

目次

論文

西アジア都市形成期の土器焼成技術

—分析方法の提案と焼成温度・彩文顔料の考察—

小泉 龍人 1

エジプト中王国時代のミニチュア土器使用に見られる「単位」について

矢澤 健 23

研究ノート

骨角器インダストリーに見る新石器化の一側面

—技術選択と原材料からの検討—

新井 才二 47

資料紹介

初期イスラーム時代のファイユーム陶器

—ベナキ博物館所蔵資料から—

長谷川 奏 57

動向

アルメニアの文化遺産分野における日本の国際協力

有村 誠・藤井 純夫 61

紀元前5千年紀イランをテーマとした国際ワークショップ

三木 健裕 69

イラン、テヘラン大学で開催された「若手考古学者国際会議」に参加して

安倍 雅史・三木 健裕 75

米国オリエント学会 2013 年大会

近藤 康久 79

報告

日本西アジア考古学会 2012 年度ワークショップ A「西アジア青銅器時代の葬制」報告

久米 正吾 83

西アジア考古学関連学術論文・出版物

87

西アジア発掘調査報告会報告一覧・調査彙報

93

投稿規定・執筆要項

95

編集後記

西アジア都市形成期の土器焼成技術

—分析方法の提案と焼成温度・彩文顔料の考察—

小泉 龍人

Pyrotechnology of Pottery Manufacturing in the Ubaid to Uruk Periods:
Analytic Methods, Estimated Firing Temperatures and Pigment Composition

Tatsundo KOIZUMI

本論考では、西アジア都市形成期における土器焼成技術の進展に関する、理化学的分析の方法論とその成果を論述する。まず、トルコ、ティグリス川流域の銅石器時代遺跡で発掘した日干しレンガや土器などの試料を用いて、土器焼成技術を推考する独自の方法について論じる。つぎに、XRF（蛍光 X 線分析）・XRD（X 線回折）・EPMA（電子線マイクロ分析）などにより、日干しレンガと土器の元素・化学組成の分析成果について述べる。さらに、窯壁クリンカーと赤色顔料塊（粉末）の分析成果もあわせて検討しながら、西アジア都市形成期の土器製作技術における推定焼成温度と彩文顔料成分について議論していく。結論として、前 5～4 千年紀の西アジア都市形成期（ウバイド期～ウルク期併行）における土器は、多様な温度帯で焼成されていたことを確認できた。後期銅石器時代初頭の粗製無文土器はかなりの低温（約 450℃以上）で焼かれていたのに対して、ウバイド後期の彩文土器は高温（約 900℃以上）で焼成され、ハラフ・ウバイド過渡期の彩文土器は比較的低い温度帯（約 800～900℃）で焼かれていたことが推定された。また、都市形成期の赤色顔料について、精製粘土に石灰石と酸化鉄を配合して煨焼したものを準備していたという入念な作業工程を想定するに至った。さらに、後期銅石器時代初頭の灰色磨研土器は比較的低い温度帯（約 800～900℃）の還元状態で焼かれており、同時期の土器焼成窯自体もウバイド期に比べて相対的に低い温度に曝されていたことを明らかにできた。

キーワード：日干しレンガ、LOI 値、彩文土器、推定焼成温度、顔料成分

This study presents methods and results of pyrotechnological analyses of pottery manufacturing during West Asian urbanization in the Ubaid to Uruk periods. I review the analytical methods for studying the pyrotechnologies of pottery manufacturing by using mud bricks and sherds from Salat Tepe in the Upper Tigris, southeastern Turkey. Then I discuss the results from the XRF, XRD and EPMA analyses of the mud brick and sherd samples, and those of clinkers and red pigments as well. The results indicate that firing temperatures for pottery may be grouped: coarse plain pottery of the Late Chalcolithic period was fired at more than ca. 450 °C; painted pottery of the Ubaid period at more than 900 °C; Halaf-Ubaid-Transitional painted pottery and Gray Burnished Ware in the early stage of the Late Chalcolithic period, the Early Uruk-related period, were fired higher than the coarse plain pottery and relatively lower than the Ubaid painted pottery at around 800 to 900 °C. In addition careful preparation of pigments during the manufacturing process might indicate tentative firing, ca. 500 to 800 °C, of a lump of levigated clay mixed with limestone and hematite before painting. It has been assumed that both the temperatures of reduction firing for Gray Burnished Ware and of the keyhole-shaped pottery kiln in the Late Chalcolithic period could be lower than that of the painted pottery and related firing equipment in the Ubaid period.

Key-words: mud bricks, LOI (loss on ignition), painted pottery, estimated firing temperatures, pigment composition

はじめに

西アジアの都市形成期(銅石器時代後半)において、ウバイド期の彩文土器は相当の高温で酸化焰焼成されて、硬質な仕上りとなり、彩文は薄膜状に定着している。同時に、ウバイド期の土器工房址では、昇焰式土器焼成窯が頻出しており、高温で焼き過ぎてしまった土器片の出土例も目立つ。ウバイド期の土器焼成技術は、彩文定着という優れた面だけでなく、不安定な操窯という未熟さも内包している。

やがて、本格的な都市化の段階のウルク期(前4千年紀)になると、安定した操窯による高度な焼成技術へと洗練されていき、還元焰焼成により灰色磨研土器が製作されるに至る。ウバイド期の彩文土器からウルク期の灰色磨研土器へとつながる土器焼成技術の解明は、古代西アジアの都市化を探る上で重要な手がかりとなる。

西アジアの都市形成期における土器製作技術については、工房(井1995)、窯構造(Delcroix and Huot 1972; Streily 2000)、製作技術(Simpson 1997a, 1997b; 小泉2000, 2006)、土器生産全般(Moorey 1994; 常木2004, 2005)などの多彩な研究が展開されてきた。

他方、土器試料の理化学的な分析による研究は、おもにSEM(電子走査顕微鏡)を用いた結晶構造の観察により素地の焼成温度が推定されたり、EDX(エネルギー分散型X線分析)を併用して彩文顔料の成分分析などが行われてきた(Tite and Maniatis 1975; Kamilli and Steinberg 1985; Kayani 1997)。しかし、焼成温度については、大まかな温度が推定されるに留まり(Maniatis and Tite 1981; Simpson 1997b ほか)、顔料の分析結果についても、部分的な検証がなされるに過ぎなかった(Noll et al. 1975; Oates et al. 1977; Courtois and Velde 1983; Simpson 1997a ほか)。

