

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 9 月 26 日現在

機関番号：12102

研究種目：新学術領域研究（研究領域提案型）

研究期間：2012～2016

課題番号：24101013

研究課題名（和文）西アジア古代遺跡の石器・土器の組成・微細組織データベース

研究課題名（英文）Database concerning mineralogy and petrography of the early Late Neolithic potteries from central Iran and northwest Syria

研究代表者

黒澤 正紀（KUROSAWA, Masanori）

筑波大学・生命環境系・准教授

研究者番号：50272141

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 19,500,000円

研究成果の概要（和文）：古代西アジアの土器新石器時代の遺跡から出土した土器を中心に、その断面および表面をX線検出器付きの走査型電子顕微鏡（SEM-EDS）で観察・分析し、これまで不足していた、遺物試料の物質科学的特徴の鉱物学的記載のための手法開発、およびその手法によるイランとシリアの紀元前6000年紀の土器の構成鉱物とその微細組織の解明を行った。一部試料については、正確な物質同定や原産地推定を行うため、粉末X線回折（XRD）や全岩蛍光X線分析（XRF）による分析も行った。それらの結果から、古代西アジアの土器の特徴や製作技術の水準の一端について明らかにすることができた。

研究成果の概要（英文）：Prehistoric potteries are important as an information source of ancient culture and state of the art because they are made by many artificial processes such as preparation of clay raw materials, shaping, decorating, and firing. Potteries from western Asia at the 6th to 7th millennium BC are important to understand the development of pyrotechnology in the area because this period corresponds to the earliest stage of pottery production and craft skills using fireworks. In this project, we surveyed chemical and mineralogical compositions, micro-textures, and firing temperatures of early Late Neolithic pottery sherds from Tappeh Sang-e Chakhmaq, central Iran, and Tell el-Kerkh 2, northwest Syria in 6th millennium BC to investigate the state of pyrotechnologies at the first appearance time of potteries in ancient western Asia.

研究分野：鉱物学

キーワード：西アジア 古代文明 土器 化学分析

### 1. 研究開始当初の背景

西アジアの古代文明から産出する多彩な遺物は、文化の伝播や高度な社会組織や物質流通を解明する重要な手がかりとなっている。トルコ石・ラピスラズリなど原産地が限られる貴重品は、物質伝播や富の形成を示す有力情報であり、それらを模倣したガラスや代替品の組成は当時の技術レベルを示す。鉄器に含まれるニッケルなどの不純物は原材料と生成過程の指標であり、土器内部に存在する微細な焼成鉱物（ムライト・スピネルなど）からは焼成温度、土器生地に含まれる気泡の形状やサイズ・砂粒子の種類からは形成技法の情報が得られる。フリント製石器の表面条痕には形成技法のヒントがある。このように、遺物の構成鉱物とその化学組成や微細組織には、当時の交易や富の形成・技術水準といった考古学的情報が豊富に残されている。これらの情報の解読や評価には、鉱物学・材料科学の視点が必要である。また、風化や変質の進んだ試料も多いため、肉眼観察だけでは正確な検討が困難なことも多い。そのため、西アジアの多くの遺物の系統的な物質科学的検討と整理は十分に進んでいるとは言えず、物質科学研究者の協力が不可欠な状況となっている。特に、鉱物学が得意とする、試料切片や微細部分における電子顕微鏡観察、化学分析・X線回折に基づく正確な物質同定、風化物から原材料を非破壊で正確に推定する手法の開発、表面に残された微細組織の評価法の開発は、重要な課題となっている。西アジア各地の遺跡から収集された貴重な遺物から有用な考古学的情報を得るためにも、それらの観察・分析法の開発と実施は必須の課題となっている。

### 2. 研究の目的

古代西アジアの土器新石器時代の各遺跡から出土した石器・土器について、その断面および表面をX線検出器付きの走査型電子顕微鏡 (SEM-EDS) で観察・分析し、これまで不足していた、遺物試料のキャラクタリゼーション（重要特徴の物質科学的記載）のための手法開発、その手法による石器・土器の構成鉱物とその微細組織の解明を行う。そうした組成・微細組織情報から原産地推定・材料伝播・形成技法に関する有効な情報を抽出する。また、一部試料については、正確な物質同定や原産地推定を行うため、粉末X線回折 (XRD) や全岩蛍光X線分析 (XRF) による分析も行う。最終的に、それらの結果をまとめ、西アジアの文明黎明期における物質の伝播過程や流通経路につながる基本情報を提供する。

