

令和元年6月27日現在

機関番号：14602

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26284121

研究課題名(和文) 古代東アジアにおける膠生産の研究

研究課題名(英文) Research on the animal glue production in ancient East Asia

研究代表者

宮路 淳子 (MIYAJI, ATSUKO)

奈良女子大学・人文科学系・教授

研究者番号：30403322

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、文化財に利用されている膠に含まれる繊維タンパク質(コラーゲン)に焦点をあて、それらのプロテオミクスを用いた正確な分析に基づき、古代から近世に至るまで重要な筆記用具であった墨の原料となり、また幅広い歴史年代に渡る考古遺物・文化財に使用されている膠および関連資料の分析と解析を進めた。膠はそれ自体が動物の加工品であるため、その物性や動物種を知ることによって、古代東アジアの製墨ならびに畜産などに関連する、各地域の生産技術・工芸史を探る手がかりを得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

申請者らは墨が膠のより高度な加工品であることに注目し、製墨技法が古代中国との技術・文化交流を反映していること、墨で書かれた文献史料は、文献本来の文字情報に加えて墨の製造場所や制作年代を特定できる可能性があることを明らかにした。皮革製品の分析にも応用できることも確かめた。文献史料とコラーゲンの分析によってある時代の膠の流通経路や地域的分布状況がわかれば、その時代の都市と地方の政治、経済、文化的交流の特質の解明が可能となることをつきとめた。

研究成果の概要(英文)：In this study, we focused on fiber proteins (collagen) contained in glue used in cultural properties, and based on their accurate analysis using proteomics, they were important writing instruments from ancient times to modern times. We proceeded the analysis and analysis of glue and related materials used as ink materials and used in archeological and cultural assets for a wide range of historical years. Since glue is itself a processed animal product, knowing its physical properties and animal species gave clues to explore the production technology and crafts history of each region related to inkmaking and animal husbandry in ancient East Asia.

研究分野：環境考古学

キーワード：動物考古学 プロテオミクス

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

膠は、先史・古代より人間の生活において、接着剤、固着剤、薬種などとしてさまざまな場面で使用されてきた。しかし膠生産の実態は、『延喜式』など文献史料にその内容が記されるようになる以前の時代については不明な部分が多かった。本研究では、膠が動物原料を使用することに着目し、文献史料、動物考古学的な知見および残存タンパク質の質量分析の方法を組み合わせることにより、膠生産の実態を明らかにしうる新たな膠研究を志した。

2. 研究の目的

本研究は、東アジア先史・古代社会における膠生産・利用をめぐる経済活動について、動物考古学、文献史学、タンパク質質量分析を含む科学分析という、多領域の分野で行う学際的研究を目指した。考古遺物・文化財に残存するタンパク質質量分析は、日本では申請者のグループが多くの現生動物種および文化財のコラーゲン・フィブロインのデータベースを構築し、予備研究を進め、遺跡出土資料の汚染などの分析上の問題点も克服することを目的とした。

3. 研究の方法

文献調査を行い、膠コラーゲンの製造に用いられた動物種は、ニベ、ウシ、スイギュウ、ブタ、ロバ、ウマ、ラクダ、ラバ、シカなど多岐に渡ることを明らかにした。そして、上記の動物の膠を独自に調製し、プロテオミクスにおけるアミノ酸配列解析の標準的手法となっているマトリックス支援レーザー脱離/イオン化タンデム飛行時間型 (MALDI-TOF/TOF) によって各動物のコラーゲンを見分けることが可能であることを示した。更に、市販の墨からコラーゲンを抽出し同様の実験を実施したところ、分析した墨はウシのコラーゲンを原料としていることが明らかになった。これらの実験・研究から、より極微量分析を可能とする方法へと発展を試みた。幅広い研究者が利用できるデータベースを構築し、Web上で公開するのみならず、学会発表やシンポジウムを積極的に行い研究成果の発信につとめ、当該研究の普及を図った。

4. 研究成果

本研究では、文化財に利用されている膠に含まれる繊維タンパク質 (コラーゲン) に焦点をあて、それらのプロテオミクスを用いた正確な分析に基づき、古代から近世に至るまで重要な筆記用具であった墨の原料となり、また幅広い歴史年代に渡る考古遺物・文化財に使用されている膠および関連資料の分析と解析を進めた。膠はそれ自体が動物の加工品であるため、まずその物性や動物種を知ることで、製墨ならびに畜産などに関連する、各地域の生産技術・工芸史を探る手がかりを得た。申請者らは墨が膠のより高度な加工品であることに注目し、製墨技法が古代中国との技術・文化交流を反映していること、墨で書かれた文献史料は、文献本来の文字情報に加えて墨の製造場所や制作年代を特定できる可能性があることを明らかにした。文献史料とコラーゲンの分析によってある時代の膠の流通経路や地域的分布状況がわかれば、その時代の都市と地方の政治、経済、文化的交流の特質の解明が可能となることをつきとめた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 20 件)