そこで、筆者は土器製作技術の推移から都市化を探るために、昇焰式土器焼成窯を復原構築して、ウバイド期の彩文土器などの焼成技術を実験考古学的に研究してきた¹⁾(小泉2009, 2010, 2013; 小泉・齋藤2009, 2012)。

実験考古学の研究成果として、焼成室(土器を置く上室)の温度を800℃台で1時間以上維持する酸化焰焼成により、黒色顔料の二酸化マンガン(MnO₂)が定着することを検証した。ウバイド土器に限らず、彩文土器の顔料を定着させるには、昇焰式土器焼成窯の焼成室の温度を約800℃前後で1時間は維持する必要があると推測された。また、焼成室の温度を900℃以上で1時間前後維持する酸化焰焼成により、土器の焼上りはかなり硬質となり、ウバイド土器の仕上りに近い状態を示すことも確認できた。

焼成実験により、褐色系顔料の酸化第二鉄(Fe₂O₃)は焼成室内の微妙な火まわりに影響を受けやすく、マンガン

系顔料に比べてより高度な操窯技術が求められることが分かった。そして、ウバイド期の操窯技術を基盤として、ウルク期初頭の灰色磨研土器を生む還元焰焼成という高度な操窯技術への発展過程が検討課題となった。

同時に、北メソポタミアのサラット・テペ(Salat Tepe)遺跡で発掘したウバイド期～後期銅石器時代(ウルク期前半併行)の彩文土器などを理化学的に分析することで、土器の焼成温度や彩文顔料の成分の復原にも取り組んできた²⁾(小泉2012, 2013)。理化学的な分析成果にもとづいて実験の成果を検証しつつ、さらなる実験の方針を軌道修正してきた(小泉・齋藤2012; 小泉2013)。

本稿では、2011～2012年度の理化学的な分析によって得られた、西アジアの都市形成期における土器焼成技術の新たな知見について論ずる³⁾。とくに、ウバイド期から後期銅石器時代初頭(ウルク期初頭併行)にかけての土器の胎土と彩文顔料、窯壁クリンカー⁴⁾、赤色顔料塊(粉末)の分析成果にもとづいて、推定焼成温度と彩文顔料成分を考察する。

1. 焼成技術の進展

筆者は、土器焼成技術を探る手がかりの一つとして、温度に注目している。何度くらいの温度で土器が焼かれたのかという点は重要であるものの、これまで通史的に扱われてきた機会が少ない。都市形成期という限定された時間枠での議論に入る前に、大局的な焼成温度の推移について俯瞰しておく。別稿にて、西アジア周辺における火の利用の進展について大雑把に概観したので(小泉2010)、ここでは焼成温度の推移に的を絞って整理し直してみる。

人類史において、西アジアは数々の画期がいち早く現れた地域である。約150万年前、人類の出アフリカの痕跡が死海地溝帯(ヨルダン川流域 Jordan Valley)に残されている。同地溝帯のゲシャー・ベノト・ヤーコブ(Gesher Benot Ya'aqov)遺跡では、約79万年前の地層からアシュリアン期(下部旧石器時代)の焼けたフリント製石器が集中出土した。これらは、表面の変形状態などから350～500℃程度で焼かれたようだ。野生オリーブ・ブドウの焼けた木片などが多量の生木と同伴出土していることから、本遺構は恒常的に火を管理していた最古級の炉址とされる(Goren-Inbar et al. 2004)。

中部旧石器時代には、西アジア・ヨーロッパ各地の洞窟などで炉址が普及して、約5万年前頃から石組炉が一般化していったという指摘がある(Gamble 2007: 242)。上部旧石器時代になると、ヨーロッパ⁵⁾や西アジアで多様な工芸技術が進展し、洞窟壁画や象徴的な造形が目立ってくる。世界最古級の焼成土製品がチェコのドルニ・ヴェストニツェ(Dolní Věstonice)遺跡で見つかっており、約3万

年前の文化層から出土した女性土偶や動物形土製品は約500~800°Cで焼かれたとされる⁶⁾ (Vandiver et al. 1989)。

西アジアでは、土器出現以前における小型土製品の焼成温度と、土器初現期の土器焼成の推定温度はほぼ600~700°Cで一致している⁷⁾。たとえば、西イランのテペ・アシアブ (Tepe Asiab) 遺跡出土の小型土製品は、再焼成実験および胎土の結晶化構造の観察にもとづき、800°C未満で焼かれていたという分析結果が紹介されて、およそ600~700°Cで野焼き焼成されていたという (Schmandt-Besserat 1974)。

土器新石器時代のハッサーナ期に、西アジアで土器生産が本格化してくると、昇焰式土器焼成窯が出現して、約800°C前後の比較的低温で彩文土器が酸化焰焼成された (Matson 1971: 77)。その後サマツラ期に、本格的な彩文土器が製作される段階になると、一部の胎土が焼結 (ガラス固化) するほど高温 (850~1050°C) で焼成されるようになったと推測されている (Tite and Maniatis 1975: 123; Simpson 1997a: 39)。

銅石器時代前半のハラフ期では、胎土に不完全焼成による芯部がほとんど残らない精製彩文土器が出現する。ハラフ期の彩文土器は昇焰式土器焼成窯において950°C未満で丁寧に焼成されたようだ (Simpson 1997a: 41)。ハラフ土器を750°Cと850°Cで30分間、酸化焰で再焼成した実験によると、粗製土器は約700~750°C、多くの彩文土器は約750~900°Cで焼かれたと推定されている (Van As and Jacobs 1989: Table V1)。

銅石器時代中頃のウバイド期になると、表面を叩くと金属に近い音を発する程度に硬質な焼き上がりの土器が現れる。ウバイド土器のなかには、緑色を帯びたり、暗いオリーブ色を呈して形が歪んでいるものもある (小泉 2006: 11-12)。おもにウバイド土器は石灰分の豊富な粘土を素地としている。

ウバイド土器には、過度に焼成されたり、形の歪んだものが、サマツラ土器に比べて高い頻度で認められる。こうした点から、彩文土器をはじめとした多くのウバイド土器は、昇焰式土器焼成窯において約1050~1150/1200°Cで焼成され⁸⁾、粗製土器はピット状の単室窯などでもっと低い温度で焼かれたとされている (Tite and Maniatis 1975: 123; Simpson 1997a: 43; Kayani 1997)。