### 3. 研究の方法

#### (1) 考古学的に有用な組成・組織情報の分析・測定法の手法開発

これまで収集されたシリア・イランの土器試料のうち、切断が可能なものについて薄片

試料を作成し、光学顕微鏡観察を通じて正確な岩石名・鉱物名の決定を行うことを試みた。また、SEM-EDSによる微小部分の化学組成と組織観察も実施し、分析・観察手法の最適化を行った。土器の場合、原産地推定・形成技法・焼成温度に関わる情報が考古学的に重要となる。そこで、ここでは、原産地推定に重要な土器の胎土に含まれる鉱物の種類の決定法、形成技法に関連する胎土組織の観察法、原産地推定に重要な胎土の粘土部分の主成分化学組成の分析法、鉱物種と組織に基づく焼成温度推定法を主に検討した。

#### (2) イラン・シリアの土器の胎土分析

古代西アジア地域での初現期の土器の製作技法とパイロテクノロジーの技術水準を検討するため、紀元前7000年～5000年頃のイランとシリアの遺跡から発掘された土器の薄片試料に対して、土器の胎土の組織と胎土に含まれる鉱物粒子のキャラクタリゼーションを行った。パイロテクノロジーとは火を使って加工する技術のことで、土器製作や食料調理は勿論こと、製錬・冶金技・工芸品作成などに関連する文明を推進する技術である。

紀元前6000～7000年紀は西アジアで農耕・定住・土器生産が始まる時期であり、西アジアで発生した文明とその技術水準を検討する上で重要な時期となっている。西アジアでは、紀元前7000年紀前半からシリア北部からトルコ南東部などの複数地域で土器の制作が開始され、それに続く紀元前6000年紀ではユーフラテス川の西を境界として、西側（シリア北部からトルコ南東部）と東側（メソポタミア北部）で異なる特徴の土器が作られていたとされる。西側では、色調が暗色で表面を磨研し、胎土に鉱物粒を多く含む土器（暗色磨研土器）が、東側では、明るい茶褐色で胎土に植物茎（スサ）を多く含む土器（スサ混入明色系土器）が主体となっていた。今回は、スサ混入明色系土器の例としてイラン高原のタペ・サンギ・チャハマック遺跡の土器を、暗色磨研土器の例としてシリア北西部のテル・エル・ケルク2号丘遺跡の土器を検討することにした。

### 4. 研究成果

#### (1) 考古学的に有用な組成・組織情報の分析・測定法の手法開発

最初に土器・岩石試料の薄片作成について検討を行った。土器試料は、細かい柱状の粘土鉱物が鉱物粒子の隙間に複雑に入り組んだ組織を示し、通常の厚さ(30ミクロン)の薄片試料では粒子が重なって光学顕微鏡では組織や構成鉱物の判別が十分できないことが分かった。そこで、片側が薄くなるように厚さを変化させることで光学顕微鏡による観察が可能になった。但し、SEM-EDSによる微小部分組成の分析では、正確な定量分析値を得るために、厚さ30ミクロン以上の部

分を使うことが重要である。このように作成した薄片試料で、土器の胎土組織や鉍物粒子の観察や分析が十分可能なことが分かった。

1つの遺跡から出土する年代の異なる土器の製作技法の熟練度を検討する場合、土器の厚みや酸化状態の不十分さによる黒芯の有無などが指標として知られている。今回、その他に、胎土中の細柱状の粘土鉍物の定向配列や鉍物粒子の配向性も重要であることが分かった。出土年代が新しくなるにつれて、粘土鉍物や鉍物粒子の配向性が高まり、土器の胎土組織全体が隙間の少ない緻密な組織へと変化することが分かった。

