

キルギス共和国アク・ベシム遺跡出土の瓦・磚の胎土分析

三橋 友暁^{※1}・金井 拓人^{※2}

※1 帝京大学大学院文学研究科 ※2 帝京大学文化財研究所

はじめに

I. 資料概要

II. 胎土の構成鉱物

III. 胎土の化学組成分析

IV. 混和砂の粒子解析

V. 議論

おわりに

はじめに

帝京大学シルクロード学術調査団は2016年からキルギス共和国アク・ベシム遺跡の学術調査を行っている。2017年の発掘調査では、第2シャフリスタン(Sh2)から大量の瓦が出土した。これらの瓦・磚を分析することは、瓦・磚の原産地や生産・流通構造の解明のみならず、当時の社会構造を知るための重要な手掛かりになると考えられる。

本研究では2018年の発掘調査で出土したSh2の瓦の一部について、胎土の化学組成、構成鉱物の同定、砂の粒子解析の観点から研究対象資料の分類を行った。さらに、河西(2019)により胎土分析がなされた第1シャフリスタン(Sh1)出土土器についても胎土の化学組成分析を行い、瓦・磚の化学組成との比較を行った。これらの結果からアク・ベシム遺跡における瓦や磚の動きについて考察した。

I. 資料概要

1. 資料概要

本研究で分析に使用した資料は、瓦6点、磚1点の計7点である(図1)。使用した資料は全て、キルギス共和国アク・ベシム遺跡のSh2、38735-17100地点(図2)から出土したものである。瓦6点は平瓦2点、丸瓦1点、のし瓦3点である。各資料の概要を表1にまとめる。

また、アク・ベシム遺跡の北西にあたるイヴァノフカの山砂を採取し比較試料として分析を行った。イヴァノフカはビシュケクの東に位置し、チェイ川流域に位置している。イヴァノフカの砂は資料No.8とする。



図2. 出土場所状況

2. 資料の分析前処理

本研究ではX線回折法(XRD)による胎土の構成鉱物の同定や、走査型電子顕微鏡(SEM)像による粒子解析を行うため、資料の薄片を作製した。分析資料の薄片は以下の方法で作製した。瓦・磚の資料は切断機で4×1.5cm程度の大きさに切断した。残りの資料は保存した。切断した試料はエポキシ樹脂を用いて含浸させて補強し、試料の鉛直断面切片(厚さ3mm)を切断した。山砂の試料はエポキシ樹脂で固化した後に切断し成形した。

研磨はまずカーボランダムによる研磨を#100、#400、#800、#1000、#3000、#6000まで行い、その後ダイヤモンドによる鏡面研磨を6μm、3μm、1μmの順で行った。

