鍾乳石からひとと自然の関わりを紐解く

九州大学名誉教授　**吉村　和久**

1．はじめに

日本の国土の 68.6 %は森林でおおわれており、先進国の中ではフィンランドに次いで高い森林率を誇る。湿潤温帯気候の日本の国土では、仮に草原が存在していたとしても、数十年の間に森へと遷移する。私たちの周りを見渡すと、樹齢が千年を超えるような大木は極めて少ないことに気づく。森林は維持されてきたにもかかわらず大木が少ないのは、ひとと自然の関わりを反映するものである。そればかりでなく、国内各地に現存する草原のルーツは、先史時代、万葉集の時代にさかのぼり、人々の暮らしの中で草原が維持管理されてきたことを物語っている。日本の草原の面積は現在から 100 年前の明治後半には国土の 13%を占め、江戸時代にはもっと広い範囲を占めていた [1]。

このようなひとと自然の関わりの歴史を先史時代にまでさかのぼるには、遺跡から出土する木材、種子殻、炭化種子、花粉などからの植物情報が利用される。有史時代に関しては、植物情報以外に古文書や古絵図、場合によっては万葉集などの文芸作品が有力な情報源となる [1]。ところで、鍾乳石は陸域の古環境記録データベースとして注目を浴びてきた。とくに、Wang ら [2]が中国の複数の石灰洞から採取した鍾乳石、特に石筍の酸素同位体比の変化から過去約 22 万年間のアジアモンスーンの強度変化を復元して以降、鍾乳石を用いた研究はますます盛んになってきた [3]。私たちは、長年にわたってカルスト地域の物質循環の解明に携わってきたが、石筍の年縞を蛍光顕微鏡下で計数することにより、従来の放射性同位体を用いた手法よりも簡便な絶対年代測定法を確立した [4]。この方法は、現在成長中の石筍を用いなければならない制約はあるものの、比較的新しい時代の情報復元に適しており、石筍の不純物濃度や安定同位体比から土地利用、植生変遷などの情報の抽出が可能であることを明らかにしてきた [5]。ここでは、私たちの調査研究成果をもとに、ひとと自然の関わりの歴史を、とくに植生変遷と関連付けて紐解いてみたい。

2．鍾乳石に保存される情報

鍾乳石を使って過去の植生情報を復元するためには、まず、鍾乳石の形成過程を理解しておくことが重要である。石灰岩地域にはカルスト地形が発達する。地下に胚胎する鍾乳洞もカルスト地形の一つである。二酸化炭素を含む水に対する石灰岩の溶解性は高く、(1)式に従って溶食が進行する。石灰岩の主成分である炭酸カルシウムの溶解度は二酸化炭素濃度の三乗根に比例し、(1)式の進行方向を決めるのは二酸化炭素濃度である [6]。

$$CaCO_3 + H_2O + CO_2 \rightleftharpoons Ca^{2+} + 2HCO_3^- \qquad (1)$$

すなわち、降雨が地下に浸透する際に 1 vol%以上にも及ぶ土壌層の高濃度の二酸化炭素を受け取り、それが石灰岩を溶解する。このような水が滴下水となって洞窟に現れると、洞窟空間の二酸化炭素濃度は 0.1 vol%程度と土壌層よりも低いために、(1)式が左に進み方解石として沈殿する（**図１**）。その際に、水に含まれた微量成分や同位体が鍾乳石（石筍）中に取り込まれる。したがって、鍾乳石に含まれる微量元素濃度や安定同位体比を用いると、鍾乳石が生成した当時の環境情報を抽出することができる。

温帯湿潤気候の地域において仮に裸地があったとする。最初に侵入するのは草本で、1 年草から始まってイネ科やマメ科などの多年草が優占種の草原へと変化する。土地が肥えてくると、幼苗が育つには多くの光を必要とするアカマツやコナラなど陽樹とよばれる木本が成長を始

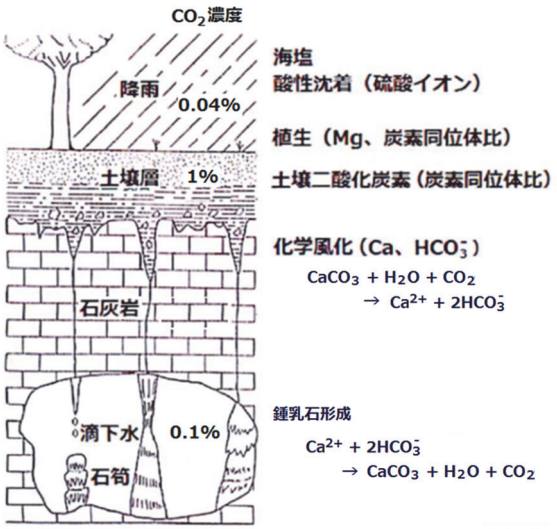

図１　カルストにおける二酸化炭素濃度と鍾乳石中の成分の起源

める。陽樹が繁茂すると林床は光量不足となり、このような条件でも幼苗が育つシイ類、カシ類、ブナなどの陰樹と交代し、最終的に安定な森（極相林）が完成する[7]。極相の森においては、植物バイオマスはほぼ一定に保たれる。したがって、森林内の物質循環は定常状態とみなすことができ、水（表流水および地下水）を通じて森林外に出ていく物質のフラックスは、フォールアウトおよび化学風化に起因して森林内に供給されるフラックスと等しくなる。Koga & Yoshimura は、土石流の起きた山地渓流水中のリン酸イオン濃度が隣接する健全地域の渓流水よりも高くなることを報告している[8]。土石流に伴いバイオマスが減少し利用されなくなったリン酸イオンが一時的に渓流水に流出したためである。それでは、森林が草原に人為的に改変がなされた場合、物質循環はどのようになるであろうか。マグネシウムイオンを例にとると、クロロフィルはポルフィン環の中心部にマグネシウムイオンが結合した化合物であるため、バイオマスが減少すれば、クロロフィルとして固定されるマグネシウム量が減少して、利用されないマグネシウムは森林外に出ていくことになる（**図２**）。逆に、バイオマスが増加を続ける成長中の森の場合は、流域外に出ていくマグネシウム量は少なくなるはずである。このような植生変化は滴下水中のマグネシウムイオン濃度を変化させる。ところで、滴下水に含まれるマグネシウムイオンの一部は炭酸塩中でカルシウムイオンと(2)式で示されるイオン交換反応によって置き換わる[9]。

$$Mg^{2+}(aq) + Ca^{2+}(s) \rightleftharpoons Ca^{2+}(aq) + Mg^{2+}(s)$$

(aq)：水溶液；(s)：石筍　(2)

$$D_{Mg} = (Mg^{2+}/Ca^{2+})_s/(Mg^{2+}/Ca^{2+})_{aq} \quad (3)$$

なお、D_{Mg} はイオン交換平衡定数であり、滴下水中のそれぞれの化学種の濃度（厳密には有効濃度である活量）の商で表され、分配係数と呼ばれる。D_{Mg} は定数である

