

## 北海道出土人骨の鉛含有量

吉永 淳\*<sup>1</sup>, 久田 文\*<sup>1</sup>, 米田 稔\*<sup>2</sup>, 石田 肇\*<sup>3</sup>

\*<sup>1</sup> 東京大学新領域創成科学研究科環境システム学専攻

\*<sup>2</sup> 東京大学総合研究博物館

\*<sup>3</sup> 琉球大学医学研究科人体解剖学講座

## Lead Content of Bones Excavated from Archaeological Sites in Hokkaido

Jun YOSHINAGA\*<sup>1</sup>, Aya HISADA\*<sup>1</sup>, Minoru YONEDA\*<sup>2</sup> and Hajime ISHIDA\*<sup>3</sup>

\*<sup>1</sup>Department of Environmental Studies, University of Tokyo

\*<sup>2</sup>University Museum, University of Tokyo

\*<sup>3</sup>Faculty of Medicine, University of Ryukyus

**Abstract Objectives:** The lead content of excavated bone samples from archaeological sites in Hokkaido was measured to obtain insight into the source of human lead contamination known in the historic Japanese Edo era.

**Methods:** Fifty-seven rib samples excavated from 11 sites of five different eras in Hokkaido were analyzed for lead (Pb), calcium (Ca), and iron (Fe) contents by ICP mass spectrometry and ICP emission spectrometry.

**Results:** The Pb/Ca ratio (mg Pb/kg Ca) was low (approximately 2.0) and constant from the Jomon (approximately 5000 BP) to the Satsumon (approximately 750 BP) eras; however, its median increased to 11 in the Modern era. This elevation of Pb/Ca ratio in the bone samples from sites of the Modern era was not considered to be due to a greater bone contamination with soil particles because of similar Fe concentrations in the bone samples from this era to those in other eras. This historic trend of Pb/Ca ratio was similar to that observed in other parts of Japan. The elevated Pb/Ca ratio in the bone samples excavated from sites in the Modern era in other parts of Japan, that is, Edo era, has been ascribed to the usage of face powder containing Pb; however, people inhabiting Hokkaido in those days, the Ainu, were not considered to have the custom of using face powder.

**Conclusions:** Contamination source(s) other than face powder was postulated in the Modern era of both Hokkaido and other parts of Japan.

**Key words:** lead contamination (鉛汚染), excavated bone (発掘人骨), Modern (近世), Hokkaido (北海道)

### はじめに

わが国の先史～近世までの遺跡から発掘した人骨の化学分析の結果、人骨中鉛濃度は江戸時代に高くなり、この時代に鉛による人体汚染があったことが指摘されている(1, 2)。とくにこの時代の大名家の小児の骨の鉛濃度はきわめて高く(3, 4)、重篤な鉛中毒症状を示した小児がいた可能性も指摘されている(3)ほか、江戸時代大名

家の小児死亡率が農民と比べて高い原因が鉛中毒であるという仮説もある(5)。

江戸時代の人骨中鉛濃度は、上述のように社会階層の高い人が高い(6, 7)、男性より女性が高い(2, 7, 8)といった事実から、この時代の人体鉛汚染源としておしろいが挙げられている。江戸時代以降、わが国では女性が使用するおしろいとして主に鉛白が使用されるようになった(9)という歴史的事実とも符合している。

一方で、おしろいを使用しなかったと考えられる男性や農民・漁民の鉛濃度もほかの時代と比較して高い(8, 10)ことから、必ずしもおしろいだけでなく、他にも汚染源があった可能性が考えられる。

本研究では、江戸時代の人体鉛汚染源解明にかかる調査の一環として、北海道にある遺跡から発掘された人骨

受付2012年10月10日, 受理2012年10月17日  
Reprint request to: Jun YOSHINAGA  
Department of Environmental Studies, University of Tokyo,  
Kashiwanoha 5-1-5, Kashiwa, Chiba 277-8563, Japan  
TEL & FAX: +81(4)7136-4716  
E-mail: junyosh@k.u-tokyo.ac.jp

**Table 1 Era, excavation site and number of rib samples analyzed in this study**

Era	Excavation Site*	Number of samples
Early Jomon	Kitakogane (4820 BP)	9
Late Jomon	Takasago (3670 BP)	5
	Midorimachi	3
Epi-Jomon	Usu	9
	Chatsu	4
Okhotsk culture	Hamanaka	1
Satsumon	Usakumai	5
	Ohkawa	1
	Minami Usu (749 BP)	1
Modern	Oyakotsu (882 BP)	5
	Hamatoue	9
	Suehiro	5
Total		57

\*  $^{14}\text{C}$  age of the site is given in parenthesis where available.  
BP: Before Present.