II. 胎土の構成鉱物

1. 分析原理と分析条件

土器や瓦の胎土中の造岩鉱物や粘土鉱物はそれらの鉱物の後背地によって変化する。そのため構成鉱

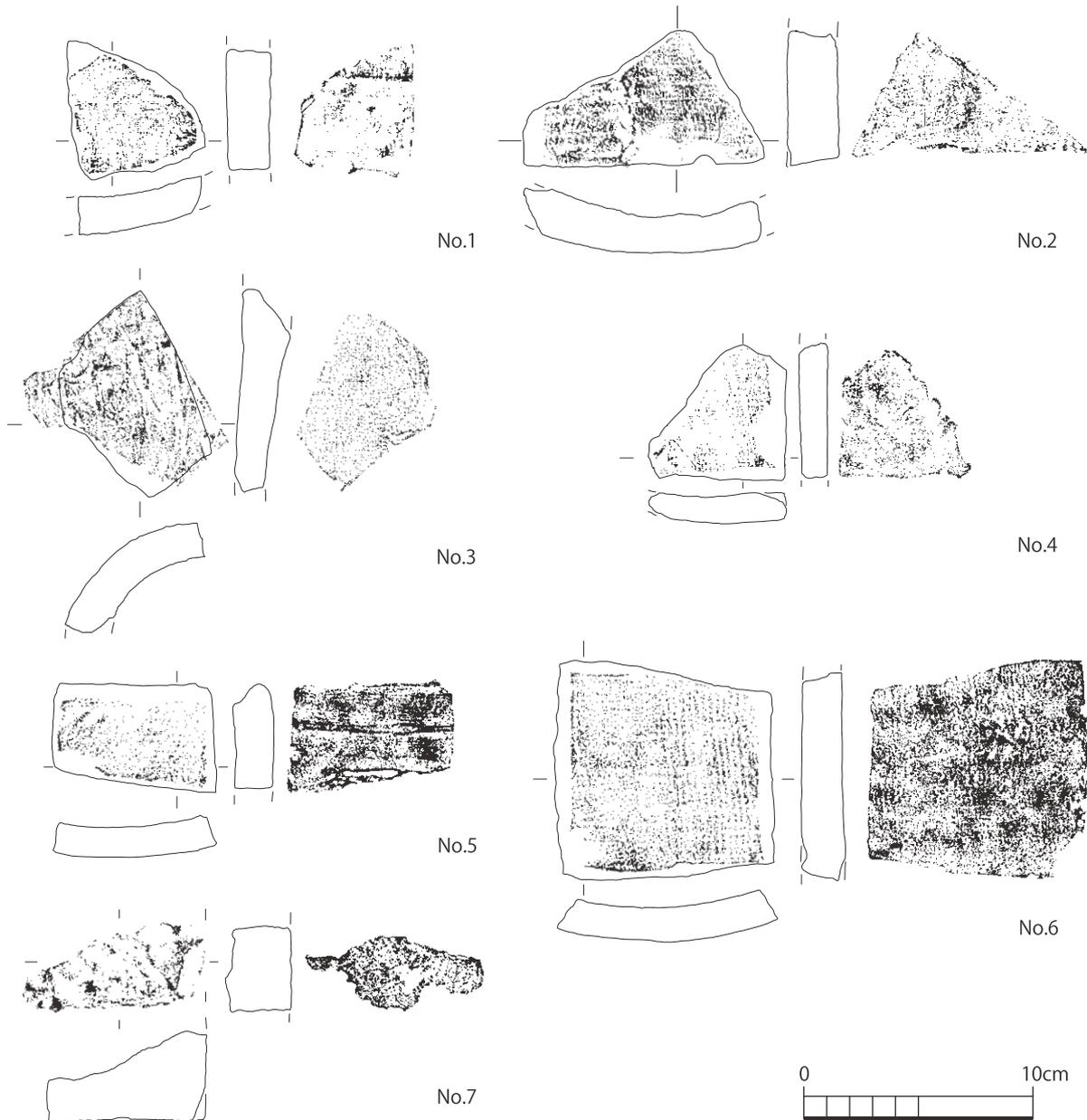


図1. 分析試料

表1. 分析試料表

資料番号	種別	色	特徴
No.1	平瓦	灰白色 (2.5Y 7/1)	凸面に横方向のナデがある。凹面に目地の細かな布目がある。肉眼では砂粒はほとんど確認されない。
No.2	平瓦	灰黄褐色 (10YR 6/2)	凹面に布目あり、布目の縦じ合わせ目のような痕もみられる。刀子による砂粒の引き摺り痕跡がある。断面から白色の粒子が確認できる。
No.3	丸瓦	灰白色 (2.5Y 7/1)	凹面に目地の細かな布目がある。白色の粒子が確認できる。
No.4	のし瓦	褐灰色 (10YR 6/1)	分割界点がある。凹面に目地の細かな布目がある。白色の粒子が確認できる。
No.5	のし瓦	にぶい橙 (7.5YR 7/4)	端部にナデ調整がある。凹面に目地の細かな布目がある。白色の粒子が確認できる。
No.6	のし瓦	灰黄色 (2.5Y 7/2)	分割界点がある。分割断面が左右両面にある。凹面に目地の細かな布目がある。粒子が少量確認できる。礫の混入がある。
No.7	磚	灰白色 (2.5Y 7/1)	2面ある。粒子が少量確認できる。

物の種類や割合、化学組成は地域ごとに差が生じると考えられる(三辻ほか,2013)。なかでも焼成温度の低い土器や瓦は胎土を構成する粘土鉱物や造岩鉱物への熱による影響が比較的low、XRD分析で粘土鉱物や造岩鉱物を検出することができると考えられている(井上,1997)。一方焼成温度の高い須恵器などではムライトやクリストバライトなどが生成されるので、これらの鉱物の検出状況から焼成温度を推定することができる(井上,1997)。そこで本研究では、胎土の造岩鉱物を推定するため、XRDによる分析を行った。

分析には、山梨県産業技術センター所有のX線回折分析装置 Smart Lab (Rigaku 製) を使用し、分析条件は、 $10^{\circ} \sim 70^{\circ}$ を $5^{\circ} / \text{min}$ で測定した。Cu管球の管電圧は 40kV、管電流は 30mA、照射範囲は 10 mm である。

2. XRD 分析結果

XRD 分析によって得られた X 線回折スペクトルを図 3 に示す。全ての試料において石英 (Quartz: R100134)、長石類 (Albite: R040068) のピークが確認できた。一方で 1000°C 以上の高温条件下で生成されると考えられている (Rice 1987; 井上,1997) ムライト (Mullite: R141101) やクリストバライトのピーク (Cristobalite: R061107) は確認できなかった。