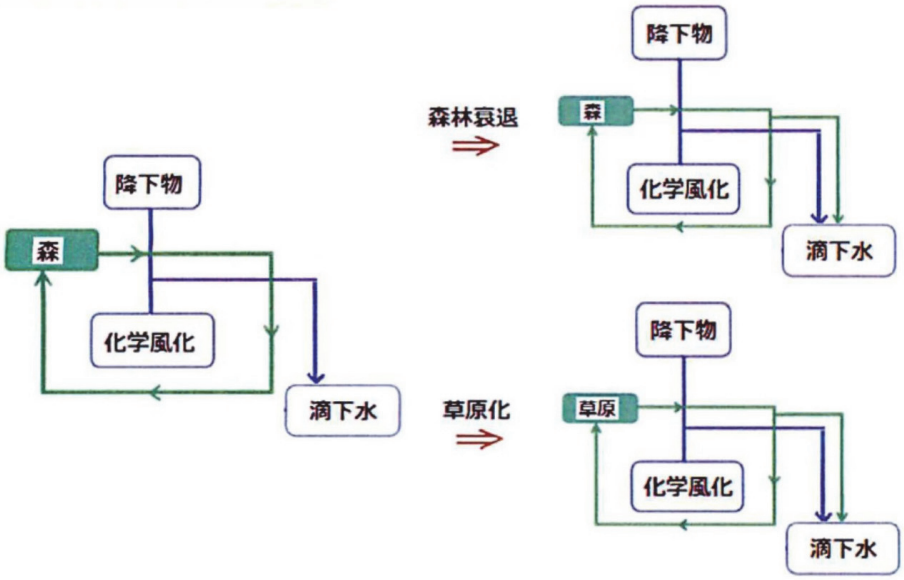

図２　森林衰退、草原化に伴う物質収支の変化

ため、石筍中の$(Mg^{2+}/Ca^{2+})_s$（石筍中のマグネシウム含量）がわかれば、石筍を形成した滴下水の沈殿形成当時の$(Mg^{2+}/Ca^{2+})_{aq}$ を知ることができる。D_{Mg} の値は、現在成長中の部分の石筍試料と滴下水の分析により求めることができ、国内各地においてこの値はほぼ定数になることは確認済である。

植生は炭素安定同位体比にも反映される。炭素には質量数の異なる二つの安定同位体 ^{12}C と ^{13}C が存在し、^{13}C は全炭素の約 1%を占める。その存在割合（炭素同位体比）は、光合成回路の異なる C3 植物と C4 植物では幾分異なる。その違いを明確にするために、同位体比情報は標準物質 VPDB の $^{13}C/^{12}C$ 比に対する試料の $^{13}C/^{12}C$ 比の千分率偏差（(4)式）が用いられる。

$$\delta^{13}C\ (‰) = \{(^{13}C/^{12}C)_{sample}/(^{13}C/^{12}C)_{VPDB} - 1\} \times 1000 \quad (4)$$

この $\delta^{13}C$ 値を用いて表すと、植物を構成する有機物の同位体比は C3 植物で-32～-22‰、C4 植物で-20～-10‰と、明らかに異なる同位体比をとる [10]。ススキやカヤツリグサは C4 植物であり、C3 植物よりも ^{13}C に富む。土壌二酸化炭素の炭素安定同位体比は、同位体分別を受けることなく植物の炭素安定同位体比がそのまま反映され [11]、滴下水を通じて鍾乳石の同位体比に記録される [5]。(1)式が右に進行して生成した炭酸水素イオンの炭素同位体比は、石灰岩と土壌二酸化炭素のそれぞれの同位体比の平均値となる。このような水が滴下水となって洞窟に現れ、(1)式が左に進んで新たに沈殿が生成する際には、約+3‰の同位体分別を受けるが、石筍の炭素同位体比が植生情報を記録することになる。ただし、草原植物の中にも C3 植物と同じ同位体比を持つ植物が存在する。草原植生の代表的な植物の一つであるネザサも C3 植物であることが明らかになっている [11]。したがって、炭素同位体比は植生を推定する際の重要な指標であるが、炭素同位体比の値を植生推定のために単独で用いるには問題が残る。

3．鍾乳石の絶対年代

鍾乳石の微量成分や安定同位体比からは、先史時代からの植生情報の抽出が可能である。ただし、そのためには、鍾乳石の絶対年代をきめる必要がある。鍾乳石の断面は土壌粘土粒子など有色の不純物あるいは方解石結晶サイズの違いによる色調の変化により、成長方向に沿って縞状構造が観察できる。樹木年輪のように天井から垂れ下がるつらら石の横断面は同心円状となる。それに対して、筍のように洞床から上に向かって成長する石筍（**図１参照**）では縦断面は**図３(A)**に示すようなものとなり、頂点部分が平坦であり、縞状構造に沿って過去の一定期間ごとの試料を削り取るのが容易である。したがって、研究にはおもに石筍が用いられる。

鍾乳石の絶対年代を明らかにするために、おもに二つの方法が用いられてきた。U-Th 法では、ウランは $UO_2(CO_3)_2^{2-}$や $UO_2(CO_3)_3^{4-}$などの錯イオンを形成し地下水に溶解しているため鍾乳石に取り込まれるが、トリウムは水に不溶であり鍾乳石に取り込まれない性質を利用する。ウランだけを溶存する地下水から共沈したウラン同位体はウラン系列に関して放射非平衡にあり、再び放射平衡状態に戻るまでの経過時間と ^{238}U、^{234}U、^{230}Th 放射能比あるいは原子比の関係を使って年代測定を行う。

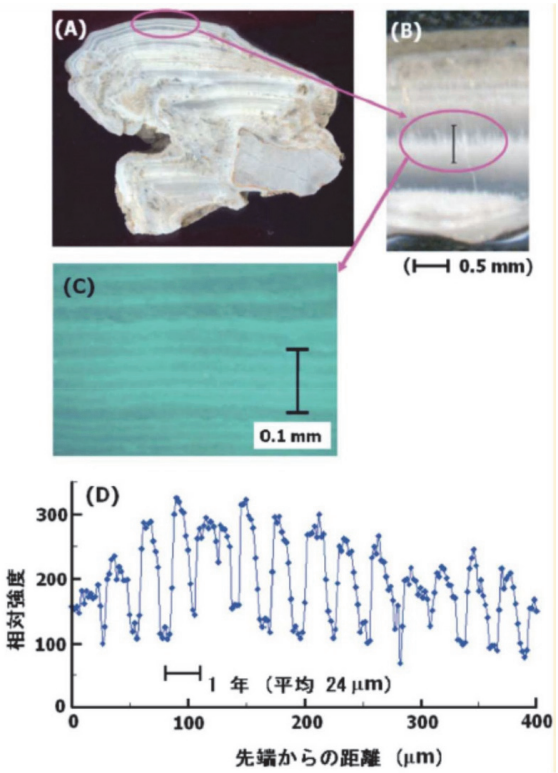

図３　石筍の蛍光年縞．(A)石筍の断面、(B)その拡大写真、(C)蛍光顕微鏡写真、(D)蛍光強度の線分析結果

数千年~数十万年の時間をカバーできる優れた方法である。しかし、それより新しい鍾乳石の年代測定法としては適さない[3]。

もう一つの方法は、石筍の断面に紫外線を照射した際に現れる年単位の蛍光縞を利用して絶対年代を決定するものである[4]。石筍の断面に紫外線を当てると蛍光縞（**図3(C)**）が現れる。この蛍光縞は、U-Th 法をはじめとするその他の絶対年代測定法により、年単位の縞模様であることが示されている[3,12]。この縞の発蛍光物質は Beynen らにより腐植酸の一種であるフルボ酸であることが明らかとなっている[13]。現在成長中であり、途中で成長が停止していない鍾乳石を用いなければならない制約はあるものの、樹木年輪と同様に年縞から生成年代を直接読める点において、簡便性に優れている。プレパラートに瞬間接着剤で固定した厚さ約 0.4 mm の石筍薄片に高圧水銀ランプ（ニコン、Intensilight C-HGFI）を用いて 365 nm の紫外線を照射すると、440 nm 付近の蛍光強度を分光器を通して光電子増倍管検出器および顕微鏡用 CCD カメラで観測できる。蛍光強度の縞模様は石筍薄片のプレパラートを 0.2 μm 単位で操作可能な XY ステージ（シグマ光機、R10S-115S）を操作して観察を行う。測定された縞模様は、客観性を保つため、独自に開発した画像処理計数ソフトを用いて、単位長さあたりの縞の本数、幅の分布を計測した。石筍の年縞幅（成長速度に相当）は、滴下水の化学的性質、滴下速度、温度などの影響を受けて、同じ鍾乳洞内でも異なるが、100 μm/y（1 cm/100 y）が目安となる。

