が伺える。内面に関しては、胎土にみられるような均質なスープとは異なり、不均一な炭化物には、調理内容物の各食材グループ影響が現れる場合があるのであろう。また、外面付着炭化物からも、先述したように、水棲動物のバイオマーカーとして報告されてきたプリスタン酸，フィタン酸，TMDT などのイソプレノイド類が 3 種類検出され、さらに、加熱調理のマーカーである炭素数 16, 18, 20, 22, 24 の環状有機物（Alkylphenyl alkanoic acids, APAA-C_{16}, C_{18}, C_{20}, C_{22}, C_{24}），コレステロール類もほとんどの試料から同時に検出されることから、料理内容物は外面に吹きこぼれて、炭化しているよ

うだ。また、同時に、内面からではなく、外面付着炭化物からのみ、燃料剤に起因すると思われる植物性樹脂に由来する Dehydroabietic acid や植物質のフリーデリンなどが検出されている。外面付着炭化物が、燃料剤に起因するススと調理内容物の吹きこぼれが炭化したものからなるとすれば、土器胎土、内外面土器付着炭化物に見られる脂質組成とパルミチン酸・ステアリン酸の分子レベル炭素同位体組成との関係は、整合的である。

【鳥浜貝塚出土土器脂質分析結果との比較】

同時代の福井県三方五湖周辺にある縄文時代前期の鳥浜貝塚（真脇遺跡が海水性と考えると淡水性と考えてもよいかもしれない遺跡である）の脂質分析結果と比較してみる（図１２）。

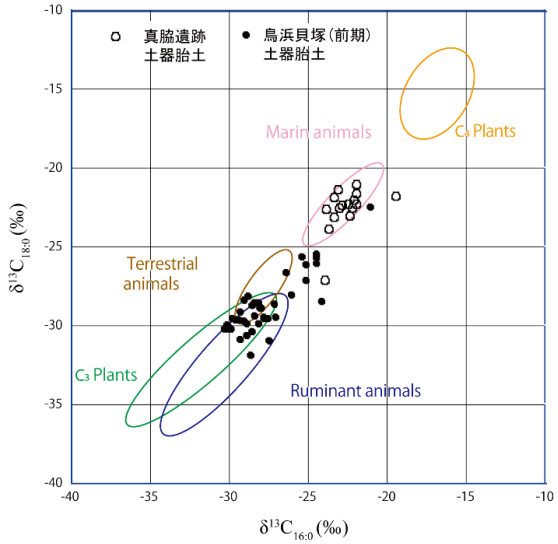

図１２．　鳥浜貝塚と真脇遺跡から出土した土器胎土のパルミチン酸・ステアリン酸の分子レベル炭素同位体組成の比較（Lucquin et al., 2016 改）

鳥浜貝塚と真脇遺跡出土土器胎土の分子レベル炭素同位体組成を比較してみると、縄文時代前期では、鳥浜貝塚よりも、真脇遺跡出土土器の方が、明瞭に均質であり、かつ海棲動物の領域に分布している。遺跡の立地と煮炊きした食材の関係は推定どおりであった。また、鳥浜貝塚から出土した土器内・外面付着炭化物のパルミチン酸・ステアリン酸の分子レベル炭素同位体組成を比較した（図１３）。バイオマーカーに関しては、ここでは省略するが、土器胎土の同位体組成（図１２）は、陸獣の領域周辺に分布しており、C_3 植物から海棲動物にかけて分布する内面付着炭化物や海棲動物や陸獣の影響をうけて、C_3 植物の領域から外れて高い同位体組成を示す外面付着炭化物に比べると、

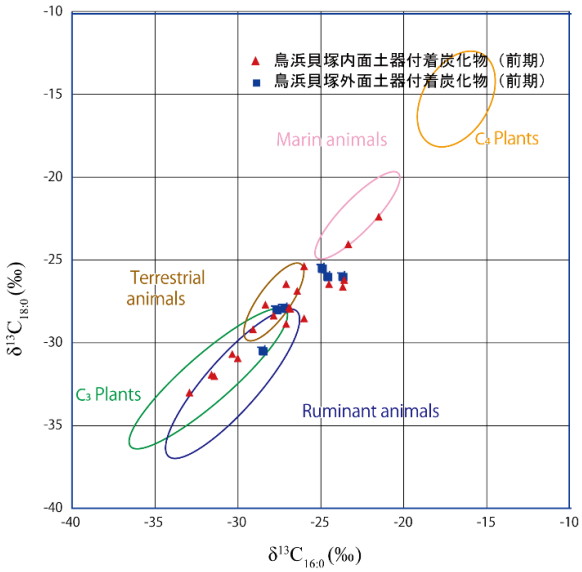

図１３．　鳥浜貝塚から出土した土器内・外面付着炭化物のパルミチン酸・ステアリン酸の分子レベル炭素同位体組成（Lucquin et al., 2016 改）

均一で、遺跡の立地ともある程度整合的と考えられる。

【まとめ】

真脇遺跡出土土器に対して脂質分析を行った。土器胎土、内・外面土器付着炭化物ともに、バイオマーカー解析（手法①）の結果は、非常に均質であり、海産魚類・海獣類の影響を強く示唆した。また、分子レベル炭素同位体分析（手法②）の結果は、内・外面土器付着炭化物よりも土器胎土の方が、均質な同位体組成を示し、海産魚類・海獣類を煮炊きしていた可能性を強く示唆した。

また、土器胎土と内・外面土器付着炭化物間に見られる脂質組成、同位体組成のバラツキの違いは、脂質情報の持つ意味を考慮すると、真脇遺跡、鳥浜貝塚ともに、整合的であった。

同時代にあり、真脇遺跡よりも、陸上生物の影響を受けると推定される鳥浜貝塚の脂質分析結果と比較すると、真脇遺跡の方が、鳥浜貝塚よりも、相対的に海棲動物に依存している。しかし、海獣類のみを煮炊きしていたとは、必ずしも言えない。

現時点では、現生海獣類の参照データの分析数が足らず、パルミチン酸・ステアリン酸の領域図を図２よりも、詳細に作成することができなかった。今後、現生海獣類の分析数を増やし、海獣類と海産魚介類との違いが、バイオマーカーや同位体手法によって、推定できるのかを検討していきたい。