III. 胎土の化学組成分析

1. 分析原理と分析条件

前述したように土器や瓦の胎土の化学組成は地域ごとに差が生じると考えられる(三辻ほか,2013)。そこで本研究では、帝京大学文化財研究所所有の蛍光 X 線分析装置 (XRF) を用いて胎土の化学組成分析を行った。

分析にはハンドヘルド蛍光 X 線分析計、DELTA Professional (OLYMPUS 製) を利用した。本機は対陰極物質に Rh (ロジウム) を利用したエネルギー分散型の XRF で、本研究で利用する Mining Plus モードでは管電圧に 40keV (通常モード: ビーム 1) と 10keV (軽元素モード: ビーム 1) を採用している。分析時間はビーム 1 を 30 秒、ビーム 1 を 60 秒とした。X 線の照射範囲は約 $\phi 10\text{mm}$ である。分析回数は 1 試料につき 10 回とし、10 回の分析では分析範囲を

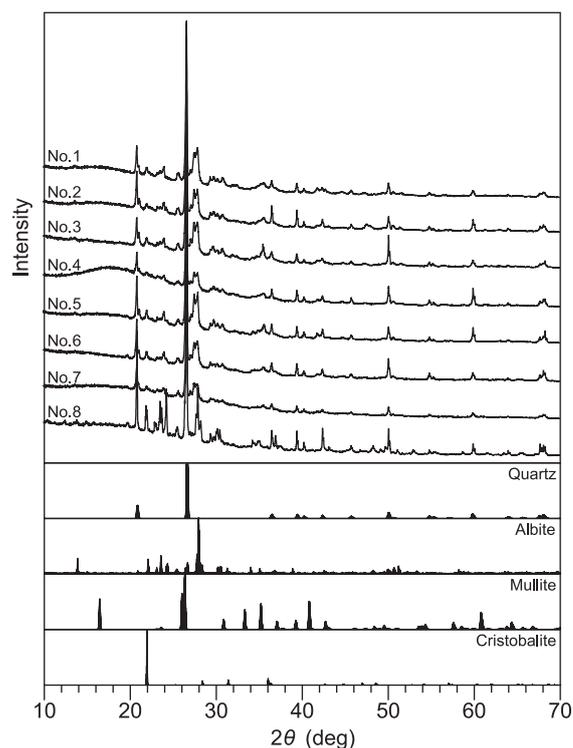


図 3. X線回折スペクトル

少しずつ変更させながら分析を行った。

Sh1 出土土器についても同様の分析条件で分析を行った。分析対象資料は河西 (2019) による分析番号 No.1 ~ No.6 と No.9 の試料である。なお、本稿では瓦や磚の分析番号と混同を避けるため土器の分析番号を“土器No.”と称する。土器の XRF 分析資料は薄片ではなく、薄片作製時に保存用として残された試料とし、試料の切断面を分析した。

2. XRF 分析結果とその統計解析

瓦・磚の蛍光 X 線スペクトルを図 4 に、土器の蛍光 X 線スペクトルを図 5 に示す。次に、これらの蛍光 X 線スペクトルを対象に、多変量解析に基づくクラスタリングを行った。蛍光 X 線スペクトルの多変量解析には、絵画のマッピング分析 (Sciutto et al., 2011)、土壌中の栄養素分析 (Kaniu et al., 2011; Melquiades et al., 2013)、医薬品の品質検査 (Ortiz et al., 2011)、紙幣の識別 (Appoloni and Melquiades, 2014) などで利用される、主成分分析を利用した。主成分分析については数多くのレビューがなされており (Bro and Smilde: 2014, Jolliffe and Cadima: 2016)、詳細はこれらの総説に委ねるが、端的には原点の移動と軸の回転によって情報損失を最小に抑