4．事例研究

今まで、石筍を用いて過去の環境情報を抽出する原理について解説してきた。私たちは国内各地の石灰岩地域において試料を採取し、とくに植生情報の抽出を行ってきた。ここでは、その成果の一部を紹介したい。

4．1　秋吉台全域[5,14]

秋吉台は山口県美祢市中・東部に広がる日本最大のカルスト台地であり、多くの洞窟が存在する。広々とした草原台地にピナクル（石柱）がならぶ秋吉台の景観は日本型カルストとして世界的にもよく知られている（**図4**）。

図4　秋吉台地獄台のネザサ草原とピナクル. ピナクルの原型は土壌層で形成され土壌流出により露出した.

「良悟の松」は、秋吉台上の旧往還で道に迷う旅人が多かったため、1724（享保 9）年、目印として山口の良悟禅師が門弟に植えさせたと伝えられており、当時、台上は松が目印となるような草原となっていたことがうかがえる。しかし、草原化が始まった時期を特定する文書等はない。

地表が草原で覆われている地域の洞窟と森林で覆われている地域の洞窟からそれぞれ石筍を採取し、植生情報を抽出した（**図5**）。図の濃い緑の部分が森、薄い部分が草原である。石筍はいずれも採取当時も滴下水が落ちて成長中のものであり、滴下水が落ちていた頂点部分の絶対年代を試料採取年とした。断面を観察した結果、成長の不連続面および滴下位置の変化などは見られず、連続的に沈殿が形成されものであった。

(1)式から明らかなように、石筍を生成させる滴下水に

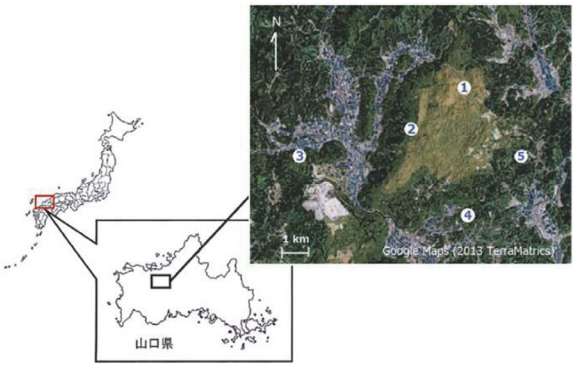

図5　秋吉台における石筍採取洞窟（黄緑色が草原）. 1 北山北の横穴、2 鳴き穴、3 兼清穴、4 こうもり穴、5. 長登銅山跡大切 4 号坑

は、高濃度二酸化炭素条件で石灰岩が溶解する。この二酸化炭素のほとんどは、土壌層において植物の根からの呼吸、微生物による植物由来の有機物分解により供給される。**図６**は、秋芳洞地下川への石灰岩の溶解性と土壌二酸化炭素濃度の季節変化を示したものである。2 か月位の時間的な遅れはあるものの、土壌二酸化炭素濃度の変動と石灰岩の溶解性は関連があることがうかがえる [6]。土壌二酸化炭素が石灰岩溶解の反応場（エピカルスト帯）に到達する間にその濃度変化が小さくなるが、土壌二酸化炭素濃度を用いて算出した石灰岩の溶解度とほぼ一致し、石灰岩の溶解性は土壌二酸化炭素濃度に化学平衡論的に支配されていることがわかっている [6]。秋吉台で土壌二酸化炭素の同位体比は、草原地域では-15‰、台上の長者ヶ森および台麓の林地では-23～-21‰の値を取った。石炭紀－ペルム紀秋吉石灰岩の炭素安定同位体比は平均+2.7±1.0‰と報告されている [15]。したがって、石筍の同位体比は森林植生では-7～-6‰、草原植生で-3‰の値を取ることが予想される。一例として、秋吉台帰り水ドリーネ近くの草原に開口する北山北の横穴から得られた石筍の炭素安定同位体比測定結果を**図７(ａ)**に示す [5]。炭素安定同位体比の値は 1700 年前半から 1800 年頃にかけて-8～-7‰から-5～-4‰へと急激に増加していた。石筍中の炭素安定同位体比が変化する要因は沈殿生成時の気温など複数存在するが、植生変化による影響に比べてその寄与は十分小さい。石筍中の炭素安定同位体比の値の数‰以上の急激な増加は、植生が森林から草原へと変化したためである。この植生変化は植物バイオマスの減少を伴うため、マグネシウム濃度が増加するはずである。(3)式から、滴下水中の石筍中のマグネシウムイオンとカルシウ