以上のように、西アジア周辺における焼成技術の推移を大局的に眺めてみると、人間の暮らしの変化にあわせるようにして、より高温で焼く技術が開発されていった様子が浮き彫りになっている。下部旧石器時代で生活のために必要な段階では、せいぜい500°C未満の温度であったが、上部旧石器時代において芸術的とも呼べるような造形活動がなされるようになると、500~800°Cの温度が出されるよ

うになった。

新石器時代における土器発明前後では、野焼きを主体とする土器焼成が800°C未満の比較的低温でなされていた。まもなく、彩文土器が製作される段階になると、昇焰式の窯構造が開発されていき、800°C前後の安定した温度を維持できる環境が整ってくる。土器出現前後の焼成温度に顕著な差がほとんどなく、むしろ彩文土器の出現期に昇焰式土器焼成窯の発明と関連して、焼成温度そのものとある程度の温度維持の向上が認められる点は重要である。

銅石器時代に入ると、ハラフ期の彩文土器が900°C未満の温度で焼成された。そして、銅石器時代の中頃には、優に900°Cを超える高温で焼成されたウバイド彩文土器が現れて、西アジア各地の広範囲に拡散していった。

筆者は、ウバイド土器の焼成には一定の温度と時間を考慮した操窯が不可欠であるという前提に立ち、自身の推定 (900°C~) と先行研究 (~1150/1200°C) の温度差を埋めるべく、どれくらいの温度と時間を維持して焼成していたのかという点に注目している。この温度帯に、都市形成期のモノづくりを特徴づけている土器焼成技術を解く鍵があることはほぼ間違いない。

2. 分析方法

土器の推定焼成温度や彩文顔料成分の解明には、遺跡で層位的に発掘した土器試料を理化学的に分析することが前提となる。一般的に、土器の胎土分析として、産地同定 (粘土採取地の地域性) や流通過程などを目的とした微量元素分析が知られているが、焼成温度の推定には異なる視点での方法論が求められる。どの元素や鉱物に注目して、どのような分析を行えば、土器の焼成温度についてより有意な成果を導き出せるのかという分析手法の構築そのものが肝要となる。同時に、彩文顔料の成分分析に関しては、土器の素地そのものと彩文の元素や鉱物の異同について吟味していくことが必要である。

そこで筆者は、自身で発掘した一次資料を用いて、以下のような独自の方法を組み立てて分析することにした。

1) 分析試料と依頼試験

今回の分析試料は、トルコ南東部、ティグリス川上流域のサラット・テペ遺跡 (図1) で出土した銅石器時代中頃以降 (前5~4千年紀) の日干しレンガや土器片などの一次資料である。その大部分はウバイド期~後期銅石器時代初頭 (ウルク前期併行)、すなわち都市形成期に相当する。

2010~2012年、筆者は同遺跡を発掘調査して、複数のトレンチ区画 (I12, H12, G12) で都市形成期の遺構・遺物を検出した (図2)。これらは、テペ南側斜面のステップ・トレンチでそれぞれ10×10mに設定した区画から見

