

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 28 日現在

機関番号：35302

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21K00994

研究課題名(和文) 磁気学的・鉱物学的手法による土器焼成環境の解明 鉄・酸素の挙動から

研究課題名(英文) Elucidation of the pottery firing environment derived from the behavior of iron and oxygen using magnetic and mineralogical techniques

研究代表者

畠山 唯達 (Hatakeyama, Tadahiro)

岡山理科大学・フロンティア理工学研究所・教授

研究者番号：80368612

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、土(土壌・粘土を含む)と熱を加えた結果である土器・窯体間にある鉄鉱物の変化を磁気的・鉱物学的・地球化学的手法を使って追跡した。その結果、土器焼成における最高温度と酸素雰囲気、粘土の酸素雰囲気や有機物含有量、燃料となる薪、などによって土器表面および内部において磁性をもった鉄鉱物(鉄酸化物)の上昇が確認され、それが土壌中にある非磁性な鉄鉱物・非晶質に由来することが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果から、土・粘土の焼成前後における鉄鉱物の対応関係を推測するための手立てが提供された。「焼け」度合から「磁性の強さ」あるいは「熱残留磁化」残留磁化の強さが推定できるようになることが期待され、埋没被熱遺構においてトレンチ調査前の段階で磁気異常の測定をすることで、遺構の大きさだけでなく、被熱土厚、被熱温度などが事前に推定することが可能になる。また、粘土と焼成土器の化学・鉱物学分析結果より、出土土器に対する胎土分析の結果から元となる土の組成を推定する手がかりを得た。さらに、遺構面に被熱部があるかの調査をするための基礎資料となり、いずれも考古学・文化財科学の発展に寄与することが期待される。

研究成果の概要(英文)：In this study, we used magnetic, mineralogical, and geochemical methods to trace changes in iron minerals between the soil (including soil and clay) and the pottery and kiln body as a result of heat application. The results showed that the increase of magnetic iron minerals (iron oxides) on the surface and inside of pottery vessels, depending on the maximum temperature and oxygen atmosphere in pottery firing and the organic content of clay and fuel wood, were derived from non-magnetic iron minerals/amorphous materials in the soil.

研究分野：地磁気・古地磁気・考古地磁気・岩石磁気

キーワード：土器 被熱遺構 鉄鉱物 岩石磁気学 鉱物学 地球化学

1. 研究開始当初の背景

考古学・文化財科学において、土器・瓦等やそれらを焼成した古窯の内面、住居跡中の焼土等に含まれる強磁性鉱物(磁鉄鉱や赤鉄鉱)の量が周りの土壌や地盤よりも多く、記録されている残留磁化(磁気的シグナル)も強いことが、考古地磁気学や物理探査(磁気異常・表面帯磁率)などの磁性・磁化に関する研究の基盤となっている。また、土器や陶器、とくに無釉のもの表面色を決定づける主要因も鉄化合物である。しかし、焼土・土器の元となる土壌・粘土中には鉄がさまざまな形で含まれているものの強磁性鉱物中のものはごくわずかしかない。つまり、土壌や粘土が熱を受けた際に鉄を含む鉱物・化合物が強磁性鉱物へ変質したと推測される。しかし、この変化の詳細な機構と経路はいまだ明らかではない。

2. 研究の目的

上記のような背景のもとに、土器の焼成環境における鉄鉱物の挙動を、地球科学的分析手法(岩石磁気学、鉱物学、地球化学)を用いて明らかにすることが研究の大目標である。しかし、粘土の成分は複雑で母岩の地質・気候・水系など環境に大きく依存する。また、土器や焼土遺構には、素材となった粘土や土壌に由来する鉱物・組織のほかに、焼成温度上昇時や降下時の物理化学反応によって生じた鉱物や微細組織など、様々な段階で形成された鉄含有鉱物が非平衡に混在している可能性が高い。そのため、単純に元素分配だけを考え「一般的にこうだ」或いは「理論的にこうなるに違いない」と結論付けるのは大変困難である。そこで、今回の研究では、限定された条件下で焼成された土および焼成前の土について、いくつかの磁気学・鉱物学・地球科学的手法で分析し、土器片や残存窯体(床・壁・天井)に存在する鉄鉱物等について来歴の手がかりを探ることを目的とした。

3. 研究の方法

本研究の測定対象は、大きく分けて[1]中世備前焼復元窯において焼成した陶片等(研究協力者に焼成を依頼)[2]電気炉によって管理された環境下で粘土を焼成したもの[3]発掘された土器・古窯片の3種類である。