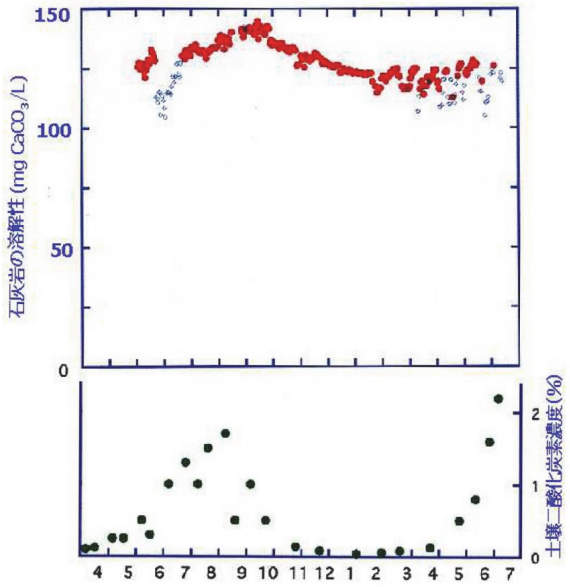

図６　秋吉台の草原土壌層の二酸化炭素濃度と秋芳洞地下川における石灰岩の溶解性の季節変化

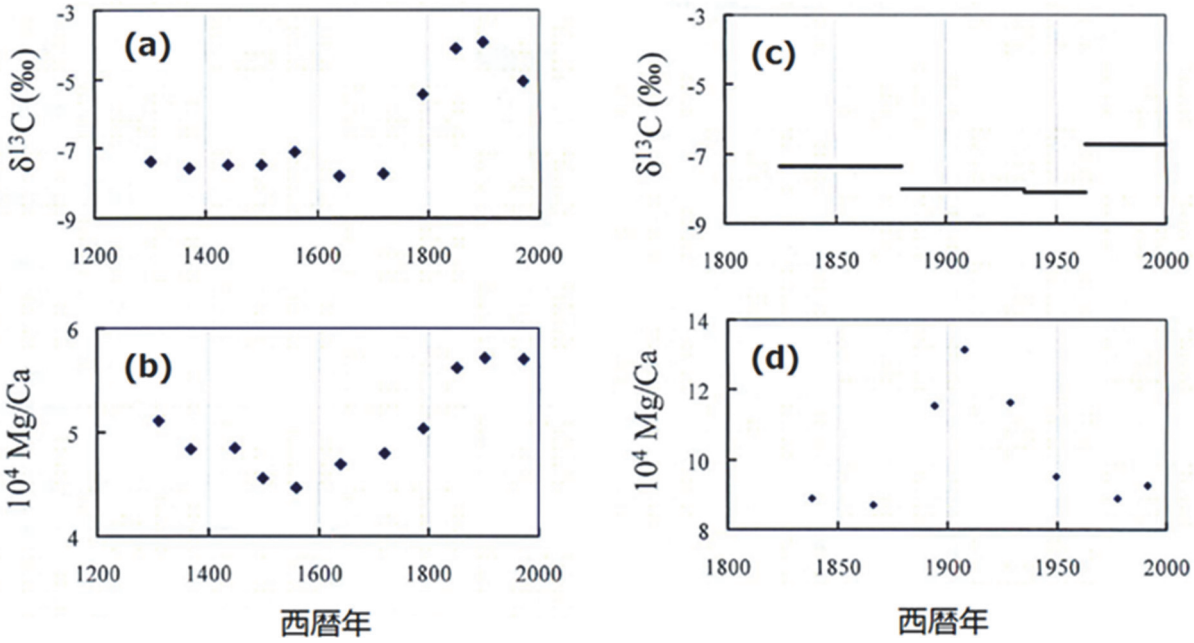

図７　秋吉台石筍の炭素同位体比と Mg/Ca 比.（ａ)、(ｂ）北山北の横穴、(ｃ)、(ｄ）兼清穴

ムイオンの濃度比$(Mg/Ca)_s$は滴下水中の濃度比と比例関係にあるため、それを絶対時間軸に対してプロットしたのが**図７(ｂ)**である。炭素同位体比と同期するようにマグネシウムイオン濃度が増加した。

図７(ｃ)、(ｄ)は西秋吉台麓の林地に開口する兼清穴石筍の炭素安定同位体比と$(Mg/Ca)_s$の変化を示したものである。炭素安定同位体比は 1830～1880 年、1880～1930 年、1930～1960 年、1960 年～現代の区間をひとまとめにして同位体比測定を行ったため、炭素安定同位体比の値はそれぞれの区間の平均値となっている。現在の兼清穴は林地にあり、石筍表層の炭素安定同位体比も森林植生の値を示した。兼清穴石筍は表層から石筍下部まで C3 植物の値を示していたが、Mg/Ca 比は 1800 年代後半に増加した後減少しており、この時期にバイオマスが変化したことがうかがえた。以上を総合すると、1800 年代後半から 1900 年代始めの間は、ネザサを主とする草原植生に変化していたと推定できる。

秋吉台で得られた 4 本の石筍の炭素安定同位体比および年縞による年代決定の結果を**図８**にまとめた。同時に、古絵図等からの植生情報も示している。兼清穴については Mg/Ca 比変動からも植生変遷を読み取った。今回測定対象とした地域では、1600 年後半から 1900 年頃にかけて、秋吉台の広い地域で草原化していたことが明らかとなった。江戸時代にはすでに秋吉台の広い地域でひとの手による植生変化が起きていたことになる。

得られた情報は、現存する古絵図・古文書を使ってクロスチェックできる。秋吉台の台上およびその周辺は広い地域で山野、芝山として絵図に記載があり、広範囲で人為的な森林の開拓が進んでいたことがうかがえた。北山北の横穴付近は、1649 年の正保長門国絵図、1862 年の美祢郡宰判図では山野（草原）であり、石筍から復元された情報とも良く一致した。江戸時代初期は、国絵図では秋吉台にあたる部分は広く草原として描写されるが、石筍では北山北の横穴の炭素安定同位体比は森林植生を示していた。野焼き（秋吉台では「山焼き」と呼ばれる）や草の刈り取りなどの継続的な人間活動がなければ、草原植生は維持できない。北山北の横穴周辺は台上でも高台に位置することから、江戸時代初期には人為的な影響を受けにくかった可能性がある。しかし、国絵図は縮尺

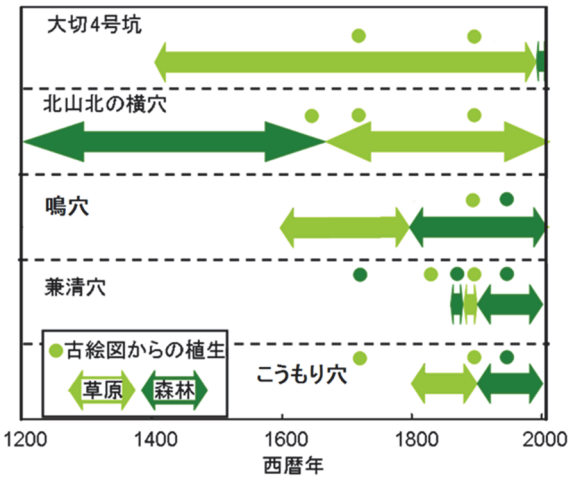

図８　秋吉台石筍が記録した植生変遷（石筍の長さにより記録された期間が異なる）

が小さく詳細なことが分からない。1729 年の地下上申絵図では、三つの村の村境となっていた北山は、三つの村絵図全てに草原として描かれているため、少なくともその時点では草原になっていたことが確認できる。兼清穴に関しては、石筍からの情報は 1800 年代後半から 1900 年代初めごろまでバイオマスが減少したことを示唆した。文献資料では、1729 年の地下上申絵図に森を示す樹木が描かれており、1841 年頃の防長風土注進案では山野としての記述に植生が変化している。炭素安定同位体比が C3 植物優勢であったことを示す石筍からの情報を合わせると、おそらくはネザサを主とする草原植生に変化したであろうことが読み取れた。さらに 1870 年の御立山其外處町数附立では、兼清山が村の共有林である『地下制道山』に指定された記述があり、兼清穴周辺は再整備されてまた森林植生に戻ったことが読み取れた。こうもり穴周辺は 1729 年の江戸時代後期には草原、疎林の記載があり、江戸時代末期から明治時代にかけては合壁山（私有林）として利用されていた。江戸時代当時の合壁山の植生は不明であるが、多くの史料から当時の合壁山の樹種はアカマツが多かったと推測される。明治時代の旧版地形図の地図記号から高木の針葉樹と低木広葉樹との混交林であったことが明らかであるため、こうもり穴周辺は江戸時代後期は草原植生であり、江戸時代末期から明治時代にかけてアカマツを主体とする森林に変わった事が絵図から読み取れた。これは、こうもり穴石筍の炭素安定同位体比測定結果ともよく一致する。鳴穴は文献、絵図で