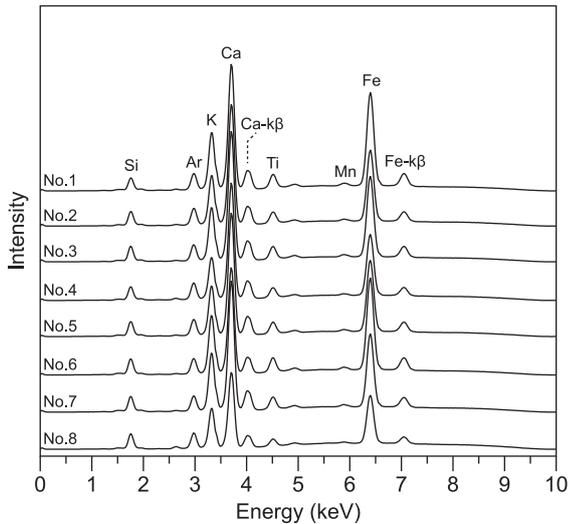


図4. 瓦・塼の蛍光X線スペクトル

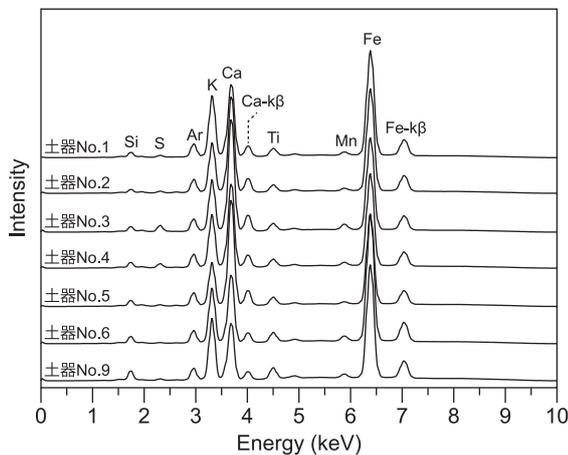


図5. Sh1出土土器の蛍光X線スペクトル

えつつデータの分散が最大となるように次元を圧縮する解析方法である。

瓦・塼・土器のすべてを対象とした主成分分析結果を図6に示す。図6より、瓦・塼の主成分スコアと土器の主成分スコアは異なるスコアを示した。瓦・塼の主成分スコアでは試料No.6のみ他の試料とは異なるスコアを示した。土器の主成分スコアでは土器No.1・6・9のグループと土器No.2・3・4・5のグループで異なるスコアを示した。

IV. 混和砂の粒子解析

1. 解析原理と分析条件

胎土に混入された砂の粘土に対する混合比は土器を製作した集団に特有の混合比であり、同じ集団が製作した土器中の砂の混合比はほとんど同じものに

なると考えられる（井上,1997）。そこで本研究ではSEMによって得られる反射電子像（BSE像）を利用して、画像解析によって砂の混合比を算出した。また、それぞれの砂について、面積、近似楕円のアスペクト比（AR）、粒形の複雑さ（ ζ = 粒子の輪郭の長さ / 近似楕円の周長；杉本ほか,1989）などの粒子解析パラメーターを算出し比較を行った。

分析には山梨県立博物館所有の走査型電子顕微鏡Quanta 600（FEI製）を利用し、加速電圧10kV、低真空（30Pa）、倍率100倍にて観察を行った。BSE像は1試料につき5枚撮影し、撮影場所はランダムで決定した。撮影したBSE像は画像解析ソフトImage Jによって画像解析を行った。画像解析手順は次の通りである。(1) BSE像の輝度ヒストグラムから砂と混和剤の輝度閾値を決定する。(2) 砂の輝度値を持ち、粒子面積が $50\mu\text{m}^2$ 以上のものを抽出する（図7）。(3) 面積、近似楕円の長径・短径、輪郭の長さを測定し、その値をもとに粒子解析パラメーターを算出する。

2. 結果

各試料の砂の混合率（混砂率）はNo.1から順に4.7%、24.7%、18.7%、20.8%、20.6%、11.2%、11.7%となった。No.2が約25%で最も多く、No.3・4・5がおおよそ20%、No.6・7が10%を少し超え、No.1が5%を下回る混砂率となり、4タイプに大別できる。

各試料の面積の対数を箱ひげ図で図8に示す。図8をみると、試料No.1は比較的小さい砂によって構成されている。

各試料の近似楕円のアスペクト比を箱ひげ図で図9に示す。アスペクト比は1以上の値を持ち、1に近いほど円に近いことを示す値である。各試料のノッチ（中央値の95%信頼区間）は少しずつ重なっており、全体的にはアスペクト比に大きな違いはないと評価できる。

各試料の粒形の複雑さ ζ を箱ひげ図で図10に示す。 ζ は平滑楕円に近いほど $\zeta=1$ に近づき、凹凸の度合いが大きいほど $\zeta=0$ に近づく。図10を見ると、試料No.3は ζ の値が小さく粒子の凹凸が大きいこと、試料No.4、6は ζ の値が大きく粒子の凹凸が小さい（円磨度が大きい）ことがわかる。