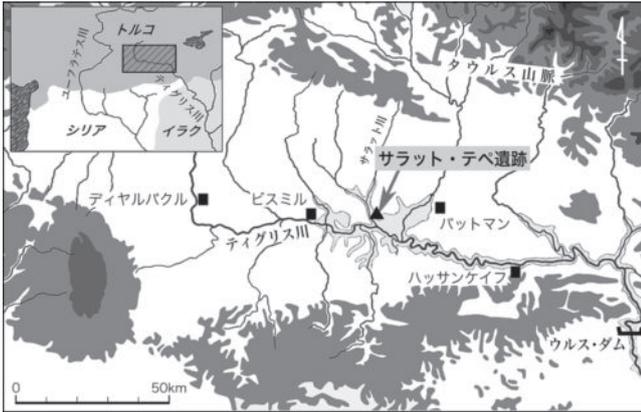


図1 サラット・テペ遺跡周辺図



図2 サラット・テペ発掘区画

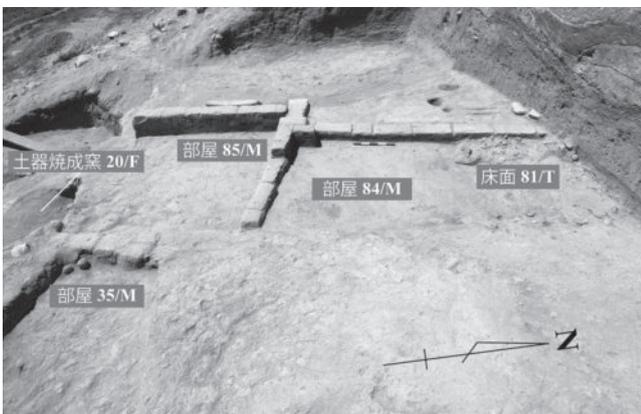


図3 後期銅石器時代初頭の土器工房址

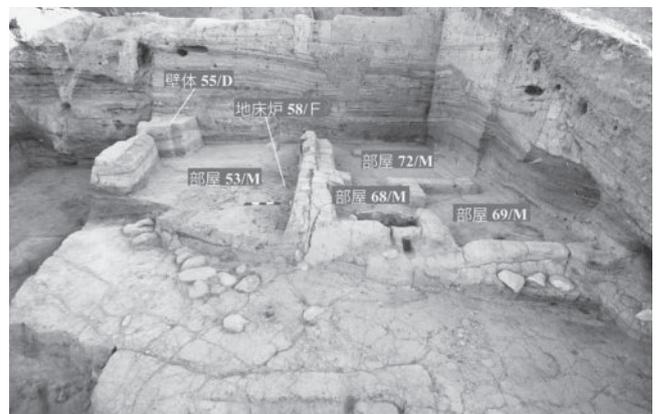


図4 ウバイド後期の三列構成プラン住居址

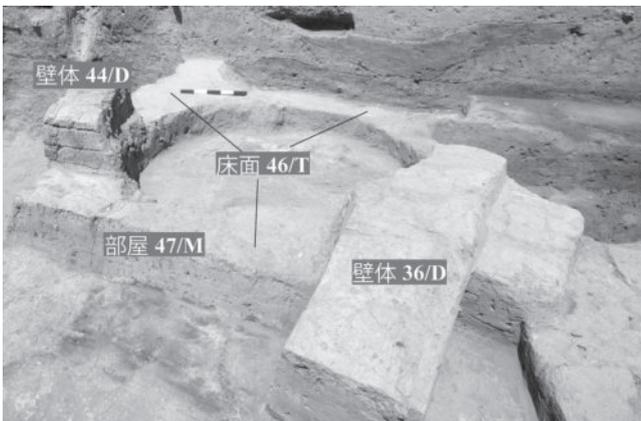


図5 後期銅石器時代初頭の建物1



図6 後期銅石器時代初頭の建物2

つかったものである (Ökse et al. 2012, 2013; 小泉ほか 2013)。現況において、各区画出土の遺構・遺物の時期変遷はテペ頂上側から順に、I-12 北区で後期銅石器時代初頭 (ウルク前期初頭併行)、I-12 南区~H-12 北区でウバイド後期末半~ウバイド終末期、H-12 南区でウバイド後期、G-12 北区でウバイド前期~後期と大まかに想定している。

目立った遺構・遺物として、I-12 区では、還元焼成技術の初期段階を示す後期銅石器時代初頭の灰色磨研土器を伴う複数の建物を確認した (図3)。H-12 区では、大量のビーズが副葬されたウバイド終末期の地下式横穴墓 64/G を見つけた。同墓の下方からは、ウバイド後期末半の三列構成プラン住居址を検出した (図4)。

2011 年度以降、サラット・テペで検出した銅石器時代

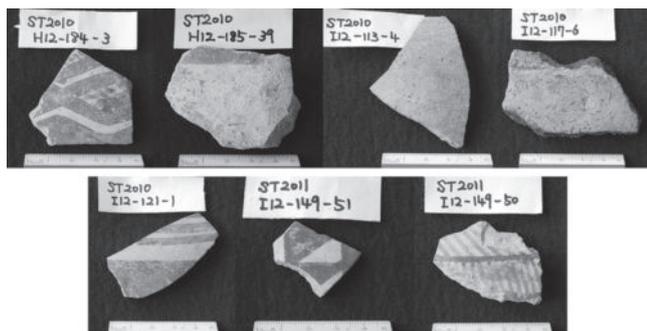


図7 土器試料

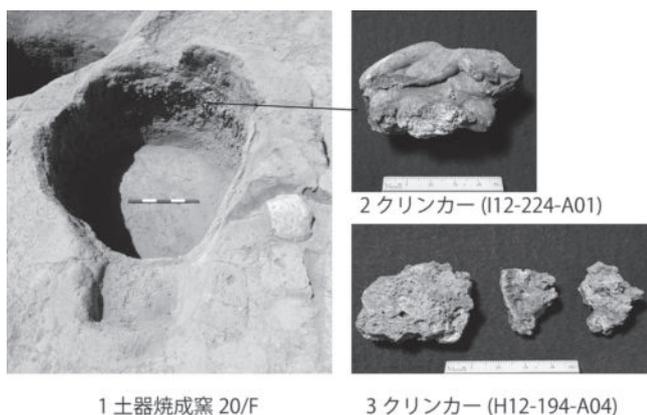


図8 土器焼成窯 20/F とクリンカー

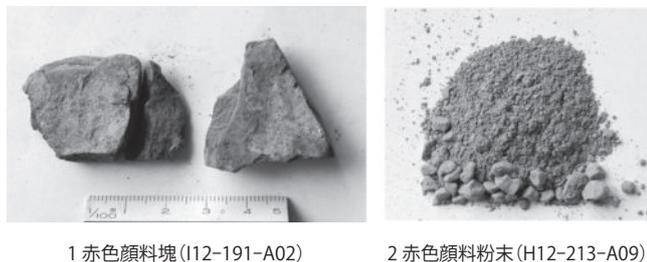


図9 赤色顔料

の土器・レンガ片を茨城県工業技術センター窯業指導所（以下、指導所）に持込み、日干しレンガや土器片の胎土組成、彩文顔料の成分などの分析試験を依頼した。本稿で論ずる分析試料の内訳は、日干しレンガ3点、土器片7点、窯壁クリンカー2点、赤色顔料2点であり、いずれも2010～2012年度の発掘調査で採取した試料である。

日干しレンガは、後期銅石器時代初頭の部屋 47/M の壁体 36/D（図5：I12-144-0）、ほぼ同時期の部屋 58/M の壁体 52/D（図6：I12-185-A02）、ウバイド後期の部屋 53/M の壁体 55/D（図4：H12-214-A02）をそれぞれ採取した。

土器片は、ウバイド後期後半の三列構成プラン住居址（図4）の床面で出土したウバイド彩文土器（H12-185-39）およびハラフ・ウバイド過渡期彩文土器（H12-184-

3）、後期銅石器時代初頭の部屋 35/M（図3）覆土から出土した粗製無文土器（I12-117-6）・灰色磨研土器（I12-113-4）、同部屋北側の堆積層から出土したウバイド後期彩文土器（I12-121-1）、部屋 47/M（図5）東側の堆積層で出土した彩文土器（I12-149-50、51）である（図7）。

窯壁クリンカーは、後期銅石器時代初頭の土器工房址に伴った平面鍵穴型プランの土器焼成窯 20/F（図3）の窯壁から取り上げた（I12-224-A01）。同窯は半地下式の焼成施設であり、燃烧室の壁体より分析試料を採取した（図8-1、2）。比較のために、ウバイド終末期の堆積層から出土したもの（H12-194-A04）も取り上げた（図8-3）。後者のクリンカーは、地下式横穴墓 64/G とほぼ同じ層位で出土しており、ウバイド終末期の焼成施設の窯壁片であったと推定している。

顔料については、上記工房址内の部屋 84/M の床面 81/T（図3）から灰色磨研土器と共伴出土した赤色顔料塊（I12-191-A02）を採取した（図9-1）。比較のために、ウバイド後期後半の三列構成プラン住居址の中央部屋 53/M（図4）床下（建物基礎層）から検出した赤色顔料粉末（H12-213-A09）も試料とした（図9-2）。