の鉛分析を行った結果を報告する。縄文時代まで北海道は本州・四国・九州と共通の文化を持つ人々が居住したものと考えられているが、弥生時代以降、稲作を主たる生業とする渡来民が拡散した本州以南とは、徐々に文化的・民族的な相違が生じた。本州以南の江戸時代に相当する時期に北海道に居住していたアイヌ民族の女性には口の周りに入れ墨をする習慣があり、おしろいを使用する習慣は無かったと考えられる。したがって近世北海道に居住した人々の骨中鉛濃度によって、おしろい以外の鉛曝露源があったかどうかについて示唆が得られるものと考えた。

## 試料と方法

### 1. 発掘人骨試料

北海道内の遺跡から出土した人骨(肋骨)計57試料を分析試料とした。遺跡名, 時代区分, 試料数をTable 1に示す。放射性炭素分析による年代決定が行われた遺跡については年代を付記した。

### 2. 分析方法

骨試料を50 mLのガラスビーカーにとり, 精製水を満たして超音波洗浄槽で5分間洗浄した。水を捨て, あらたに精製水を入れ, 洗浄するという操作を, 洗浄後も水が濁らなくなるまで繰り返した。洗浄が済んだ骨試料を別のビーカーにとり, 85°Cの電気オーブンで一晩乾燥し, パラフィン紙に包んでデシケーター内に保管した。

乾燥骨のうち, 海綿骨をできる限り除去した緻密骨部分約100 mgを7 mL容の蓋付テフロンバイアルに精秤し, 超高純度硝酸(関東化学, 東京)1.5 mL加えてバイアルのふたを密閉後, バイアルをステンレス製ジャケッ

トに入れて, 140°Cで3時間, 加熱加圧分解を行った(11)。分解液は適宜希釈して, ICP発光分析法(ICAP-750, 日本ジャーレルアッシュ, 東京)でカルシウム(測定波長: 317.9 nm)及び鉄(238.2 nm)濃度を, ICP質量分析法(7500 ce, アジレントテクノロジー, 東京)で鉛(測定  $m/z$  208)濃度を測定した(10)。ICP質量分析法ではタリウム( $m/z$  205)あるいはビスマス( $m/z$  209)を内部標準としたフローインジェクション法を用いて分析した。なお, 骨試料の洗浄から酸分解まで, すべてクラス1000のクリーンルーム内で行った。

骨マトリクスをもつ認証標準物質(NIST SRM 1486 Bone Meal)を試料同様に分解, 希釈して分析したところ, カルシウム, 鉄, 鉛濃度の測定値は $26.8 \pm 0.2\%$ ,  $92 \pm 2 \text{ mg/kg}$ ,  $1.31 \pm 0.02 \text{ mg/kg}$ と, それぞれの認証値( $26.58 \pm 0.24\%$ ,  $99 \pm 8 \text{ mg/kg}$ ,  $1.335 \pm 0.014 \text{ mg/kg}$ )とほぼ一致し, 本研究の分析法の信頼性が確認された。

時代区分間の元素濃度, 鉛/カルシウム比の変動は, SPSS ver 19.0(日本アイ・ビー・エム)を使用し, Kruskal-Wallis検定を行った。時代区分間及び近世の3遺跡間の比較にはR ver 2.8.1(12)を使用してSteel Dwass法による多重比較を行った。

## 結 果

肋骨試料の鉛濃度(mg/kg), カルシウム濃度(g/kg), 鉄濃度(mg/kg)および鉛/カルシウム比( $1000 \times [\text{鉛濃度 mg/kg}] / [\text{カルシウム濃度 g/kg}]$ )の中央値と最小・最大値を, 時代区分ごとにTable 2に示した。鉛/カルシウム比は, 発掘人骨の有機物含有量によって見かけの元素濃度変動するのを補正する目的で計算した。なお, 鉄濃度は骨試料の土壌汚染の程度を推定するために測定したものである。