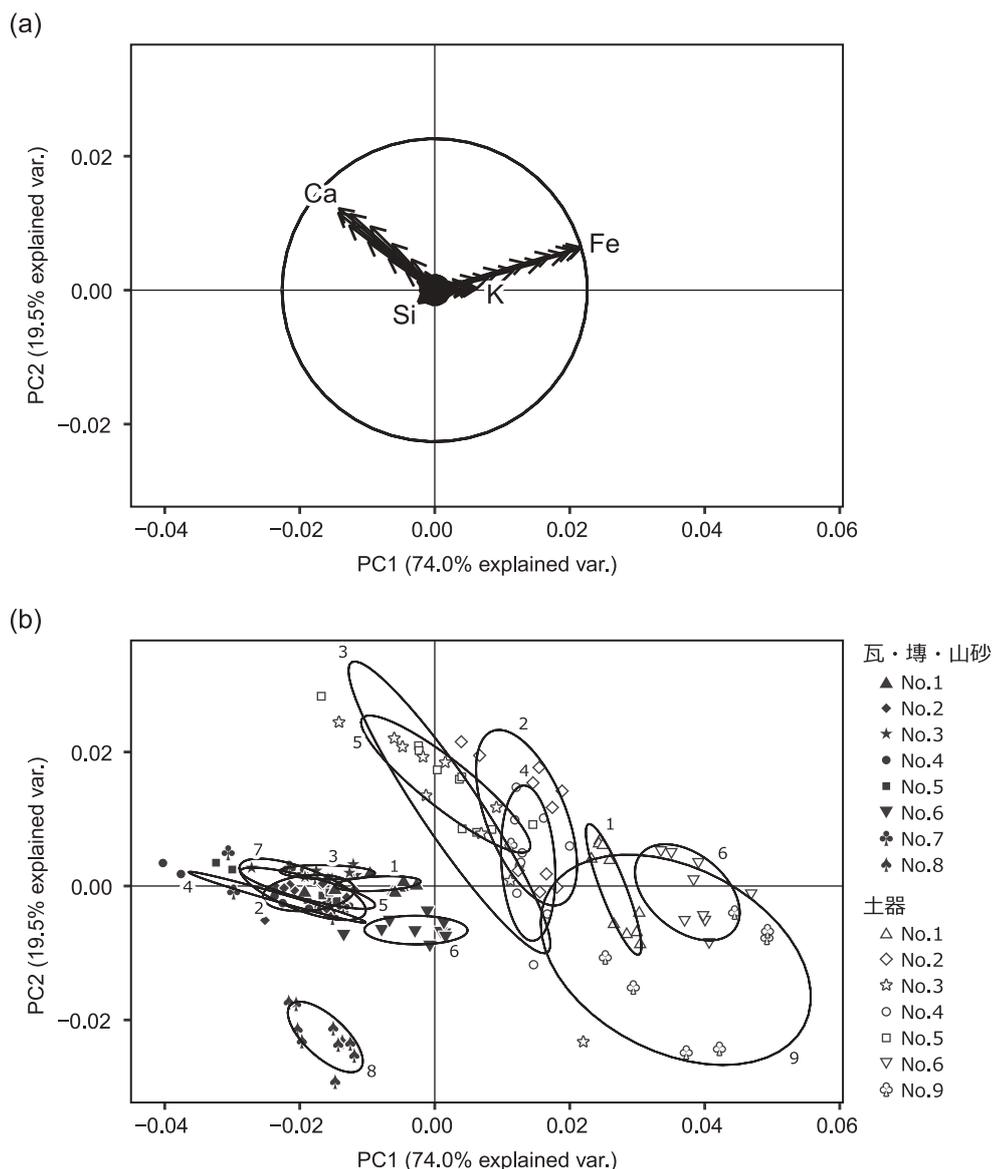


図6. 瓦・埴・山砂・土器の主成分分析スコア

V. 議論

1. 化学分析に基づく瓦・埴のグルーピング

XRD分析の結果(図3)からすべての資料から石英と長石類のピークが検出されたが、イヴァノフカの砂(資料No.8)については瓦・埴よりも長石類のピークが強いという特徴を示した。XRF分析の結果(図6)では試料No.6のみその他の瓦・埴とは異なるスコアを示したが、イヴァノフカの砂と比較すると資料No.6もその他の瓦・埴に近いスコアを示す。すなわち、本研究で扱った瓦・埴は化学分析結果からは単一のグループにまとめることができると考えられる。すなわち、どの資料の砂も同様の基盤

岩を後背地とする産地から採取されたと考えられ、その砂はイヴァノフカの砂とは異なる結論付けられる。

2. Sh1 出土土器との比較

瓦・埴と土器のXRF分析結果(図6)より、瓦・埴と土器の化学組成は異なる判断できる。具体的には、瓦・埴の化学組成は土器の化学組成に比べてFeが少ないという特徴を示す。さらに、イヴァノフカの砂(資料No.8)は瓦・埴とも土器とも化学組成が異なる。