いずれも、サラット・テベ遺跡を管轄するトルコ共和国、ディヤルバクル博物館にて、研究分析用にトルコ国外持ち出し許可を正式に取得した試料の一部である。

2) 分析方法

ここでは、推定焼成温度と彩文顔料成分を解明していく上で、有効と考えられる分析方法について整理しておく。

①日干しレンガ

遺跡において、土器製作用の素地を入手するための粘土採掘坑が検出された例は希少である（Kamata and Ohtsu 1993: 187-190）。また、遺跡近隣の河川流域などに堆積している土壌は、現段階に至る遺跡形成過程において上流域から流されてきた砂、シルト、粘土などが堆積したものから構成されていて、遺跡利用段階（都市形成期）の土器製作用の原土と想定するには無理がある。現在の遺跡周辺の地表付近で土を採取しても、別の場所から運ばれてきた土を扱うことになり、有意な成果を期待することは難しい。

筆者は、土器製作用の原土に近い成分が残されている可能性が高いのは、同じ遺跡で検出される関連時期の建物のレンガであると推定している。建築材としての土は手近な場所で入手されていたはずである。土器が在地で生産されたのであれば、建築用に使われていた日干しレンガに近似した組成を示すことになると予想される。そこで、土器試料を比較分析する上で、同じ遺跡で検出された遺構の建築材としての日干しレンガの元素ならびに鉱物組成を示標とすることにした⁹⁾。

② LOI (強熱減量)

土器の胎土には、有機物などの揮発性物質や結晶水が含まれている。具体的な揮発性物質としては、スサをはじめとした植物質の混和材や炭酸カルシウム (CaCO_3) などが相当する。試料を高温で加熱処理して、質量の縮小率から揮発性物質や結晶水の含有率を算出する試験もしくはその失われた質量が LOI (Loss on ignition: 強熱減量) と呼ばれる。土器胎土中の元素をより正確に分析するために、LOI の含有率 (以下 LOI 値と表記) を考慮した元素分析結果の表示が一般的である。

本来、元素分析の信頼度を高めるために考慮される LOI 値であるが、同値は土器試料が焼かれた温度をある程度示唆してくれてもいる。つまり、LOI 値は焼成温度が高いほど相対的に小さい値を示し、逆に焼成温度が低いと相対的に大きい値を示す。まったく焼かれていない日干しレンガ (生粘土) になると、LOI 値はさらに大きくなる。このように LOI 値は土器試料の推定焼成温度の相対的な比較においてある程度の目安になると予想される。

③ XRF (蛍光 X 線分析)、XRD (X 線回折)

土器試料の胎土に含まれている元素および鉱物の組成を調べるために、XRF と XRD による分析を行なう。まず、土器胎土中の元素と上述した日干しレンガの元素とを比較して、主成分元素において著しい差異があるかどうかを調べる。具体的には、粘土の主成分である二酸化ケイ素 (SiO_2) と酸化アルミニウム (Al_2O_3)、含有率の高いその他の元素として酸化カルシウム (CaO) や酸化マグネシウム (MgO) などの重量比とモル比をそれぞれ比較検証してみる。

同時に、胎土中の鉱物は、原土に含まれる粘土鉱物類と、焼成により生成される輝石類や酸化鉄に大きく分けられる¹⁰⁾。上述した日干しレンガ試料の鉱物組成との比較により、土器胎土中の焼成により生成された鉱物を識別できる。これらを同定することによって、どの程度の温度帯で土器試料が焼成されていたのかをある程度推定することが可能になってくる。鉱物組成の分析にあたって、EDX (エネルギー分散型) よりも感度の高い WDS (波長分散型) を使用することにした。

XRF および XRD の分析は、上述の指導所にて依頼試験という形で行われた。具体的な XRF の分析方法は以下の通りである。土器片を水洗・風乾後、タングステンカーバイド製容器に移し、振動ミルで微粉碎した。この粉末を 105℃ の乾燥機内で乾燥し、マッフル炉 (1025℃) で焼成した。焼成前後の試料重量の変化により、LOI (強熱減量) を算出した。焼成試料 (約 0.5 g) と四ホウ酸リチウム (約 5 g) からガラスビードを作製し、波長分散型の蛍光 X 線分析装置 (島津製作所: XRF-1700) を用いて FP

(fundamental parameter) 法により元素分析を行なった。

XRD の分析は以下の通りに行われた。各種試料は粉末法により X 線回折装置で鉱物組成を測定した。土器片は、水洗・風乾・振動ミルによる微粉碎を行った後、40℃ の乾燥機内で乾燥したものを分析に供した。粘土は、細かく千切って風乾させたものを水篩 (水中に入れ、40 目の篩に通した) 後に、風乾したものを振動ミルで微粉碎してから分析に供した。いずれも X 線回折装置 (リガク: RINT-2200Ultima+) を用いて粉末法により鉱物組成の分析を行なった。

④ EPMA (電子線マイクロ分析)、TG-DTA (熱重量測定・示差熱分析)

彩文顔料が土器表面に定着するには一定の高温が必須となるため、土器の焼成温度を推定する上でも、彩文顔料の成分分析は有意な情報をもたらしてくれる。土器表面に塗られている彩文顔料の成分を分析するためには、彩文の塗られている部位 (以下、彩文部とする) と素地が露出している部位 (以下、素地部) の差を同一の試料の表面上で比較する必要がある。そこで、彩文部と素地部の差が明瞭に認められる土器試料をマッピング分析することにした。

茨城県工業技術センター本所にて、EPMA による顔料マッピング分析の依頼試験を行った。具体的には、以下の手法で EPMA により彩文の元素マッピング分析を実施した。前処理として、導電性を持たせるために金を約 20 nm 試料の表面に蒸着させた。電子線マイクロ分析装置 (日本電子: JXA-8200) を用いて、波長分散型分析により試料の彩文部と素地部の表面を分析して、約 100 μm 角で検出した元素をマッピングした。

さらに、上述の指導所では、TG-DTA (熱重量測定・示差熱分析) により、土器試料の焼成温度と熱量の関係を調べて、発熱・吸熱反応における変化についての分析も試みられた。土器試料は、XRD (X 線回折) に用いた試料と同様に水洗・風乾・振動ミルによる微粉碎を行った後、40℃ の乾燥機内で乾燥したものを白金製セルに詰めて分析に供した。熱重量測定・示差熱分析測定装置 (島津製作所: DTG-60H) を用いて、室温~1000℃ の範囲で、5℃/min のペースで加温していった。