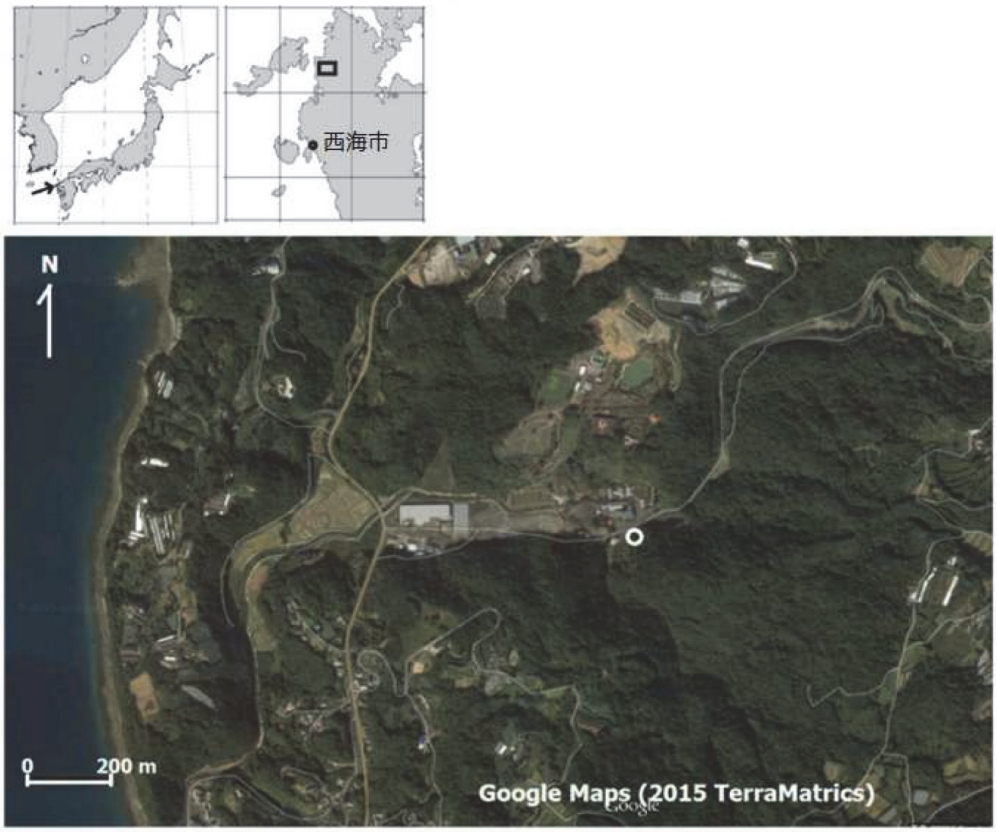

図９　長崎県西海市中浦 七釜鍾乳洞分布地域（白丸は観光洞である清水洞）

の場所の特定は難しいが、周辺の植生は 1605 年の江戸時代初期から 1862 年頃までの絵図では草原植生であったと見ることができる。その後、1899 年には荒地の記載があり、1948 年の航空写真では森林植生に変化していた。炭素安定同位体比測定結果からもおおよそ 1800 年中頃を境として草原植生から森林植生へと変化しているため、文献情報とあわせると江戸時代初期から 1860 年頃まで草原植生であり、それから森林植生に変化して現在に至っていることがわかった。

４．２　長崎県七釜鍾乳洞 [16,17]

長崎県西海市西海町には、国指定天然記念物である「七釜鍾乳洞」が分布する。天然記念物七釜鍾乳洞（しばしば七ツ釜鍾乳洞と記述されるが、正式には七釜鍾乳洞）は、単独の洞窟ではなく、西海市西海町に分布する複数の鍾乳洞群そしてそれらを含む地域を指す名称である。この地域の洞窟群は本州・九州で一般的な古生代の石灰岩に形成されたものではなく、古第三紀漸新世の浅海性砂岩もしくは石灰質砂岩に胚胎することが大きな特徴である [18]。江川内川の左岸、普段は涸れ沢となっている清水川との合流点付近に開口するのが清水洞である（**図９**）。観光洞であり、総延長 1670 m である。清水洞上は小高い丘となっており、頂上部付近は釜敷山凝灰岩・釜敷山互層が覆う。一部スギの植林が残るが、雑木林となっている。清水洞の洞口から約 300 m 奥で採取した高さ 34 cm の A 石筍について、過去 800 年間の炭素安定同位体比の変化を**図１０(ａ)**に示した。1500 年以前は-9～-10‰と森林であったことを表しているが、1700 年には-2‰と炭素安定同位体比が大きくなっており、草原植生に変化したことが示唆された。比較のために、洞口から 100 m 奥の、丘のふもとの地表に比較的近い地点で採取した B 石筍（高さ 2.3 cm）の同位体比を示した。A 石筍と異なり、1800 年以降、森林植生を保ってきたことがうかがえる。A 石筍の$(Mg/Ca)_s$の分析結果を**図１０(ｂ)**に示した。清水洞 A 石筍は地表までの距離が長く、降雨が滴下水となるまでの滞留時間が長いため、濃度の変化が小さいが、1500

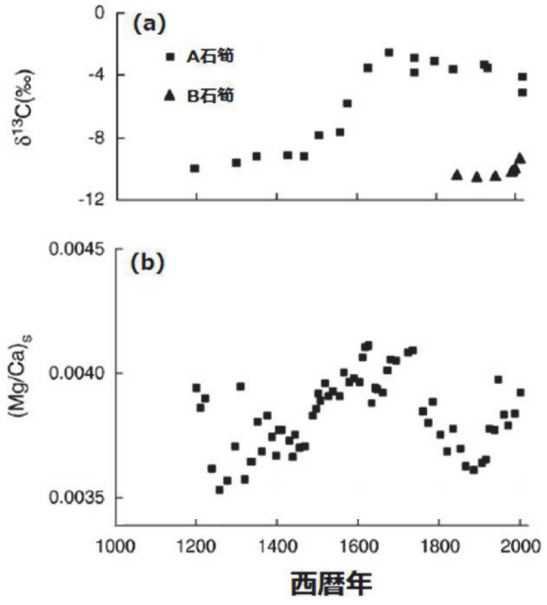

図１０　清水洞石筍が記録した植生変遷

年から 1700 年にかけて地表のバイオマスの減少を表す $(Mg/Ca)_s$ の増加が観測された。さらに、19 世紀末から $(Mg/Ca)_s$ が増加し始め、20 世紀中旬にピークが見られ、これらの時期にバイオマスの減少が起こったことが示唆された。1732～1814 年のある時期に作成された大村管内絵図島方（長崎歴史文化博物館蔵）には、清水洞の上の丘は松山として描かれている。草原から松林に遷移してバイオマスが増加し、それ以降松山が維持された。その後、松山から現在の植生である広葉樹林への変化を示していると読み取ることができ、草原から陰樹林への典型的植生変化をたどっていることがわかる。地元住民からの聞き取り調査では、大正～昭和初期に炭坑の坑木目的で松が採取されたこと、1936 年頃以降に松枯れが目立ち始めたこと、戦時中には松根油採取したことなど、松林と地域が密接な関係を維持してきたことが明らかになった。西彼杵郡村誌 (1885)には、中浦北郷に属する「奥野原」には 3.1 km^2 の茅場（原野）が広がっていたと記述がある [19]が、清水洞の上の丘が草原となっていたことは伝わっておらず、記録に残されなかった植生変遷情報を石筍から抽出することができた。

４．３　秋吉台長登 [20,21]

山口県美祢市美東町長登には古くからの伝承があり、「往古、奈良の都に銅を送ったので奈良登りと言われていたが、いつしか訛って長登となった。」と語り継がれていた。昭和 47 年に長登の山中から須恵器が発見され、その後の発掘調査など、考古学から古代に遡る日本最古の銅山跡であることが判明し、幻の鉱山が実証された。平成 15 年 7 月に国史跡に指定された。粗銅製錬は鉱山付近で行われ、初期には孔雀石（マラカイト）に代表される酸化銅鉱を、後には黄銅鉱を中心とした硫化帯の銅鉱石を製錬に用いたと考えられるが、複雑な工程を要する硫化銅鉱の製錬が始まった時期に関しては明確な記録は残されていない。硫化銅鉱の製錬は酸化銅鉱を用いた製錬に比べると技術的に難しく、さらに硫黄酸化物が発生する。したがって、製錬が始まった初期にはその利用は避けたはずであり、榧ヶ葉山（かやがばやま）の山頂付近に露天掘り跡が存在するのも、このような事情の証とみなすことができる。もし、硫化帯の銅鉱石を製錬したとすると、硫黄酸化物の発生により局地的に酸性降下物量が増大し、それに伴い植生が変化したと予想される。そこで、**図５**に示した美祢市美東町に位置する長登銅山跡大切 4 号坑内最奥部において採取された石筍（**図１１(ａ)**）を用いて、銅山周辺の過去の植生変遷とそれに及ぼす銅山開発の影響を明らかにすることを試みた。