鉛濃度は縄文前期~擦文時代まで中央値は1 mg/kg程度かそれ以下であったが, 近世になると中央値3.1 mg/kgとやや高くなった。カルシウム濃度はすべての試料で200 g/kg以上と, 現代人骨と同等かそれ以上の濃度であった。300 g/kg以上の値を示したのは, 埋蔵中に有機物が喪失し, 見かけ上の濃度が高くなったものと考えられる。こうした影響を除去するために, 鉛/カルシウム比を取ると, 擦文時代までは中央値が2以下ではほぼ一定であったが, 近世のみ11と一桁高い値となり, なかには30を超える個体もあった。多重比較の結果, 近世の鉛/カルシウム比は, 縄文前期, 続縄文, 擦文よりも有意に高かった(Steel Dwass検定,  $p < 0.05$ )。さらに近世の3遺跡間で比較すると, オヤコツ, 浜東栄, 末広各遺跡出土人骨の鉛/カルシウム比中央値はそれぞれ3.1, 25, 3.3と, 浜東栄遺跡出土人骨の値が特徴的に高く, オヤコツとの間には有意差があった(Steel Dwass検定,  $p < 0.05$ )。

骨試料の土壌による汚染(続成作用)の程度を表すと考えられる鉄濃度は時代区分内・間で大きくばらついたが, 時代区分による変動は有意ではなく(Kruskal-Wallis

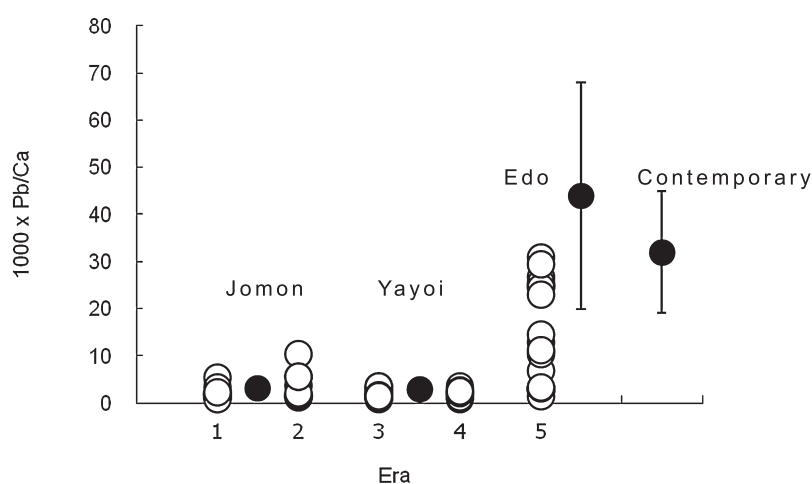
**Table 2 Element concentrations and Pb/Ca ratio in rib samples of the present study\***

Era	n	Pb (mg/kg)	Ca (g/kg)	Pb/Ca**.#	Fe (mg/kg)
Early Jomon	9	0.57 (0.23–1.7)	303 (276–341)	1.9 <sup>a</sup> (0.82–5.4)	524 (172–902)
Late Jomon	8	0.92 (0.43–3.2)	332 (302–339)	2.9 <sup>ab</sup> (1.3–10)	1509 (112–2958)
Epi-Jomon	13	0.61 (0.28–1.9)	295 (272–332)	2.0 <sup>a</sup> (0.92–3.6)	334 (81.9–1045)
Okhotsk	1	0.42	294	1.4 <sup>a</sup>	309
Satsumon	7	0.78 (0.30–1.3)	348 (289–364)	2.1 <sup>a</sup> (0.89–3.6)	650 (281–1439)
Modern	19	3.1 (0.47–9.0)	289 (203–348)	11 <sup>b</sup> (1.5–31)	676 (214–1750)
Kruskal-Wallis		p<0.001	p<0.001	p<0.001	NS

\* Median concentrations and Pb/Ca are shown in this table with min–max in the parenthesis.

\*\*  $1000 \times [\text{Pb concentration in mg/kg}] / [\text{Ca concentration in g/kg}]$ .

# Significant difference is present between the values with different alphabet (Modern is significantly different from other eras than Late-Jomon and Late-Jomon is not different from all of the other eras) (Steel Dwass test,  $p < 0.05$ ).



**Fig. 1 Plot of Pb/Ca ratio in bone excavated from sites in Hokkaido divided by era.** Open and closed circle denotes Pb/Ca ratio of bone analyzed in the present study and that of bone reported in a literature (10), respectively. Bar attached to closed circle denotes standard deviation. Era 1: Early Jomon, 2: Late Jomon, 3: Epi-Jomon and Okhotsk, 4: Satsumon, 5: Modern.