⑤ 土器焼成窯と彩文顔料

当該期の土器を焼成したと推定される土器焼成窯が検出されている場合、窯から採取した試料を理化学的に分析して、土器と相互に比較する作業はきわめて有意な情報をもたらすと期待できる。たいてい土器焼成窯は、粘土を主体とした日干しレンガを構築材としたり、地表面を掘削して内面に薄くプラスター状に伸ばした粘土を張り付けた構造になっている。

土器焼成窯は、複数回にわたって高温焼成されている場

合がほとんどであるため、当然、窯壁表面で受けた熱量は土器そのものが受けた熱量よりも大きい。ただ、窯壁を構成している粘土中の鉱物組成は、最高温度で焼かれた状態を示すと予想される。つまり、窯壁自体と、そこで焼成されていたと思われる土器の元素・鉱物組成とを比較することで、推定焼成温度の精度を高めることができる。

同時に、土器工房址などの発掘において、彩文顔料そのものを原位置で発見できると、この上ない情報源として活用できる。幸運にも、サラット・テペでは彩文顔料塊・粉末を検出できたので、XRF・XRDによってその元素・鉱物組成を分析して、土器に塗られていた彩文の組成と比較検証を行なうことにした。

3. 分析成果

前章で提示した方法に従って、日干しレンガ、土器片、窯壁クリンカー、彩文顔料を分析した成果について以下にまとめる。

1) 日干しレンガと土器の元素組成

まず、日干しレンガと土器試料の元素組成に関して、LOIを考慮したXRF分析結果(重量%)を比べてみた(表1)。壁体36/Dの日干しレンガ(I12-144-0)、壁体52/Dの日干しレンガ(I12-185-A02)、壁体55/Dの日干しレンガ(H12-214-A02)について、粘土の主成分である二酸化ケイ素(SiO₂)と酸化アルミニウム(Al₂O₃)は、48.21:52.95:59.15(%)、12.39:11.87:12.81(%)となっている。その他の含有率の高い元素として、酸化カルシウム(CaO)と酸化マグネシウム(MgO)の重量比はそれぞれ、13.35:11.81:8.20(%)、3.78:3.16:2.91

(%)を示している。これら3つの日干しレンガの酸化アルミニウムと二酸化ケイ素の重量比率は、壁体36/Dから順に0.26(12.39/48.21)、0.22(11.87/52.95)、0.22(12.81/59.15)となる。つまり、いずれの日干しレンガも粘土の主成分元素においてほぼ同様の組成を示しており、その他の元素では微妙な差を示しているものの¹¹⁾、ほぼ同質の在地の原土から作られていたと推定される。

また、土器胎土に含まれる元素に関して、LOIを考慮したXRF分析結果(重量%)によると、分析対象とした土器試料(5点)は壁体36/Dの日干しレンガ(I12-144-0)の粘土成分と大まかな傾向が一致している(表1)。粘土の主成分である酸化アルミニウム(Al₂O₃)と二酸化ケイ素(SiO₂)の重量比率は、日干しレンガの0.26に対して土器試料は0.24~0.35(14.24/59.50~17.65/51.10)を示し、著しい差は認められなかった。同時に、粘土の主成分元素のモル比(LOIを考慮しない元素分析結果にもとづく)においても(表2)、酸化アルミニウムと二酸化ケイ素の比率は、壁体36/Dの日干しレンガで0.15(9.12/60.20)、土器試料は0.14~0.21(9.39/66.54~12.05/58.01)となり、両者の間に大きな差異はない。

さらに、日干しレンガ(3点)と土器試料(5点)に関して、粘土の主成分元素である二酸化ケイ素(SiO₂)、酸化アルミニウム(Al₂O₃)、および含有率の高い酸化カルシウム(CaO)と酸化マグネシウム(MgO)の和について、それぞれのモル比を三角座標で示すと、いずれも近接した分布にあることが明らかになった(図10)。

したがって、今回分析した土器試料は、いずれも近似した主成分の原土から製作され、日干しレンガとほぼ同質の粘土が用いられていたことがほぼ確実と思われる。これら

表1 LOIを考慮した元素分析結果(重量%)

試料名	日干しレンガ I12-144-0	日干しレンガ I12-185-A02	日干しレンガ H12-214-A02	灰色磨研土器 I12-113-4	粗製無文土器 I12-117-6	ウバイド彩文土器 I12-121-1	過渡期彩文土器 H12-184-3	ウバイド彩文土器 H12-185-39
LOI	13.90	12.39	8.72	6.12	12.56	2.97	4.48	3.16
SiO ₂	48.21	52.95	59.15	50.55	46.01	51.10	51.60	59.50
CaO	13.35	11.81	8.20	13.58	10.33	8.85	11.90	10.97
Al ₂ O ₃	12.39	11.87	12.81	15.75	16.22	17.65	17.25	14.24
MgO	3.78	3.16	2.91	4.68	5.00	8.07	5.21	3.26
Fe ₂ O ₃	3.71	3.39	3.56	4.95	4.93	6.79	5.27	4.07
K ₂ O	2.50	2.06	1.94	2.19	3.16	2.48	2.26	1.93
Na ₂ O	0.92	1.04	1.60	0.93	0.67	0.75	0.65	1.24
TiO ₂	0.60	0.62	0.70	0.71	0.64	0.77	0.79	0.76
P ₂ O ₅	0.36	0.48	0.17	0.25	0.20	0.29	0.34	0.63
SO ₃	0.11	0.04	0.07	0.09	0.10	0.05	0.05	0.04
MnO	0.07	0.07	0.07	0.10	0.08	0.09	0.08	0.08
Cr ₂ O ₃	0.04	0.04	0.05	0.04	0.03	0.06	0.05	0.05
SrO	0.02	0.02	0.01	0.03	0.02	0.02	0.03	0.03
NiO	0.02	0.02	0.01	0.02	0.02	0.04	0.02	0.02
ZrO ₂	0.01	0.01	0.03	0.01	0.01	0.01	0.00	0.03
CuO	0.01	0.01	0.00	0.01	0.01	0.01	0.01	0.00
ZnO	0.01	0.01	0.00	0.01	0.01	0.01	0.01	0.00
TOTAL	100	100	100	100	100	100	100	100