Sh1の土器とSh2の瓦・埴の化学組成は異なる値を示したが、これは瓦・埴と土器に用いられる原

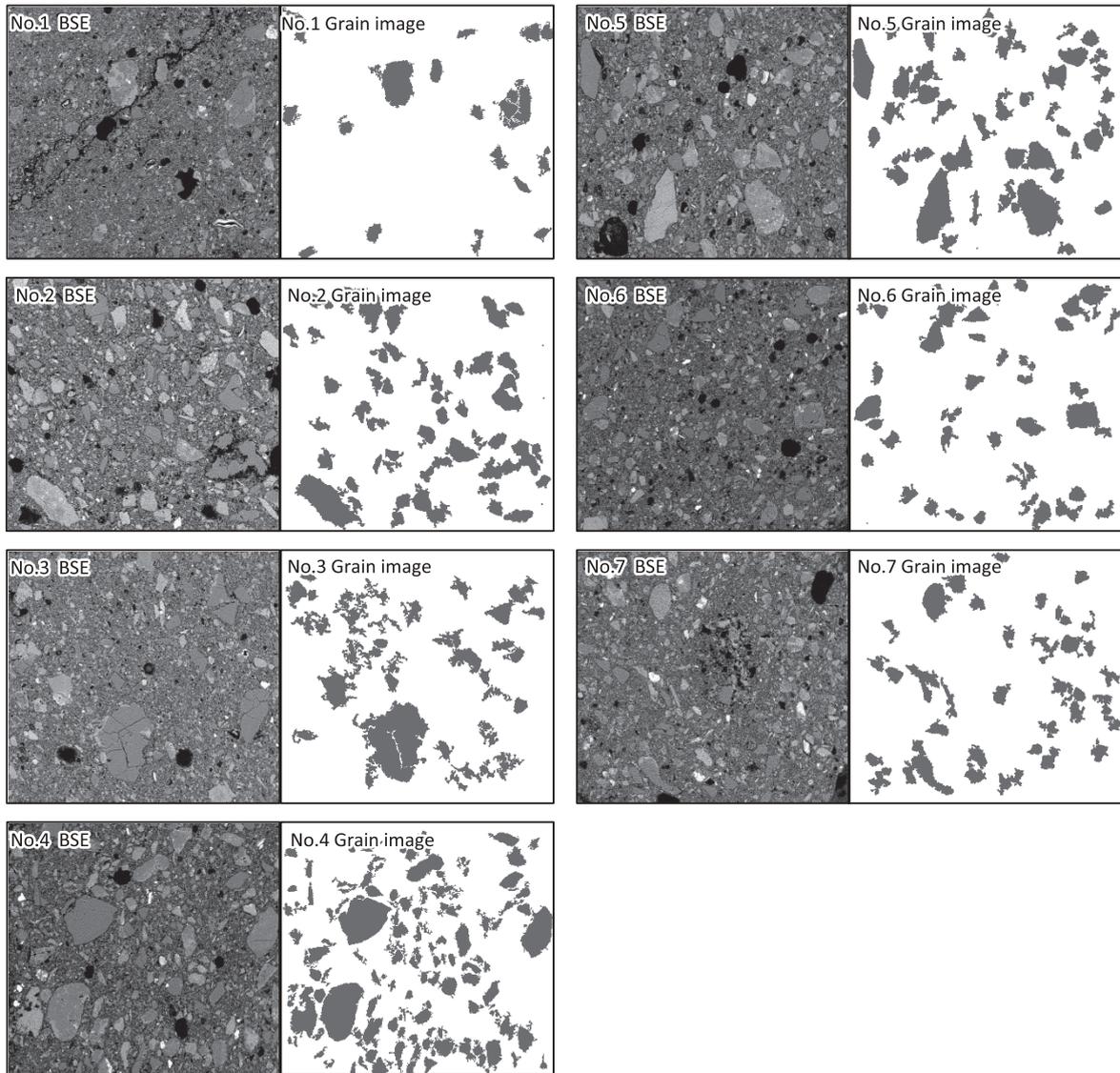


図7. SEM-BSE 像と抽出した $50\mu\text{m}^2$ 以上の粒子

料や混和材が異なるためだと考えられる。その要因として瓦・磚の製作集団と土器の製作集団は異なる集団であることが考えられ、Sh1 と Sh2 で位置的に約 1km 離れていることや遺構の時代が異なることと照らし合わせても矛盾しない。