検定,  $p > 0.05$ ), 分析した骨試料の土壌による汚染の程度に時代区分間差がないことを示唆していた。

鉛/カルシウム比を年代ごとにプロットしたものを Fig. 1 に示す。なおオホーツク文化・礼文浜中遺跡からの 1 個体の値はこの図では縄文にプロットしてある。この図には比較のため、北海道以外の縄文、弥生、江戸、現代人骨中の鉛/カルシウム比の文献値 (10) をプロットした。この図にプロットした江戸時代人骨は、都内及び長野県内の遺跡から発掘された、特に社会階層の高い個体の骨ではない。

## 考 察

北海道の先史～近世遺跡から出土した肋骨試料の鉛等分析の結果、本州以南と同様に、近世以前までは鉛/カルシウム比は低くほぼ一定であったが、近世になると比は上昇した (Fig. 1, Table 2)。近世人骨の鉛/カルシウム比の中央値 11 は、江戸時代の侍階級の小児 [2100] 及び成人 [120] (3), 江戸 (東京) の石室やかめ棺から出土した成人 [250, 300] (6) など特に社会階層が高かった人々と比べると大きくはないが、Fig. 1 にも一例を示したように、それ以外の江戸時代成人 [24 ~ 60] (2, 6, 10), 現代日本人骨 [31] (10) の鉛/カルシウム比に近い値であり、浜東栄遺跡に限って言えば鉛/カルシウム比は 25

と江戸時代・現代にほぼ匹敵する。したがって近世北海道に居住していた人々の間に何らかの鉛汚染があった人がいたことが示唆される。

本州以南の江戸時代人骨の高い鉛濃度は、社会階層による差や男女差などのさまざまな状況証拠から、おしろいの使用がその原因であるとの仮説がある(2, 8)。江戸時代には交易を通じて本州以南の文物がアイヌ民族にももたらされたが、近世アイヌ民族の成人女性は口の周りを中心とした顔面に入れ墨を入れることが一般的であった(13)ため、それを隠すようなおしろいを使用した可能性は低いと考えられる。また、宇田川も「アイヌ女性はおしろいを使用しない」と述べている(宇田川, 私信, 2002)。したがって本研究で分析した近世北海道遺跡出土人骨中の高い鉛濃度は、おしろいの使用によるものではない可能性が高い。本州以南の江戸時代遺跡の出土人骨でも、長野県出土の農民の人骨中鉛/カルシウム比は13.5(10)、福岡県出土の農民の鉛平均濃度は9.2 mg/kg(7)と、おしろいを使用しなかったであろう社会階層の人々でも高い鉛レベルが報告されている。一方で、鉛によって近世の大気や環境水などが汚染されていたことを示すデータはない。室住らは北海道樽前山麓の樹齢200年のカツラの年輪中鉛分析から、1900年代以降に鉛濃度が上昇し始めることを報告した(14)。同様に、日光の杉の年輪と「入り皮」の鉛濃度を測定して大気汚染の歴史の変遷を調べた研究(15)でも、入り皮中濃度が上昇し始めるのは1900年以降であるという。東京湾の底質コアの鉛濃度も同様に1800年代まではバックグラウンドレベルであることが報告されている(16)。したがって近世の人々の鉛汚染は、一般環境の汚染からではなく、おしろい以外にも、人々に直接摂取される何かが汚染源であった可能性が高い。たとえば江戸時代に使用されるようになった食器等のうわぐすりなどが想定され、こうしたものが交易を通じてアイヌ民族にももたらされた可能性がある。

ただし本研究で分析した近世人骨は3遺跡から発掘されたものであり、近世の出土人骨の鉛/カルシウム比が高い、と一般化することはまだ適切ではないであろう。実際に、今回分析した近世3遺跡と比較すると、浜東栄遺跡は高い中央値25 [13-31, n=9]を示したが、オヤコツと末広遺跡は中央値3付近と、他の時代区分と比べて中央値には大きな違いはなかった。したがって本研究で示した近世人骨の高い鉛/カルシウム比は、浜東栄遺跡人骨の高い値を大きく反映したものであるといえる。それでも末広発掘人骨には鉛/カルシウム比が10を超える個体が5個体中2個体あった。したがってかならずしも浜東栄出土人骨に限って鉛レベルの高い個体がみいだされる、というわけではない。

この原因について、上述したように何らかの汚染源が存在した可能性のほか、埋蔵中の土壌中鉛による影響の可能性も考慮する必要がある。わが国の土壌中鉛濃度はおおむね20 mg/kg程度である(17)から、人骨中濃度に