表2 LOIを考慮しない元素分析結果 (mol%)

試料名	日干しレンガ I12-144-0	灰色磨研土器 I12-113-4	粗製無文土器 I12-117-6	ウバイド彩文土器 I12-121-1	過渡期彩文土器 H12-184-3	ウバイド彩文土器 H12-185-39
SiO ₂	60.20	58.59	58.01	57.61	59.19	66.54
CaO	17.86	16.86	13.95	10.70	14.62	13.15
Al ₂ O ₃	9.12	10.76	12.05	11.73	11.66	9.39
MgO	7.05	8.08	9.40	13.56	8.92	5.44
Fe ₂ O ₃	1.74	2.16	2.34	2.88	2.27	1.71
K ₂ O	1.99	1.62	2.54	1.79	1.66	1.38
Na ₂ O	1.11	1.05	0.82	0.82	0.72	1.34
TiO ₂	0.57	0.62	0.61	0.65	0.68	0.64
P ₂ O ₅	0.19	0.12	0.11	0.14	0.16	0.30
SO ₃	0.10	0.08	0.10	0.04	0.04	0.03
MnO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Cr ₂ O ₃	0.02	0.02	0.02	0.03	0.02	0.02
SrO	0.02	0.02	0.02	0.01	0.02	0.02
NiO	0.02	0.02	0.02	0.04	0.02	0.01
ZrO ₂	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01
CuO	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.00
ZnO	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.00
TOTAL	100	100	100	100	100	100

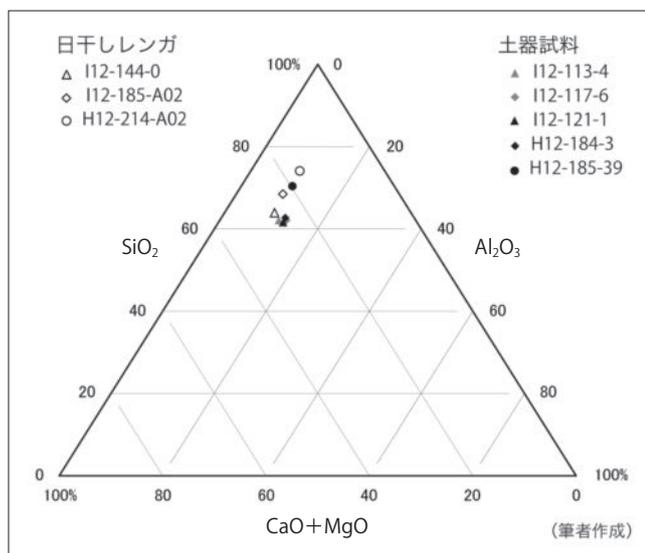


図10 主成分元素の三角座標グラフ

の土器は在地生産されていた可能性が極めて高い。そして、LOIを考慮した元素分析の重量比では(表1)、いずれの土器試料にも酸化カルシウム(CaO)が8.85-13.58(%)というかなり高い数値を示し、酸化マグネシウム(MgO)も3.26-8.07(%)と比較的目立つ。たいてい、石灰石(limestone: CaCO₃)の近隣にはドロマイト(dolomite: CaMg(CO₃)₂)が産出されることが多く、もともと後者にはマグネシウムが含有されている(高嶋 1996: 31-32)。日干しレンガ(I12-144-0)における両者の重量比は13.35:3.78(%)であることも勘案すると、土器試料は在地の石灰質粘土を素地としていたと考えられる¹²⁾。

くわえて、後期銅器時代初頭の粗製無文土器(I12-117-6)のLOI値12.56%は、壁体36/Dの日干しレンガ

(I12-144-0) および壁体52/Dの日干しレンガ(I12-185-A02)の値13.90、12.39(%)と近似しており¹³⁾、かなり低温で焼成されたと推定される(表1)。ササ(切り藁)の大量に含まれた同土器試料の胎土は黒色を呈しており、芯部が不完全焼成であったことは明瞭である。一方、ウバイド後期の彩文土器(H12-185-39、I12-121-1)のLOI値3.16、2.97(%)は最も低いことから、かなりの高温で焼成されたと推測される。そして、ハラフ・ウバイド過渡期の彩文土器(H12-184-3)と後期銅器時代初頭の灰色磨研土器(I12-113-4)のLOI値4.48、6.12(%)は両者の中間的な値となっている。

2) 日干しレンガと土器の鉱物組成

つぎに、日干しレンガと土器試料の鉱物組成に関して、XRDによる試料のピークリストから判別した。壁体36/Dの日干しレンガ(I12-144-0)と他の日干しレンガ(I12-185-A02、H12-214-A02)を比較したところ、石英(quartz)、方解石(calcite)、長石類(feldspar)、カオリナイト(kaolinite)などの粘土鉱物が同定され、いずれも石灰質粘土であると見られる(図11-1~3)。

壁体36/Dの日干しレンガ(I12-144-0)に含まれているカオリナイトや雲母系鉱物のイライト(illite)は粗製無文土器(I12-117-6)にも同定された(図11-1、12)。よって、元素組成のLOI値の成果と同様に鉱物組成の点においても、後期銅器時代初頭の粗製無文土器はかなり低温(約450℃以上)で焼成されていたと推測される。

また、ウバイド後期の彩文土器(H12-185-39、I12-121-1)には、ゲーレン石(gehlenite)や輝石(pyroxene)などの輝石類、磁鉄鉱(magnetite)や赤鉄鉱(hematite)などの酸化鉄が同定された(図13、14)。これら