3. 瓦・磚の混和砂の採取環境について

前述したように XRD 分析および XRF 分析の結果から、本研究で分析対象とした瓦・磚の混和砂の後背地は同一の基盤岩であると考えられる。加えて、XRD 分析によって重鉱物が検出されずに石英および長石類のみが検出されたことから、その基盤岩は花崗岩類もしくは堆積岩類であると考えられる。

一方で粒子解析の結果では混和砂の粒子解析パラ

メーターは試料ごとに採集地が異なる可能性を示している。すなわち、粒子面積が他の試料より小さい No.1 の試料は、アスペクト比が小さく円形に近く、また、粒形の複雑さは中間程度である程度円磨されている特徴を示す。この特徴は砂が相対的に長距離を運搬されたことを示している。また、粒形の複雑さが他の試料より小さく複雑な形状を示す No.3 の試料は、アスペクト比が大きく楕円形に伸張しており、また、粒子面積が大きい特徴を示す。この特徴は砂が相対的に短距離しか運搬されず、あまり円磨されていないことを示す。

以上の結果から混和砂の採取は広域的には基盤岩の一致する範囲で行われたものの、狭域的には例えば川の上流と下流のような異なる複数の地点におい

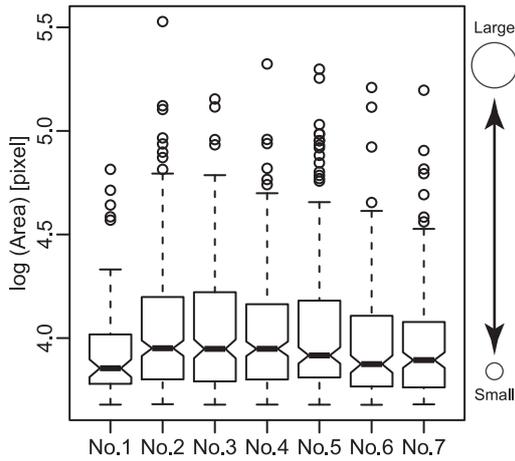


図8. 粒子面積の箱ひげ図

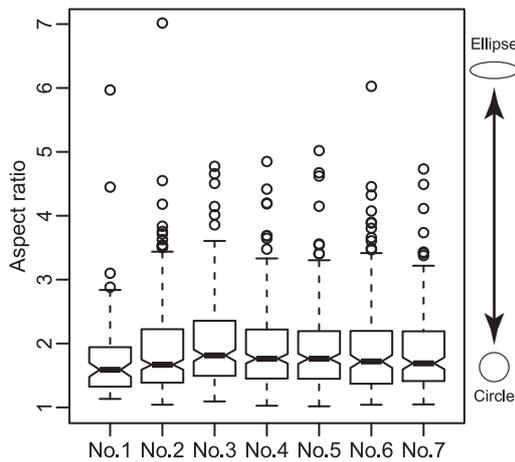


図9. 近似楕円のアスペクト比の箱ひげ図

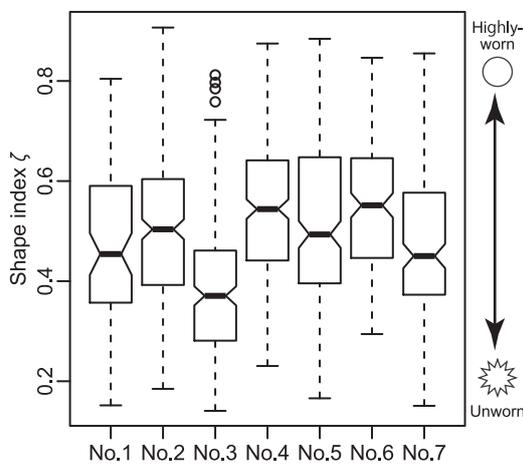


図10. 粒形の複雑さの箱ひげ図

て行われたと考えられる。

おわりに

本研究ではまずアク・ベシム遺跡の Sh2 から出土した瓦・磚の一部について、胎土の化学組成、構成鉱物の同定、砂の粒子解析を行った。その結果、瓦・磚のグルーピングには XRD 分析、XRF 分析および粒子解析が有効であることが明らかとなった。

分析の結果、本研究で対象とした瓦・磚の原料の採集場所は基盤岩が同一の異なる場所で採集されていると考えられる。また、瓦・磚の製作時にも混和砂の量や割合には差異が見られ、これらは原料を採集した人間や瓦・磚を製作した工程等の違いを反映していると考えられる。