長登銅山は、奈良時代から平安時代にかけて大切谷（おおぎりだに）と、大切谷の奥にある榧ヶ葉山を中心に稼動していた。榧ヶ葉山から北東方面に伸びる尾根南側には、滝ノ下・大切採鉱跡群と呼ばれている 17 か所の坑口が確認されており、その内の一つが、坑道の一部が鍾乳洞となっている大切 4 号坑である。古環境情報抽出に用いた石筍のうち一つは高さ 21 cm の O-1 石筍であり、表面から 23.8～24.6 mm に明瞭な黒色層が存在し、頂点の横に後から成長したと思われる部分があり、そこに滴下水が落ちていた。滴下点が人為的に変えられた可能性もあり、この部分の分析を行うことにした。それより表層側と内側では成長方向が異なり、また色調も異なる。表層側が現在成長中の部分である（**図１１(ｂ)**）。その部分の年平均成長幅は 38 μm であり、西暦 1390 年頃に黒色層の上に新たに石筍が成長を始めたことがわかった。黒色層より上位はおよそ現在から 620 年前までの環境を記録していることになる。石筍の成長点が変わった理由は明らかでないが、鎌倉時代以降断絶した銅製錬が再び開

図１１　長登銅山跡大切４号坑から採取した石筍

始されるのは 15 世紀頃からであり、その時期に人為的に滴下位置が変わった可能性も否定できない。石筍中の炭素安定同位体比は、石筍の内側の 1400 年よりはかなり古い部分で森林植生を反映する-11.1‰であったものが、1400 年には-2‰と草原植生を反映する値に変化していた（**図１２**）。1400 年にはすでに草原化していたことがうかがえる。その後、炭素安定同位体比は徐々に小さくなることから、1800 年代後半まで森林植生に緩やかに回復したように見えるが、後述のように硫酸イオン濃度の変動はそれを支持しなかった。草原植物の中にも C3 植物と同じ同位体比を持つ植物が存在する。草原植生の代表的な植物の一つであるネザサも森林植生と同じ C3 植物であることが明らかになっている [11)]。おそらく、現在の秋吉台草原植生としてみることのできるネザサが卓越する状況であったと推定される。以上のように、草原を代表するようなものに C3 植物があるため、炭素安定同位体比だけでは草原植生を推定する必要十分条件とはならない。しかし，18 世紀後半には休山となっており，森林が回復傾向にあった可能性もある。1860 年頃から再び炭素安定同位体比は大きくなる傾向になる。この時期は明治時代に入ってからの銅山再開発と銅山の最盛期とほぼ一致することから，銅山再開発に伴ってススキなどの C4 植物が卓越する草原植生へと遷移したことを示している。近年の低下しつつある炭素安定同位体比は現在の植生である森林をよく反映している。

図１２(A)中のマグネシウムイオン濃度はカルシウムイオン濃度との質量比として示したものである。後述の硫酸イオン濃度と共に 13 世紀から増加傾向を示し 16 世紀に極大を迎えその後減少する傾向を示した。この期間にバイオマスが大幅に減少したことになり、森林衰退とネザサが卓越する草原植生への変化を示唆するものである。

酸性雨の影響を直接反映するのは、滴下水中の硫酸イオン濃度である。不純物陽イオンと同様に、滴下水に含まれる硫酸イオンの一部は炭酸塩中で炭酸イオンとイオン交換平衡によって置き換わる。硫酸イオンと炭酸イオンのイオン交換平衡は次のように表される [22,23)]。

$$SO_4^{2-}(aq) + CO_3^{2-}(s) \rightleftharpoons CO_3^{2-}(aq) + SO_4^{2-}(s)$$

(aq)：水溶液；(s)：石筍　(5)

$$D_{SO4} = (SO_4^{2-}/CO_3^{2-})_s / (SO_4^{2-}/CO_3^{2-})_{aq} \quad (6)$$

なお、D_{SO4} はイオン交換平衡定数である。D_{SO4} は定数であるため、石筍中の$(SO_4^{2-}/CO_3^{2-})_s$（石筍中の硫酸イオン濃度から算出可能）がわかれば、石筍を形成した滴下水の沈殿形成当時の$(SO_4^{2-}/CO_3^{2-})_{aq}$ を知ることができる。D_{SO4} の値は、現在成長中の部分の石筍試料と滴下水の分析により求める。ただし、$CO_3^{2-}(aq)$を直接定量することは困難であるので、実測可能な主要イオンである $HCO_3^-(aq)$濃度と HCO_3^-の酸解離定数 K_{a2} を用いて(7)式から見積もる。

$$D_{SO_4} = (SO_4^{2-}/CO_3^{2-})_s \,/\, (SO_4^{2-}\cdot H^+/(HCO_3^-\cdot K_{a2}))_{aq} \qquad (7)$$

具体的には pH 値とアルカリ度（カルスト地下水では $[HCO_3^-] + 2[CO_3^{2-}]$に相当）の値を用いるが、滴下水に含まれる成分濃度は年間を通じてその変動は小さい。そこで、これらの値の年間平均値を用い、過去においてもこれらの値は現在と変わらないと仮定すると、あらたに沈殿が生成した時の滴下水の SO_4^{2-}濃度を知ることができる。採取した滴下水中の塩化物イオン濃度に人為由来の寄与が小さい場合、塩化物イオン濃度を指標として海塩由来の硫酸イオン濃度を見積り、海塩由来以外の硫酸イオンの寄与を定量的に議論できる点において、このような取り扱いは優れている。2008 年～2010 年の滴下水の化学分析値をもとに、水質の季節変動が小さいことを確認したうえで、平均値を使って D_{SO_4} を算出した。さらに $(SO_4^{2-}/CO_3^{2-})_s$ の値を用いることで、**図１２**に示した滴下水中に含まれる硫酸イオン濃度を復元した。図の左軸は石筍中の濃度、右軸は滴下水中の濃度である。その濃度は 15 世紀から増加傾向を示した。滴下水の化学分析値をもとに、塩化物イオンはすべて海塩由来と仮定して、海塩由来の硫酸イオン濃度を見積もると 1.5 mg/L となった。考古資料によると、長登銅山では 12 世紀後半から 13 世紀初期にかけて小規模な、また 15 世紀には大規模な銅製錬が行われていたが、17 世紀後半には休山となる。15 世紀から 16 世紀初頭までが最も大量の酸性降下物が観測された時期であり、すでに硫化帯の銅鉱石が使われていたことが示唆された。17 世紀後半の休山以降の硫酸イオン濃度の低下、20 世紀初期から中期にかけての近代技術による再開発による硫酸イオン濃度の増加を明確に記録していることがわかる。2008 年～2010 年の滴下水中の硫酸イオン濃度の平均値は 7.2±1.2 mg/L であったが、現在では、長距離移流による酸性降下物の影響も無視できない。