比べると土壌のほうが高い。ところが発掘人骨の土壌からの影響を反映すると考えられる鉄濃度には時代区分による変動がなかった(Table 2)ことから、土壌からの影響が、近世人骨あるいは浜東栄遺跡の人骨で他の遺跡より大きかったために高い鉛/カルシウム比を示したという可能性は否定できる。一方、浜東栄遺跡の土壌の鉛濃度の分析は可能ではなかったので、この遺跡の土壌が何らかの原因で特異的に高い鉛濃度を示していた可能性は否定できない。北海道出土人骨でも近世になると鉛濃度が上昇するかどうかについては、今後他の遺跡からのより多数の試料の分析をすることで確認する必要がある。

利益相反なし。

## 謝 辞

本研究で分析した北海道出土人骨の一部は、東北大学名誉教授 百々幸雄先生より提供いただきました。おしろい使用をめぐるアイヌ民族の習俗については東京大学名誉教授 宇田川洋先生よりご教授いただきました。深く感謝いたします。本研究の一部は三菱財団助成金の補助を受けた。

## 文 献

- (1) Kosugi H, Hanihara K, Suzuki T, Himeno S, Kawabe T, Hongo T, Morita M. Elemental composition of ancient Japanese bones. *Sci Total Environ* 1986;52:93-107.
- (2) Hisanaga A, Eguchi Y, Hirata M, Ishinishi N. Lead levels in ancient and contemporary Japanese bones. *Biol Trace Elem Res* 1988;16:77-85.
- (3) Yoshinaga J, Yoneda M, Yoshinaga M, Matsushita T. Children of Samurai class in Edo era might have suffered from lead poisoning. *Environ Sci* 2003;10:63-69.
- (4) Nakashima T, Matsuno K, Matsushita M, Matsushita T. Severe lead contamination among children of samurai families in Edo period Japan. *J Archaeol Sci* 2011;38:23-28.
- (5) 松田 武. 一大名家の系図過去帳よりの統計的観察. *医学史研究* 1978;49:231-238.
- (6) Kosugi H, Hanihara K, Suzuki T, Hongo T, Yoshinaga J, Morita M. Elevated lead concentrations in Japanese ribs of the Edo era (300-120 BP). *Sci Total Environ* 1988;76:109-115.
- (7) Nakashima T, Matsuno K, Matsushita T. Lifestyle-determined gender and hierarchical differences in the lead contamination of bones from a feudal town of the Edo period. *J Occup Health* 2007;49:134-139.
- (8) Nakashima T, Hayashi H, Tashiro H, Matsushita T. Gender and hierarchical differences in lead-contaminated Japanese bone from the Edo period. *J Occup Health* 1998;40:55-60.
- (9) 高橋雅夫. 化粧ものがたり. 東京: 雄山閣出版, 1997.
- (10) Yoshinaga J, Yoneda M, Morita M, Suzuki T. Lead in pre-historic, historic and contemporary Japanese: stable isotopic study by ICP mass spectrometry. *Appl Geochem* 1998;13:

403–413.

- (11) Okamoto K, Fuwa K. Low-contamination digestion bomb method using Teflon double vessel for biological materials. *Anal Chem* 1984;56:1758–1760.
- (12) R Development Core Team. R: A language and environment for statistical computing. R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria, 2008.
- (13) 河野本道, 化粧と装身のアイヌ文化誌. 河野本道編, 装いのアイヌ文化誌. 札幌: 北海道出版企画センター, 2001:131–145.
- (14) 室住正世, 中村精次, 吉田勝美. 空中塵の鉛の自然生態系に対する影響. *日本化学会誌* 1982;9:1479–1484.
- (15) Bellis DJ, Satake K, Noda M, Nishimura N, McLeod CW. Evaluation of the historical records of lead pollution in the annual growth rings and bark pockets of a 250-year-old *Quercus crispula* in Nikko, Japan. *Sci Total Environ* 2002;295:91–100.
- (16) Hirao Y, Mabuchi H, Fukuda E, Tanaka H, Imamura T, Todoroki H, Kimura K, Matsumoto E. Lead isotope ratios in Tokyo Bay sediments and their implications in the lead consumption of Japanese industries. *Geochem J* 1986;20:1–15.
- (17) Takeda A, Kimura K, Yamasaki S. Analysis of 57 elements in Japanese soils, with special reference to soil group and agricultural use. *Geoderma* 2004;119:291–307.