胎土の粘土部分の主成分組成は、粘土材料の産地推定に重要であるが、土器を粉碎してバルクの組成分析を行うと、人為的に混入した鉍物粒子の影響を避けられないという課題があった。そこで、今回は、胎土中の鉍物粒子を含まない部分に50ミクロン角のブロードな電子線照射を行うことで、粘土部分だけの主成分化学組成を分析することを試みた。その分析値は、人為的混入の鉍物粒子が少ない土器の場合、XRFによるバルクの土器組成の分析値とほぼ一致した。そのため、ブロードな電子線照射による分析でもほぼ正確に粘土部分の主成分組成が分析できることが分かった。

金属器使用のない時代のパイロテクノロジーの技術水準の検討には、土器の焼成温度の推定が重要となる。焼成温度の推定は、通常、土器の焼成で新たにできる鉍物(焼成鉍物)の生成温度、あるいは胎土中に存在していた鉍物の分解・溶融の温度を利用して行われてきた。但し、生成反応の場合は、最高到達温度で長時間保持しないと反応が進まないことが多い。そのため、高温保持時間が短いと反応進行が充分でないために焼成鉍物が形成されず、その最高温度に到達していなかったと過少に判断されることになる。西アジアの紀元前6000~7000年紀の土器は、この地域での初現期の土器に相当し、高温保持時間は短かったと推定されるので、生成反応による焼成温度推定は適切でない可能性がある。そこで、今回は、短時間(1~2時間程度)の高温条件でも比較的生じやすい、一部の鉍物の部分的な分解反応・溶融反応に着目して、焼成温度の推定する手法の開発を試みた。短時間の高温条件では、分解・溶融の反応は、鉍物中の微小な割れ目や鉍物の縁にミクロンスケールで少量生じるだけなので、この手法では、土器中の鉍物に残る微細な痕跡を丹念に観察することが必要となる。また、鉍物の部分分解反応・部分溶融反応では、生成物の化学組成が元の鉍物と全く異なることが多いので、その検出には微小部の化学組成を分析できる手法が有用である。今回は、SEM-EDSを使って、土器中の残留鉍物に残された微細な部分分解反応・部分溶融反応組織の検出に成功し、本来の焼成温度を推定できることが分かった。

## (2) タペ・サンギ・チャハマック遺跡とテル・エル・ケルク2号丘遺跡

イランのタペ・サンギ・チャハマック遺跡は、カスピ海に程近いイラン高原北東部に位置し、東墳丘と西墳丘の2つからなる遺跡である。東丘遺跡には14C年代でBC5200~6300年頃の6層からなる遺構が、西丘遺跡にはそれより古いBC6600~7200年頃の5層の遺構が確認されている。今回は東遺跡各層の土器を中心に検討を行った。東丘遺跡の各層からは、表面に彩色や文様が描かれたスサ混入明色系土器が豊富に出土している。東丘遺跡深部のVI層~III層から出土する土器は、厚みが約1cmで、表面に磨研と薄黄褐色の化粧土が施されて茶褐色顔料で文様が描かれ、内部が薄赤褐色で明瞭な黒芯を伴い、胎土に多量の植物茎を含むスサ混入明色系土器である。これに対し、表層のI層とII層からの土器は、厚みが約5mmと薄く、表面の磨研と化粧土が施されているが、黒色顔料で文様が描かれ、内部も薄赤褐色ではあるが黒芯が稀で、胎土組織も緻密な組織のスサ混入明色系土器となっている。土器の型式や文様などから、VI層~III層の土器はトルクメニスタン南部の文化の影響を、I層~II層の土器はイラン高原中央部の文化の影響を強く受けていたとされる。

シリアのテル・エル・ケルク2号丘遺跡は、トルコ国境に程近いシリア北西部のエル・ルージュ盆地南部にあり、テル・アイン・エル・ケルク遺跡と隣接したBC5800~6600年頃の遺跡である。12層の遺構が確認され、I層~VI層から暗色磨研土器が多量に出土している。各層からの土器は、いずれも厚みが約5mmのものが多く、表面に磨研が施され、内部が黒褐色~茶褐色で黒芯が無く、胎土に多量の鉍物粒を含む。

今回は、両遺跡の各層から2~3個の土器を選び、切断・研磨することで厚さ10~50ミクロンの岩石薄片を作成し、偏光顕微鏡とX線検出器付き走査型電子顕微鏡(SEM-EDS)により観察することで、構成鉍物の種類の決定と胎土組織の観察を行った。また、土器を粉碎した粉末を粉末X線回折(XRD)で測定して、土器の土質部分(胎土)に含まれる微細な高温形成鉍物の有無も検討した。