研究を行ったもう一つの試料は、O-1 石筍から約 1 m 離れたところにあった高さ 15 cm の O-2 石筍である。O-1 石筍とは異なり滴下水が落ちる位置は動いておらず、縞状構造がはっきりとしており、不連続面はなかった。石筍の古い部分は無色透明であり、相対的に新しい部分は半透明の茶褐色に色調が変化した（**図１１(c)**）。その平均成長速度は 40 μm/y であった。約 2000 年間の記録を

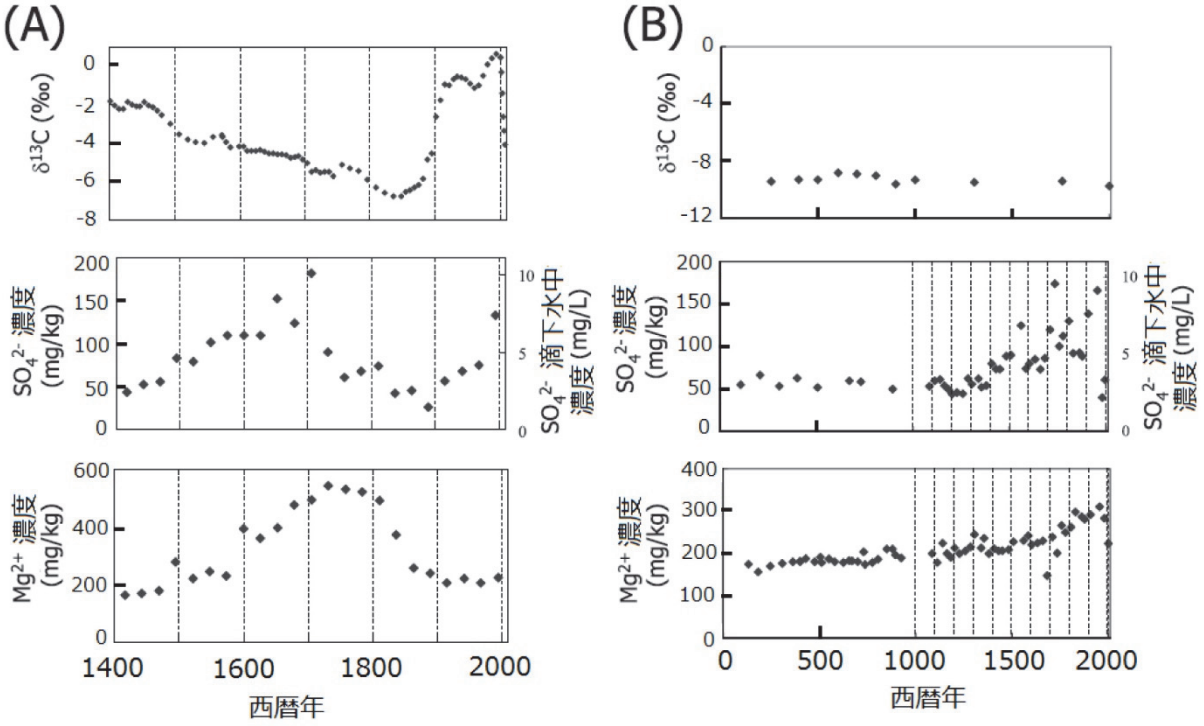

図１２　長登銅山跡大切４号坑石筍が記録した環境変遷.（A）O-1 石筍、（B）O-2 石筍

読み取ることができた（**図１２**）。ただし、O-1 石筍に近接しているが、滴下水の涵養域や流路が異なるために、O-1 石筍とは異なる情報を与えた。炭素同位体比は大きくは変動せず、2000 年間 C3 植物が優勢な植生であった。マグネシウムイオン濃度は西暦 800 年にはいったん上昇し、その後徐々にではあるが増加を続けた。西暦 800 年には植物バイオマスが減少するような森林開発が、銅製錬と関連して始まったことを示唆するように思われる。西暦 100 年～1400 年頃までは滴下水中の硫酸イオン濃度は約 3.5 mg/L とほぼ一定であった。海塩由来の硫酸イオン濃度より高いのは、硫化銅鉱の自然酸化の寄与によるものと考えている。長登鉱山の開発が始まった時期は明らかでないが、西暦 100 年～1400 年頃までは滴下水中の硫酸イオン濃度はほぼ一定であったが、小さいながらも増減を繰り返していた。これが鉱石の炭鉱や採掘に関連して硫化鉱の自然酸化が促進されるようなことがあったのか、硫化鉱の小規模製錬があったのか、あるいは、これ以外に硫酸イオン濃度が変動させる要因があるのか、現時点では不明である。12 世紀には、長登銅山の南 2 km の平原第Ⅱ遺跡で硫化鉱製錬に用いられたと考えられる火床炉型製錬炉が確認されている。この時期の硫酸イオン濃度の小さな変動は、これを反映している可能性もある。硫酸イオン濃度は 15 世紀頃から大きく増加しており、この時期から製錬に硫化帯の銅鉱石が使用され始めた、あるいは製錬が活発に行われ始めたことが考えられる。また、硫酸イオン濃度は 1700 年初期にピークを迎えた後減少するが、1900 年頃から再び増加が見られた。これらの情報は、O-1 石筍から得られたものときわめてよく一致した。

信頼がおけるもっとも古い史料は 1605 年の慶長国絵図控図長門国である。秋吉村東部に森林が描かれているものの、長登周辺は草地状となっている。二つの石筍からの古植生情報を合わせると、硫化鉱製錬による酸性雨のために、おそらく局地的に森林が衰退してネザサを主体とする草原に変わり始めたのは 14～15 世紀であり、芝草山として積極的に利用する秋吉台の他地域とはその成り立ちが異なる可能性が高い。以降、山野として記載されており、田畑の肥料や牛馬の飼料となる草や木の若葉と薪を採取する入会山として利用された。特に酸性降下物量が増加した 16、17 世紀には、酸性雨のために森林の維持は困難であったと推定される。明治 20～30 年に作成された地形図では花の山の北斜面に針葉樹林、榧ヶ葉山の北側に広葉樹林の記号が書かれており、森林が回復した。明治 38 年（1905）花の山製錬所が開設され、近代製錬が行われるが、煙突によりより広域に酸性物質は拡散することになり、局地的酸性雨は解消していったものと推定できる。

５．ひとと自然の関わり

本稿では、山口県秋吉台と長崎県西海市中浦地区を例にとって、石筍から古環境情報の抽出例を紹介した。発掘資料や古文書などから得られた断片的な情報と石筍から抽出された情報は調和的であり、考古資料の限定的な情報を裏付けとしながらさらに詳細にわたるひとと自然の関わりを明らかにすることができた。秋吉台の東麓長登銅山付近では酸性雨による森林衰退が 14 世紀以降に、その他の秋吉台では 15～16 世紀以降に土地利用が変化し、野焼き（山焼き）により草原が維持されたものと結論付けられた。このような植生変化は江戸期前後から始まるもので、国内では普遍的なものと考えている。

ジャレド・ダイヤモンドはその著書「文明崩壊」の中で、日本の森の盛衰について次のようにまとめている[24]。日本の森林開発が記録に登場するのは畿内盆地で西暦 800 年のことである。1000 年には四国にまで広がる。さらに、1550 年には国土の 1/4 に相当する本州中部と四国東部の森林が失われた。1582 年、豊臣秀吉は九州最南端、四国全土、本州の北端まで日本有数の森林数箇所を管理下においた。1678 年には開発は北海道の南端にまでおよび、1710 年には主要 3 島と北海道南部の手近な森林のほとんどは開発された。しかし、これにより自然災害が顕著となると、資源確保と土砂災害防止のために 1750～1800 年には植林による森林管理が開始される。このような森林開発には、戦国時代の動乱から徳川幕府による治世となって安定するまでの社会的背景がある。戦国時代の動乱の中で、1570 年頃から壮大な城や寺の建造が始まる。徳川家康の築いた三つの城では約 25 km^2 の森林の伐採が行われたと見積もられている。これ以外にも、家屋