これらについて、磁気学的測定として、(A)磁気特性測定装置(MPMS)を使った残留磁化着磁、低温における磁性の測定、(B)振動磁力計、MPMS等を用いた磁気ヒステリシスの測定、(C)熱磁気天秤を用いた高温における磁性の測定と変質の確認を行った。また、(D)鉱物学・地球化学的分析として、走査型電子顕微鏡(SEM)等を用いた焼成断面の顕微鏡観察および元素マッピング等による化学変化と元素の移動の分析、(E)蛍光X線分析による元素存在度の分析、等を行った。

4. 研究成果

本計画における主な研究成果は以下に挙げるものである。

炉内焼成環境下での土器表面層および内層における反応と鉄鉱物の生成

土器表面には、自然釉と呼ばれるガラス層が形成されることがある。これは、一定温度以上で燃料となる木材等の有機物由来の元素と土器表面の鉱物・非晶質が反応し生じるガラス+鉱物層である。この中に新たに晶出する鉄鉱物について顕微鏡観察と元素・鉱物分析から、母岩中にはあまり見られないマグネシオフェライト(図1)やシュードブルッカイトなどの含鉄鉱物の晶出が起きているなど、いくつかの新たな知見を得た。また、反応縁よりも内側での元素の移動に関する考察も得た。岩石磁気的には、反応縁部および内部にて、ルオグフェンジャイトの晶出が確認されたが、窯内の位置でその様相が若干異なることが分かった。おそらく、窯における温度・酸素濃度の違いを反映しているものと思われる。

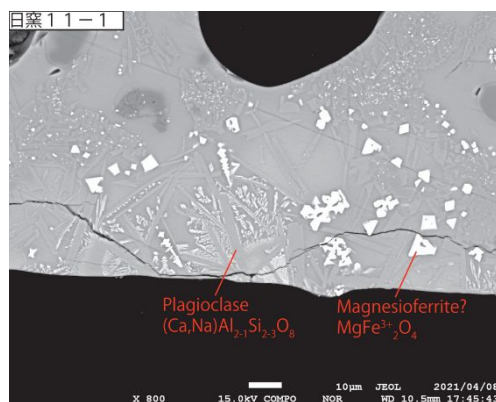


図1:土器表面の反応層内の含鉄鉱物の様子

土器焼成時の温度による鉄化合物の反応と磁性

比較的酸化的な(赤い)粘土と還元的な(黒い)粘土について、それぞれ、400, 800, 1200 で実験炉内焼成(木質燃料を使わない)し、各種磁性を測定した。酸化的土の空気中内焼成では、複雑に磁性鉱物が変化していくさまが見られた。もっとも強力な磁性鉱物である磁鉄鉱は、400 で一度できるものの、それより温度の高い焼成では、量が減っているという、当所予想していた結果とは全く異なるものとなった。一方、1~10Pa 前後の中真空中での焼成では、磁鉄鉱が晶出し、その保磁力が温度とともに上がっていくことが分かった。こちらは古地磁気学的な推察と調和的な所がある。一方、粘土について、段階的に温度を上げながら強磁場下での磁性を測定することで、どの温度段階でどのように変化をしていくかを観察したところ(図2) 200・450~550 付近で磁性鉱物の種類と量が大きく変化したことがわかった。

また、実例として、古墳時代後期の陶棺片について、磁性測定を 600 で加熱する前後で行ったところ、顕著な差異が見られた。このことから、陶棺の焼成温度が 600 以下であることが推察されたが、研究協力者らが行った他の測定からも同様のことが裏付けられた。

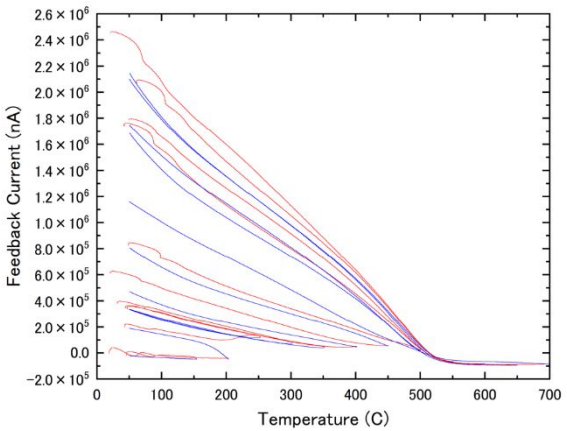


図2: 段階加熱法による磁性の変化の様子

土器窯内部の温度変化と生成物の関係

研究協力者の備前焼作家が作成する中世備前焼の復元窯において、内部に複数の温度計を設置して同時多点観測を最大9点(1秒値)行い、窯元が設置する2ヶ所の温度計(1時間値)と併せて、焼成の間の温度変化と窯焚きの様子、火の回りなどを比較した。その結果より、窯内における水平・鉛直方向の温度場と流れの停滞性に関するいくつかの考察を得た。(1)昇温時の窯内の温度差は常に前後で 200~300 もあること、(2)横焚き口を使用しはじめ、手前の焚口を閉じた瞬間から横焚き口以下の温度は急降下すること、(3)備前焼の場合、薪投入終了から窯を密閉するまでの間に 400~500 の温度降下があり、その間に陶器の表面状態が決定されること、(4)窯内ではらせん状に火焰が移動するが、とくに広い部分では停滞しており、温度の変化の伝搬に数十秒かかること、などが考えられる。