本研究では比較試料として、イヴァノフカの山砂および Sh1 の土器を使用した。どちらも Sh2 の瓦・磚とは異なるものであった。一方で本研究では分析試料数が少なく、遺跡の特徴を正確に反映しているとは断言できない。アク・ベシム遺跡における瓦・磚や土器の動きを明らかにするためには、今後の継続した調査が必要である。

謝辞

本研究を行うにあたり、山内和也教授をはじめとする帝京大学シルクロード学術調査団の方々には発掘調査や資料整理で丁寧なご指導をいただいた。帝京大学文化財研究所の榎原功一氏には実測図作成・執筆の際に助言をいただいた。山梨文化財研究所の河西学氏には分析試料の作製方法をご指導いただき、比較試料も提供していただいた。山梨文化財研究所の望月秀和氏には資料の入手や図作成でご協力いただいた。帝京大学文化財研究所の村上夏希氏には XRD 分析の操作に際してご指導いただいた。山梨県立博物館の西願麻以氏には SEM 分析において協力いただいた。帝京大学大学院生の中島一成氏には議論と協力を頂いた。以上の方々にお礼申し上げます。

文献

- 井上巖 1997「胎土分析法と分析例—大阪府下の埴輪窯跡出土埴輪の産地同定—」日本考古 4 91-107.
- 河西学 2019「キルギス共和国アク・ベシム遺跡出土土器胎土の岩石鉱物組成」帝京大学文化財研究所研究報告 18 印刷中.

- 鐘ヶ江賢二・棟上俊二 2015「第V章 理化学的分析による鞠智城跡出土土器・瓦の生産地推定」『鞠智城跡出土土器・瓦の生産地推定に関する基礎的研究』熊本県立装飾古墳館分館, 歴史公園鞠智城・温故創生館 43-59.
- 杉本益規・横田尚子・中沢秀樹 1989「1つの形状指数に基づく粒子形状の評価」粉体工学会誌 16 614-631.
- 平賀章三 1978「素地作製の技法解析—モード測定法を応用した粒度分析から—」奈良教育大学紀要 17 99-113.
- 松田順一郎・別所秀高 1991「粒径頻度分析からみた混和材—東大阪市内採集の土器試料と粘土試料の分析を通して—」東大阪市文化財協会ニュース 5 11-35.
- 的場宏純・平賀章三 1985「粘土焼成における焼成時間効果—焼成温度推定における留意点—」古文化財教育研究報告 14 17-14.
- 三辻利一・中園聡・平川ひろみ 2013「土器遺物の考古科学的研究」文化財科学 61 73-87.
- Appoloni, C. R. and Melquiades, F. L., 2014, Portable XRF and principal component analysis for bill characterization in forensic science, *Applied Radiation and Isotopes*, 85, 91-95.
- Bro, R. and Smilde, A. K., 2014, Principal component analysis, *Anal. Methods*, 6, 1811-1831.
- Jolliffe, I. T. and Cadima, J. 2016 Principal component analysis: a review and recent developments, *Philosophical Transactions of the Royal Society A*. 374, 20150202.
- Kaniu, M. I., Angeyo, K. H., Mangala, M. J., Mwala, A. K. and Bartilol, S. K., 2011, Feasibility for chemometric energy dispersive X-ray fluorescence and scattering (EDXRFS) spectroscopy method for rapid soil quality assessment, *X-RAY SPECTROMETRY*, 40, 431-440.
- Lafuente, B., Downs, R. T., Yang, H. and Stone, N., 2015, The power of databases: the RRUFF project. In Armbruster, T. and Danisi, R. M. eds., *Highlights in Mineralogical Crystallography*, Berlin, Germany, W. De Gruyter, 1-30.
- Melquiades, F. L., Andreoni, L. F. S., and Thoma2, E.L., 2013, Discrimination of land-use types in a catchmet by energy dispersive X-ray fluorescence and principal component analysis, *Applied Radiation and Isotopes*, 77, 27-31.
- Ortiz R. S., Mariotti K. C., Schwab N. V., Sabin G. P., Rocha W. F., de Castro E. V., Limberger, R. P., Mayorga, P., Bueno, M.I. and Romão, W., 2011 Fingerprinting of sildenafil citrate and tadalafil tablets in pharmaceutical formulations via X-ray fluorescence (XRF) spectrometry, *Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis*, 58, 7-11.
- Rice, P. M. 1987. *Pottery Analysis: a sourcebook*. University of Chicago Press, 559p.
- Sciutto, G., Oliveri, P., Prati, S., Quaranta, M., Bersani, S. and Mazzeo, R., 2011, An advanced multivariate approach for processing X-ray fluorescence spectral and hyperspectral data from non-invasive in situ analyses on painted surfaces, *Analytica Chimica Acta*, 751, 30-38.