## (3) タペ・サンギ・チャハマック遺跡の土器の胎土組織と焼成温度

タペ・サンギ・チャハマック遺跡の東丘遺跡の各層の土器の構成鉍物を偏光顕微鏡と走査型電子顕微鏡で観察した結果、植物の茎の痕、多量の石英、やや多いアルカリ長石・斜長石・雲母・赤鉄鉱、少量の普通輝石・頑火輝石、微量の重鉍物を含んでいた。稀に方解石・ドロマイトが観察され、XRD測定でも同様な結果が得られた。表層のI層とII層の土器にはやや頑火輝石の量が目立つが、その他の構成鉍物の量比の層位による変化は

認められない。上層からの年代の新しい土器ほど、鉍物粒子の長軸の配列が揃っており、特に I 層と II 層からの土器では、胎土の粘土鉍物の伸長方向と鉍物粒子の長軸が揃った状況から、粘土の素地を捏ねる作業の熟練度の向上が示唆された。

また、胎土には上述の鉍物粒子以外に、土器の焼成によって形成された焼成鉍物と高温により溶融・分解した鉍物も観察された。非常に明瞭に観察された焼成鉍物はアルカリ長石で、長さ数〜数十ミクロンの透明柱状結晶で、全ての土器の粘土の基質部分に含まれていた。この鉍物はイライト質の粘土が高温で溶融することによってしばしば形成される。XRD 測定では、1100 以上で長時間焼成した際に現れるムライトやその他の高温形成鉍物はいずれの土器からも検出されなかった。短時間の高温条件でも、極めて微小なムライトや Al に富むスピネルが形成される可能性はあるので、今後の探索が望まれる。

高温により溶融・分解した組織は、上述の鉍物粒子中の一部のアルカリ長石、斜長石、方解石、普通輝石に認められた。全ての土器に観察されたのは、アルカリ長石の部分溶融組織であり、次いで多く認められたが斜長石の部分溶融組織であった。アルカリ長石では、融け残りのアルカリ長石残晶の周囲をメルト（ガラス）が取り巻く組織が多く観察された。メルト中には冷却過程で晶出した柱状の微細結晶もしばしば存在した。溶融が鉍物全体ではなく、部分的であるということは、高温での保持時間が短かったことを示している。また、方解石の多くは分解して細粒となり、一部に  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  と考えられる高 Ca 濃度の微粒子を含んでいた。焼成鉍物としてのアルカリ長石の形成温度は 900~1000、アルカリ長石の部分溶融温度が約 980、方解石の分解温度が 850~900、輝石の部分溶融温度が 950~1050 であるので、各層からの土器は 900~1000 の温度で焼成されたと推定できる。重要な点は、この焼成温度が最下層の IV 層の土器でも実現されていることで、タペ・サンギ・チャハマック遺跡では、その初期から 900~1000 の高温で土器が焼成されたことが示された。

#### (4) テル・エル・ケルク 2 号丘遺跡の土器の胎土組織と焼成温度

テル・エル・ケルク 2 号丘遺跡の各層の土器の構成鉍物を偏光顕微鏡と電子顕微鏡で観察した結果、多量の石英・斜長石・普通輝石・角閃石（透閃石）、少量のアルカリ長石や微量の重鉍物が確認された。XRD 測定でも同様な結果が得られている。層位による構成鉍物の量比の大きな変化は認められなかった。黒色の普通輝石・角閃石が多量に含まれている様子は肉眼でも確認でき、この遺跡の土器の特徴となっている。また、岩片として斑レイ岩の破片がしばしば含まれており、遺跡周囲の地質体の状況と調和的である。さら

なる特徴として II 層・V 層・VI 層からは、普通輝石・角閃石を多量に含む暗色磨研土器と共に、普通輝石・角閃石は微量で石英・大理石（方解石の多結晶集合体）の岩片を多量に含む暗色磨研土器が出土していた。胎土中の大理石は鋭角の破片状で、その含有量が体積比で 30% 以上のものも認められることから、原料粘土の自然な堆積環境で混入したというより、人為的に混入された可能性が示唆された。多量の混入岩片を含む粘土原料から薄手の土器の存在は、土器製作の技法の高さを示すものと考えられる。