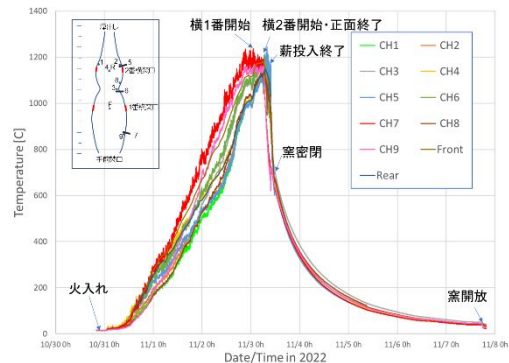


図3: 備前焼復元窯における同時多点温度観測

これらのことから、現時点では土から土器・焼土への加熱による鉄鉱物の変化の特徴として、最高温度および酸素濃度に依るだけでなく、土に含まれる有機物量や、窯内での位置にも依存することがわかってきた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 2件）

| | |
|---|-------------------------|
| 1. 著者名 Tema E., Hatakeyama T., Ferrara E., Davit P., Polymeris G.S., Mitsumoto J., Matsumoto N. | 4. 巻 66 |
| 2. 論文標題 Insights on the firing temperature of ancient ceramic coffins through a multi-analytical approach: The case of the Sada Nishizuka Kofun, Japan | 5. 発行年 2024年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Cultural Heritage | 6. 最初と最後の頁 265 ~ 270 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.culher.2023.11.022 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

| | |
|---------------------------------------|-----------------------|
| 1. 著者名 畠山唯達, 加藤千恵 | 4. 巻 5 |
| 2. 論文標題 MPMSを使用した岩石磁気学的測定 | 5. 発行年 2023年 |
| 3. 雑誌名 岡山理科大学フロンティア理工学研究所研究報告 | 6. 最初と最後の頁 39 ~ 43 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である) | 国際共著 - |

| | |
|---|--------------------|
| 1. 著者名 ADACHI Tatsuro, KAWAKAMI Tetsuo, HIGASHINO Fumiko, UNO Masaoki | 4. 巻 118 |
| 2. 論文標題 Metamorphic rocks with different pressure-temperature-time paths bounded by a ductile shear zone at Oyayubi ridge, Brattnipene, S?r Rondane Mountains, East Antarctica | 5. 発行年 2023年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Mineralogical and Petrological Sciences | 6. 最初と最後の頁 S014 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2465/jmps.230220 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である) | 国際共著 - |

| | |
|--|-----------------------|
| 1. 著者名 畠山唯達 | 4. 巻 160 |
| 2. 論文標題 近江坂本城跡出土瓦の残留磁化測定による被熱履歴分析 | 5. 発行年 2023年 |
| 3. 雑誌名 坂本城跡出土瓦の再整理、大津市埋蔵文化財調査報告書 | 6. 最初と最後の頁 27 ~ 34 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計16件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