1. 河原一樹、アルプタン ダゴラ、中沢隆、宮路淳子(2018)「モンゴル国ハルゲント村出土馬鞍 (13-14 世紀) の研究」『日本文化財科学会第 35 回大会要旨集』査読有
2. Fujii S, Oki H, Kawahara K, Yamane D, Yamanaka M, Maruno T, Kobayashi Y, Masanari M, Wakai S, Nishihara H, Ohkubo T, Sambongi Y. (2017) Structural and functional insights into thermally stable cytochrome c' from a thermophile. *Protein Sci.* 26, 737-748. 査読有
3. Karino M., Kawahara K., Kadowaki S., Taniguchi Y., Tsuneki A., Moini M., and Nakazawa T. (2017) Characterization of degradation profile of collagen in archaeological specimens by mass spectrometry *Proceedings of the 65th ASMS Conference on Mass Spectrometry and Allied Topics*, TP562. 査読無
4. Kawahara K, Yonogi S, Munetomo R, Oki H, Yoshida T, Kumeda Y, Matsuda S, Kodama T, Ohkubo T, Iida T, Nakamura S. (2016) Crystal structure of the ADP-ribosylating component of

- BEC, the binary enterotoxin of *Clostridium perfringens*. *Biochem Biophys Res Commun.* 480, 261-267. 査読有
5. Masanari M, Fujii S, Kawahara K, Oki H, Tsujino H, Maruno T, Kobayashi Y, Ohkubo T, Wakai S, Sambongi Y. (2016) Comparative study on stabilization mechanism of monomeric cytochrome c(5) from deep-sea piezophilic *Shewanella violacea*. *Biosci Biotechnol Biochem.* 20, 1-6. 査読有
 6. Kawahara, K., Oki, H., Fukakusa, S., Yoshida, T., Imai, T., Maruno, T., Kobayashi, Y., Motooka, D., Iida, T., Ohkubo, T., and Nakamura, S. (2016) Homo-trimeric Structure of the Type IVb Minor Pilin CofB Suggests Mechanism of CFA/III Pilus Assembly in Human Enterotoxigenic *Escherichia coli*. *J Mol Biol.* 428, 1209-26. 査読有
 7. Takuwa A, Yoshida T, Maruno T, Kawahara K, Mochizuki M, Nishiuchi Y, Kobayashi Y, Ohkubo T. (2016) Ordered self-assembly of the collagenous domain of adiponectin with noncovalent interactions via glycosylated lysine residues. *FEBS Lett.* 590, 195-201. 査読有
 8. Nakazawa, T., Kawahara, K., Fukakusa, S., Karino, M., Takashima, M., and Taniguchi, Y. (2016) Mass spectrometry of collagen and casein in the remains of the 5th to 7th century Bamiyan Buddhas *Proceedings of the 64th ASMS Conference on Mass Spectrometry and Allied Topics*, MP554. 査読無
 9. 河原一樹(2016)「文化財中の古代タンパク質分析の現状」『現代文明の基層としての古代西アジア文明 Newsletter』9号 71-74 頁 . 査読無
 10. 宮路淳子(2016)「古代日本における膠利用に関する覚書」『古代東アジアにおける膠生産の研究』(平成 26 年度～平成 27 年度)科学研究費助成金(基盤研究(B))中間報告書, 宮路淳子編集』pp.28-36. 査読無
 11. 河原一樹, 丸野孝浩, (2016)「モンゴル高原における膠の科学分析による原料動物種の同定」『古代東アジアにおける膠生産の研究』(平成 26 年度～平成 27 年度)科学研究費助成金(基盤研究(B))中間報告書, 宮路淳子編集』pp.28-36. 査読無
 12. Uchiyama S*, Kawahara K*, Hosokawa Y, Fukakusa S, Oki H, Nakamura S, Kojima Y, Noda M, Takino R, Miyahara Y, Maruno T, Kobayashi Y, Ohkubo T, Fukui K. (2015) Structural Basis for Dimer Formation of Human Condensin Structural Maintenance of Chromosome Proteins and Its Implications for Single-stranded DNA Recognition. *J. Biol. Chem.* 290, 29461-77. *equally contributed. 査読有
 13. Qin S, Shimamoto S, Maruno T, Kobayashi Y, Kawahara K, Yoshida T, Ohkubo T. (2015) Thermodynamic and NMR analyses of NADPH binding to lipocalin-type prostaglandin D synthase. *Biochem Biophys Res Commun.* 468, 234-9. 査読有
 14. Kawahara K, Oki H, Fukakusa S, Maruno T, Kobayashi Y, Motooka D, Taniguchi T, Honda T, Iida T, Nakamura S, Ohkubo T. (2015) Cloning, expression, purification, crystallization and X-ray crystallographic analysis of CofB, the minor pilin subunit of CFA/III from human enterotoxigenic *Escherichia coli*. *Acta Crystallogr. F Struct. Biol. Commun.* 71, 663-7. 査読有
 15. Harada, S., Hiromori, Y., Nakamura, S., Kawahara, K., Fukakusa, S., Maruno, T., Noda, M., Uchiyama, S., Fukui, K., Nishikawa, J., Nagase, H., Kobayashi, Y., Yoshida, T., Ohkubo, T., and Nakanishi, T. (2015) Structural basis for PPAR γ transactivation by endocrine-disrupting organotin compounds *Sci. Rep.* 5, 8520. 査読有
 16. Fukakusa, S., Kawahara, K., Moini, M., and Nakazawa, T. (2015) Mass spectrometry of

collagen preserved in archaeological specimens including human bones *Proceedings of the 63rd ASMS Conference on Mass Spectrometry and Allied Topics*, 1285. 査読無