新たに形成された焼成鉍物と判断できるものも多く観察されるが、周囲の粘土鉍物やガラス状の物質との反応によって組成が複雑なため、解析を進めているところである。XRD 測定では、1100 以上で現れるムライトやその他高温形成鉍物はいずれの土器からも検出されなかった。

高温により溶融・分解した組織として、一部の土器に方解石の熱分解組織や角閃石の熱変質組織、およびアルカリ長石・普通輝石の溶融・分解した組織が認められた。方解石の熱分解組織では、大部分は再び炭酸ガスと反応して方解石の組成に戻っている状況が認められた。一部に  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  と考えられる高 Ca 濃度の微粒子を含んでいた。角閃石の熱変質では、元の組成から K, Na, Al, Ca などが失われていく組成変化が観察された。これらの反応温度を考慮すると、800~1000 の高温が短時間続くような条件で土器が焼成されたことが推定された。

タペ・サンギ・チャハマック遺跡の東丘遺跡の土器の結果と併せると、西アジアでは、初現期の土器から 800~1000 の高温で焼成されており、紀元前 6000 年紀から高いパイロテクノロジーの水準を有していたことが示された。

#### < 引用文献 >

禿仁志, “土器”, タペ・サンギチャハマック-イラン先史遺跡調査総括概報- pp. 15-20, 1977, イラン先史遺跡調査団  
三宅裕, “土器の誕生”, 江上波夫監・常木晃・松本健編-文明の原点を探る-新石器時代の西アジア, pp. 97-115, 1995, 同成社

Deer W. A. et al.: Rock-forming minerals, vol. 2A, Single Chain Silicates, 2nd ed., p.668, 1978, Longman, London.

Bersani, D. et al. (2010): J. Raman Spectrosc., 41, 1556-1561.

Johannes, W. and Holtz, F. Petrogenesis and Experimental Petrology of Granitic Rocks, p. 335. 1966, Springer, Berlin.

Rice, P. (1987) Pottery analysis. Chicago, The University of Chicago Press.

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者に

は下線)

〔雑誌論文〕(計 9 件)

黒澤正紀, 鉱物の微細組織・化学組成に基づいた土器の焼成温度推定, 現代文明の基層としての古代西アジア文明ニュースレター, 査読無, 9, 2017, 55-60

黒澤正紀, イランとシリアにおける初現期の土器, シンポジウム予稿集「西アジア文明学の創出 2: 古代西アジア文明が現代に伝えること」, 査読無, 2017, 33-38

Saito, T., Shibuya, T., Komiya, T., Kitajima, K., Yamamoto, S., Nishizawa, M., Ueno, Y., Kurosawa, M., and Maruyama, S., PIXE and microthermometric analyses of fluid inclusions in hydrothermal quartz from the 2.2 Ga Ongeluk Formation, South Africa: implications for ancient seawater salinity, Precambrian Research, 査読有, 286, 2016, 337-351

Kurosawa, M., Sasa, K., Shin, K., and Ishii, S., Trace-element compositions and Br/Cl ratios of fluid inclusions in the Tsushima granite, Japan: Significance for formation of granite-derived fluids, Geochimica Cosmochimica Acta, 査読有, 182, 2016, 216-230

Kurosawa, M., Miyato, D., Sasa, K., and Ishii, S., Micro-PIXE analyses of melt inclusions in olivine crystals from Allende meteorite, Annual Report of Tandem Accelerator Center, University of Tsukuba, 査読無, 85, 2016, 22-24

Kurosawa, M., Sasa, K., and Ishii, S., Micro-PIXE analyses of single fluid inclusions in quartz from Tanzawa granite, Japan, Annual Report, Tandem Accelerator Center, University of Tsukuba, 査読無, 84, 2015, 34-37

Kurosawa, M., Mineralogical study of pottery from Tappeh Sange-e Chakhmaq, in A. Tsuneki (ed.), The First Village in Northeast Iran and Turan: Tappeh Sange-e Chakhmaq and Beyond, Tsukuba: Research Center for West Asian Civilization, 査読無, 2014, 19-22