| |
|---|
| 1. 発表者名 畠山唯達 |
| 2. 発表標題 地磁気・古地磁気・岩石磁気学的手法による考古学・人類学への貢献 |
| 3. 学会等名 研究集会「地球電磁気学と考古学・人類学の連携による人類生息環境の変遷研究の展開」 |
| 4. 発表年 2024年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 加藤千恵, 畠山唯達 |
| 2. 発表標題 土器焼成による磁性鉱物変化 |
| 3. 学会等名 研究集会「地球電磁気学と考古学・人類学の連携による人類生息環境の変遷研究の展開」 |
| 4. 発表年 2024年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 畠山唯達, 平川 忠, 赤井夕希子, 加藤千恵, 足立達朗 |
| 2. 発表標題 古備前焼復元窯における温度測定と燃焼環境の推定 |
| 3. 学会等名 研究集会「地球電磁気学と考古学・人類学の連携による人類生息環境の変遷研究の展開」 |
| 4. 発表年 2024年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Tatsuro Adahi, Tetsuo Kawakami, Fumiko Higashino, Masaoki Uno |
| 2. 発表標題 Petrography of V and Zn-rich gahnite-sillimanite-muscovite gneiss from Menipa, S?r Rondane Mountains, East Antarctica |
| 3. 学会等名 The 14th Symposium on Polar Science (国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 畠山唯達, 平川 忠, 赤井夕希子, 加藤千恵, 足立達朗 |
| 2. 発表標題 備前焼中世古窯復元窯における内部温度の時間変化 |
| 3. 学会等名 日本文化財科学会第40回大会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 加藤千恵, 畠山唯達, 足立達朗 |
| 2. 発表標題 被熱による粘土～土器中の磁性鉱物の生成と変化について(1) - 復元窯焼成実験と段階熱磁気分析による逐次観察から - |
| 3. 学会等名 地球電磁気・地球惑星圏学会第144回総会及び講演会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 畠山唯達, 加藤千恵, 足立達朗 |
| 2. 発表標題 熱による粘土～土器中の磁性鉱物の生成と変化について(2) - 最高到達温度と生成磁性鉱物の関係性 - |
| 3. 学会等名 地球電磁気・地球惑星圏学会第144回総会及び講演会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 北原 優, 畠山唯達, 山形真理子, グエン ヴィエト |
| 2. 発表標題 考古岩石磁気学的手法によるベトナム・ランヴァイン岩陰遺跡土壌の被熱判定 |
| 3. 学会等名 地球電磁気・地球惑星圏学会第144回総会及び講演会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 足立達朗, 河上哲生, 東野文子, 宇野正起 |
| 2. 発表標題 東南極セール・ロンダーネ山地, メーニパに産する異なるP-T-t履歴を示す変成岩類 |
| 3. 学会等名 日本地質学会第130年学術大会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 足立達朗, 河上哲生, 東野文子, 宇野正起 |
| 2. 発表標題 東南極セール・ロンダーネ山地, メーニパ地域に産するバナジウムと亜鉛に富む亜鉛スピネル-珪線石-白雲母片麻岩の記載岩石学的特徴 |
| 3. 学会等名 日本鉱物科学会2023年年会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|------------------------------------|
| 1. 発表者名 加藤千恵, 畠山唯達, 足立達朗 |
| 2. 発表標題 土器焼成時の磁性鉱物の生成・変化について |
| 3. 学会等名 2023年度地磁気・古地磁気・岩石磁気夏の学校 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|------------------------------------|
| 1. 発表者名 畠山唯達 |
| 2. 発表標題 考古地磁気において熱消磁曲線が折れ曲がる件 |
| 3. 学会等名 2023年度地磁気・古地磁気・岩石磁気夏の学校 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|----------------------------------|
| 1. 発表者名 畠山唯達, 横田大峻, 北原優, 中村直子 |
| 2. 発表標題 弥生時代の古地磁気強度変化について |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2023年大会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Tema, E., Hatakeyama, T., Ferrara, E., Davit, P., Polymeris, G.S., Mitsumoto, J., Matsumoto, N. |
| 2. 発表標題 Rock magnetism for investigating the firing temperature of ancient ceramic artifacts: The case of the Sada Nishizuka coffin, Japan |
| 3. 学会等名 European Geoscience Union General Assembly 2023 (国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 畠山唯達 |
| 2. 発表標題 粘土などから湧き出てくる磁鉄鉱粒子と土器窯の中の状況 |
| 3. 学会等名 地球電磁気・地球惑星圏学会 地磁気・古地磁気・岩石磁気分科会夏の学校2022 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 加藤千恵、畠山唯達、足立達朗 |
| 2. 発表標題 土器焼成時の鉄鉱物の挙動に関する岩石磁気学的研究 |
| 3. 学会等名 地球電磁気・地球惑星圏学会 地磁気・古地磁気・岩石磁気分科会夏の学校2022 |
| 4. 発表年 2022年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

産官学連携：
畠山唯達，平川 忠，赤井夕希子，加藤千恵，足立達朗，備前焼中世古窯復元窯における内部温度の時間変化，第28回岡山リサーチパーク研究・展示発表会，テク
ノサポート岡山，2023年12月12日

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|-----------|---|--------------------------------------|----|
| 研究 分担者 | 足立 達朗 (Adachi Tatsuro) (00582652) | 九州大学・比較社会文化研究院・助教 (17102) | |
| 研究 分担者 | 加藤 千恵 (Kato Chie) (00828478) | 九州大学・比較社会文化研究院・助教 (17102) | |

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|-----------|--------------------------------|-----------------------|----|
| 研究 協力者 | 平川 忠 (Hirakawa Tadashi) | 備前焼平川忠工房 | |
| 研究 協力者 | 赤井 夕希子 (Akai Yukiko) | 備前焼平川忠工房 | |

6. 研究組織（つづき）

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|-------|--------------------------------|-----------------------|----|
| 研究協力者 | テマ イブドキア (Tema Evdokia) | トリノ大学・Researcher | |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 | | | |
|---------|---------|--|--|--|
| イタリア | トリノ大学 | | | |