17. 深草俊輔、河原一樹、高嶋美穂、谷口陽子、宮路淳子、松尾良樹、中沢隆 (2015 年) 「高分解能 MALDI 質量分析計を用いた膠の原料動物種の同定」『文化財保存修復学会第 37 回大会要旨集』、pp. 216-217. 査読無
18. 河原一樹 (2015 年) 「プロテオミクス技術による古代タンパク質分析」『現代文明の基層としての古代西アジア文明 Newsletter』6 号 1-2 頁 . 査読無
19. 深草俊輔、河原一樹、今井友也、丸山真史、浜中邦弘、中澤隆、宮路淳子 (2015 年) 「相国寺旧境内より出土した櫛の質量分析による材質の特定」『日本文化財科学会第 32 回大会要旨集』、pp.176-177. 査読無
20. 深草俊輔、河原一樹、今井友也、丸山真史、中澤隆、宮路淳子 (2015 年) 「相国寺旧境内内出土櫛の質量分析による材質の特定」『同志社大学歴史資料館調査研究報告第 13 集』、pp.163-169. 査読無

〔学会発表〕(計 5 件)

1. 河原一樹、アルプタン ダゴラ、中沢隆、宮路淳子(2018) 「モンゴル国ハルゲント村出土馬鞍 (13-14 世紀) の研究」『日本文化財科学会第 35 回大会』 査読有
2. Hayashi, N., Kuyama, H., Nakajima, C., Kawahara, K., Miyagi, M., Nishimura, O., Matsuo, H., and Nakazawa, T. (2014) Imidazole C-2 Hydrogen/Deuterium Exchange Reaction at Histidine for Probing Protein Structure and Function with Matrix-Assisted Laser Desorption Ionization Mass Spectrometry *Biochemistry* 53, 1818-1826. 査読有
3. Mazurek J, Svoboda M, Maish J, Kawahara K, Fukakusa S, Nakazawa T, and Taniguchi Y. (2014) Characterization of binding media in Egyptian Romano portraits using enzyme-linked immunosorbant assay and mass spectrometry *e-Preserv. Sci.* 11, 76-83. 査読有
4. Fukakusa, S., Kawahara, K., Shoeib, A. S., Akarish, A., Kawasaki, H., Suita, H., Arakawa, R., and Nakazawa, T. (2014) “Characterization by nano-LC/ESI-MS/MS of highly degraded collagen detected in 4,400-year-old Egyptian wall paintings of the Idout Tomb” *Proceedings of the 62nd ASMS Conference on Mass Spectrometry and Allied Topics*. 453. 査読無
5. 深草俊輔、河原一樹、Joy Mazurek、Marie Svoboda、 Jeffrey Maish、谷口 陽子、中沢隆 (2014 年) 「ローマ期エジプトの三連祭壇画に使われた膠着材原料の ELIZA 法及び質量分析法による同定」『文化財保存修復学会第 36 回大会要旨集』、pp. 54-55. 査読無
6. 深草俊輔、河原一樹、アフメド シュエイブ、アーデル アカリシュ、吹田 浩、荒川 隆一、中沢 隆 (2014 年) 「マスタバ・イドウトの壁画中に存在する経年劣化した動物膠の分析」『文化財科学会第 31 回大会要旨集』 pp128-129. 査読無

〔図書〕(計 1 件)

1. 宮路淳子編 (2016 年) 『古代東アジアにおける膠生産の研究 中間報告書』

〔産業財産権〕
出願状況（計 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

取得状況（計 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：中沢 隆
ローマ字氏名：NAKAZAWA TAKASHI
所属研究機関名：奈良女子大学
部局名：自然科学系
職名：教授
研究者番号（8桁）：30175492

研究分担者氏名：河原 一樹
ローマ字氏名：KAWAHARA KAZUKI
所属研究機関名：大阪大学
部局名：薬学研究科
職名：助教
研究者番号（8桁）：60585058

研究分担者氏名：館野 和巳
ローマ字氏名：TATENO KAZUMI
所属研究機関名：奈良女子大学
部局名：古代学・聖地学研究センター
職名：特任教授
研究者番号（8桁）：70171725

研究分担者氏名：丸野 孝浩
ローマ字氏名：MARUNO TAKAHIRO
所属研究機関名：大阪大学
部局名：工学研究科
職名：特任研究員

研究者番号(8桁): 60648351

研究分担者氏名: 深草 俊輔

ローマ字氏名: FUKAKUSA SHUNSUKE

所属研究機関名: 奈良女子大学

部局名: 古代学学術研究センター

職名: 特任助教

研究者番号(8桁): 50723582

(2)研究協力者

研究協力者氏名:

ローマ字氏名:

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。