Kurosawa, M., Sasa, K., and Ishii, S., Comparison of calibration curves for a new and old Si (Li) detectors with different energy resolution. Annual Report, Tandem Accelerator Center, University of Tsukuba, 査読無, 82, 2013, 35-37

Kurosawa, M., Ishii, S., and Sasa, K., PIXE analyses of trace Ti in single fluid inclusions in quartz from Tsushima granite. Annual Report, Tandem Accelerator Center, University of Tsukuba, 査読無, 80, 2012, 47-48

〔学会発表〕(計 13 件)

黒澤正紀「イランとシリアにおける初現期の土器」シンポジウム「西アジア文明学の創出 2: 古代西アジア文明が現代に伝えること」2017年3月4日 サンシャインシティ文化会館(東京都・豊島区)

黒澤正紀・笹公和・石井聰「対馬花崗岩の流体包有物中のチタン濃度」日本鉱物科学会 2016 年年会 2016 年 9 月 23 日 金沢大学(石川県・金沢市)

黒澤正紀・三澤 真弓「顕微ラマン分光法による多相包有物中の固相の分析」日本鉱物科学会 2015 年年会 2015 年 9 月 26 日 東京大学(東京都・文京区)

藤本恭輔・三宅亮・土山明・中野司・上杉健太郎・吉田健太・松野淳也・黒澤正紀「対馬花崗岩の多相流体包有物中の固相の分析」日本地球惑星科学連合大会 2015 年 5 月 22 日 幕張メッセ(千葉県・千葉市)

黒澤正紀「対馬花崗岩の多相流体包有物中の固相の分析」日本鉱物科学会 2014 年年会 2014 年 9 月 17 日 熊本大学(熊本県・熊本市)

黒澤正紀「PIXE による花崗岩と隕石母天体の流体包有物の分析」UTTAC セミナー 2014 年 3 月 19 日 筑波大学(茨城県・つくば市)

Kurosawa, M. "Mineralogical study of pottery from Tappeh Sange-e Chakhmaq", Symposium on the First Village in Northeast Iran and Turan: Tappeh Sange-e Chakhmaq and Beyond, Tsukuba, 2014 年 2 月 10 日 筑波大学(茨城県・つくば市)

黒澤正紀・常木晃「イラン新石器時代タペ・サンギチャハマック遺跡の土器の焼成組織と構成鉱物」日本地球化学会 2013 年年会 2013 年 9 月 13 日 筑波大学(茨城県・つくば市)

安間了・谷口陽子・丸岡照幸・黒澤正紀「考古学へのジルコノロジー応用の可能性」日本地球化学会 2013 年年会 2013 年 9 月 13 日 筑波大学(茨城県・つくば市)

黒澤正紀・笹公和・石井聰「丹沢花崗岩体の流体包有物の微量元素組成」日本鉱物科学会 2013 年年会 2013 年 9 月 12 日 筑波大学(茨城県・つくば市)

黒澤正紀・笹公和・石井聰「PIXE による単一流体包有物の微量元素分析」日本地球惑星科学連合大会 2013 年 5 月 22 日 幕張メッセ(千葉県・千葉市)

黒澤正紀・笹公和・石井聰「流体包有物分析からみた対馬花崗岩の熱水体系」日本鉱物科学会 2012 年年会 2012 年 9 月 19 日 京都大学(京都府・京都市)

黒澤正紀「PIXE による地球科学試料の分析」UTTAC セミナー 2012 年 4 月 2 日 筑波大学(茨城県・つくば市)

〔図書〕(計 2 件)

黒澤正紀, 悠書館, 化学の目で読み解く土器・石器. 西アジア文明学への招待,

2014,140-154

黒澤正紀, 朝倉書店, 岩石の顕微鏡観察,  
SEM 観察. 地球環境学マニュアル 第2巻  
(総合地球環境学研究所編), 2012,54-55

6. 研究組織

(1)研究代表者

黒澤 正紀 (Kurosawa, Masanori)  
筑波大学・生命環境系・准教授  
研究者番号: 5 0 2 7 2 1 4 1

(2)研究協力者

笹 公和 (Sasa, Kimikazu)  
筑波大学・数理物質系・准教授  
研究者番号: 2 0 3 1 2 7 9 6