の建築、暖房や炊事の燃料、さらに工鉱業の発展とともに、塩、瓦、陶磁器の製造、鉄の製錬に木材・薪炭が大量に使われた。戦国時代が終わると、それまでの戦乱の続いた時期から平穏な時期へと移行したことで、日本各地で人口が急増し、食糧増産のために日本各地で森林が農業用に切り開かれることになる。開発した新田にとって重要なものは肥料であり、1000 m^2 の耕作地に対して緑肥を得るためにはさらに 5000～10000 m^2 の森が必要であった。**4．2**で紹介した長崎県西海市中浦地区では、郷村記（1862）によると中浦村の江戸初期の石高（朱印高）約 90 石が幕末（文政 2 年）には実高約 304 石に増加した。開墾の進展に伴い、田畑の肥料として木々の若葉や草を敷きこむ「刈敷」の需要が増加した。このような刈敷や薪炭の確保のために森林の開発が進んだと読み取ることができる。日本の草原の面積は現在から 100 年前の明治後半には国土の 13%を占め、江戸時代にはもっと広い範囲を占めていた [1)]のは、自然とひととのかかわりの当然の帰結であった。

本稿では、鍾乳石を用いて人と自然の関わりを明らかにする原理と実際について紹介した。鍾乳石を用いた研究は世界中で発展しており、脂質バイオマーカーや植物の DNA を鍾乳石から抽出する試みも進展している [25)]。今後、考古学や民族学の分野へも貢献していくことを期待している。

6．謝辞

本稿をまとめるにあたり、多くのカルスト研究者との共同研究の成果を用いた。特に、長年にわたってお世話になった、秋吉台科学博物館および井倉洋二博士（鹿児島大学）、岡本 透博士（森林総合研究所）、栗崎弘輔博士（九州大学）、さらに、引用した文献の共著者の皆さんに厚く御礼申し上げます。なお、平成 15～17 年度科学研究費補助金（戦略的萌芽研究）、平成 19～21 年度および平成 22～24 年度科学研究費補助金（基盤 B）の助成を得て、約 10 年間にわたって、おもに国産の鍾乳石やトゥファから古環境情報抽出の共同研究を行い、成果を上げることができた。記して感謝申し上げます。

7．参考文献

1）須賀 丈・岡本 透・丑丸敦史（共著）「草地と日本人」、築地書館 (2012).

2）Y. J. Wang, H. Cheng, R. L. Edwards, Z. S. An, J. Y. Wu, C. C. Shen and J. A. Dorale, A high-resolution absolute-dated late Pleistocene Monsoon record from Hulu Cave, China. Science, 294, 2345-2348 (2001).

3）I. J. Fairchild and A. Baker, Speleothem Science, Wiley-Blackwell, Oxford (2012).

4）K. Kurisaki and K. Yoshimura, Novel dating method for speleothems with microscopic fluorescent annual layers. Analytical Sciences, 24(1), 93-98 (2008).

5）栗崎弘輔・中村 久・川村秀久・畑江久美・吉村和久、鍾乳石に記録された山口県秋吉台カルスト地域の植生変遷．地球化学，40(3), 245-251 (2006).

6）吉村和久・井倉洋二、第９章「石灰岩地域の地下水」，pp. 125-142. 日本地下水学会編「地下水水質の基礎」，pp. 189，理工図書 (2000).

7）三井喬、いきものの不思議 http://www.geocities.jp/doctor_mitsui/index.html

8）M. Koga and K. Yoshimura, Regulation of the dissolved phosphate concentration of a mountainous stream, Kitakyushu, Southwestern Japan. J. Environ. Monit., 14(7), 1951-1958 (2012).

9）一国雅巳、石灰華と温泉水の間の微量成分の分配．温泉科学, 30, 168-175 (1980).

10）酒井 均・松久幸敬（共著）「安定同位体地球化学」、東京大学出版会 (1996).

11）Y. Mukai, Carbon cycle in limestone areas, Master Thesis, Kyushu University (2002).

12）Y. Y. Shopov and D. Ford, Luminescent microbanding in speleothems: High resolution chronology and paleoclimate. Geology, 22, 407-410 (1994)

13）P. Beynen, R. Bourbonniere, D. Ford and H. Schwarcz, Causes of colour and fluorescence in speleothems. Chemical Geology, 175(3-4), 319-341 (2001).

14）栗崎弘輔・中尾武史・冨田麻井・藤川将之・岡本 透・能登征美・吉村和久、石筍が語る山口県秋吉台の土地

利用と植生の変遷．月刊地球，35(10), 585-593 (2013).
15）M. Musashi, Y. Isozaki and H. Kawabata, An Early–Middle Guadalupian (Permian) isotopic record from a mid-oceanic carbonate buildup: Akiyoshi Limestone, Japan. Global Planet. Change, 73, 114-122(2010).
16）S. Uchida, K. Kurisaki, Y. Ishihara, S. Haraguchi, T. Yamanaka, M. Noto, K. Yoshimura, Anthropogenic impact records to nature for past hundreds years extracted from stalagmites in limestone caves developed in the Nanatsugama Sandstone, Saikai, Southwestern Japan. Chemical Geology, 347, 59-68 (2013).
17）吉村和久・内田章太・栗崎弘輔・石原与四郎・原口 聡・山中寿朗・能登征美、七釜鈍乳洞の石筍から明らかになった長崎県西海市中浦地区の数百年間の土地利用変遷. 月刊地球，35(11), 628-636 (2013).
18）鎌田泰彦、長崎県西彼杵半島の七釜鐘乳洞．北村信教授記念地質学論文集, 157-165 (1986).
19）西海市教育委員会（編）「天然記念物「七釜鍾乳洞」天然記念物緊急学術調査報告」, 1-267 (2012).
20）吉村和久・池田善文・栗崎弘輔・岡本 透・藤川将之・松田博貴・山田 努, 秋吉台長登銅山大切坑石筍に記録された硫化鉱製錬．月刊地球，35(10), 594-602 (2013).
21）K. Yoshimura, K. Kurisaki, T. Okamoto, M. Fujikawa, Y. Ikeda, T. Yamada and H. Matsuda Sulfide ore smelting at the Naganobori Copper Mine recorded on speleothems from the Ogiri No. 4 Pit on the Akiyoshi-dai Plateau, Yamaguchi, Japan. ISIJ International, 54(5), 1147-1154 (2014).
22）B. Takano, Geochemical implications of sulfate in sedimentary carbonates. Chemical Geology, 49, 393-403 (1985).
23）一国雅巳、方解石中の陰イオン不純物が方解石‐水溶液間の陽イオン分配におよぼす影響．月刊地球, 17(11), 683-687 (1995).
24）ジャレド・ダイヤモンド著（楡井浩一訳）「文明崩壊」、草思社文庫 (2012).
25）A. J. Blyth, A. Baker, M. J. Collins, K. E. H. Penkman, M. A. Gilmour, J. S. Moss, D. Genty, R. N. Drysdale, Molecular organic matter in speleothems and its potential as an environmental proxy. Quaternary Science Reviews, 27, 905–921 (2008).