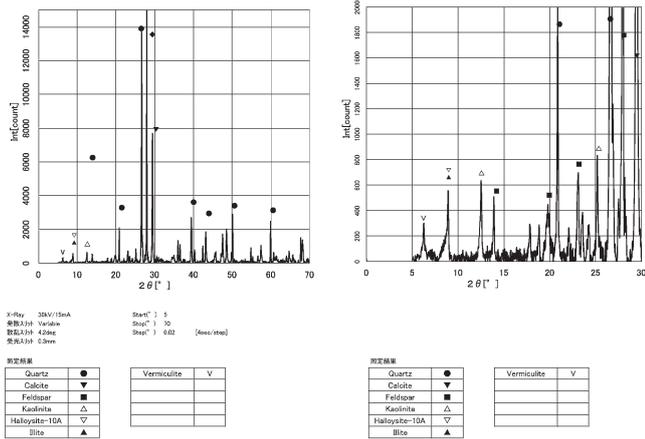


図 11-1 日干しレンガ (H12-144-0) 鉱物組成

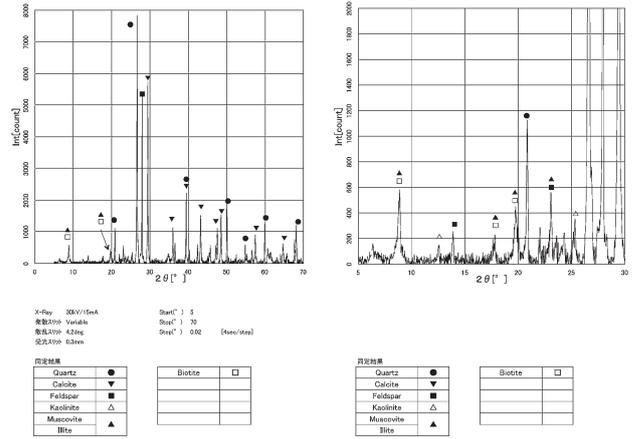


図 12 粗製無文土器 (H12-117-6) 鉱物組成

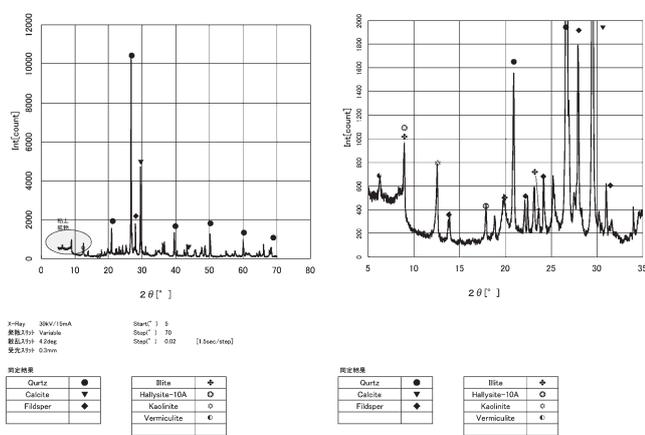


図 11-2 日干しレンガ (H12-185-A02) 鉱物組成

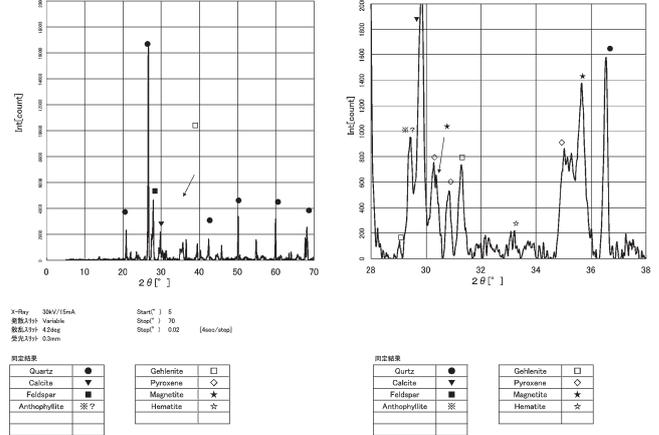


図 13 ウバイド彩文土器 (H12-185-39) 鉱物組成

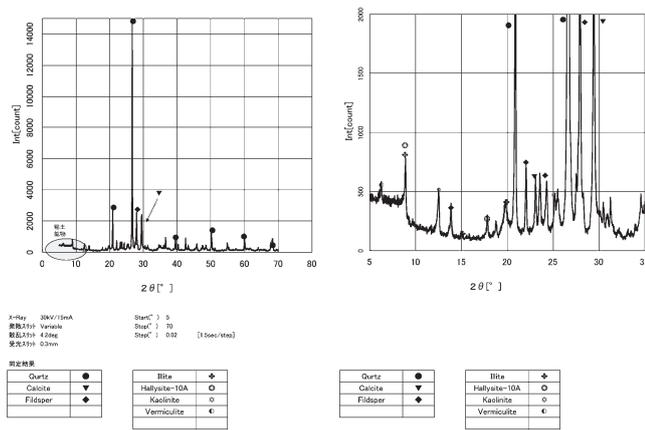


図 11-3 日干しレンガ (H12-214-A02) 鉱物組成

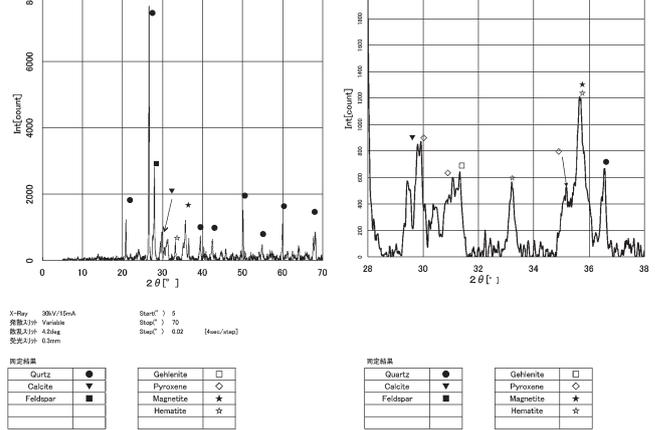


図 14 ウバイド彩文土器 (H12-121-1) 鉱物組成

の輝石類や酸化鉄は、原土に含まれていた粘土鉱物類とは異なり、焼成によって生成される鉱物であることから（黒川・川村 1977: 162-164）、ウバイド彩文土器は比較的高温（約 900℃以上）で焼成されていたと推定される。

一方、ハラフ・ウバイド過渡期の彩文土器（H12-184-3）には、ゲーレン石や輝石などの輝石類、磁鉄鉱や赤鉄

鉱などの酸化鉄だけでなく、雲母系鉱物（muscovite、illite、biotite）も併せて同定された（図 15）。よって、ハラフ・ウバイド過渡期の彩文土器は後期銅器時代初頭の粗製無文土器よりも高い温度で、かつウバイド後期の彩文土器よりも低い温度（約 800~900℃）で焼成されていたと推測される。

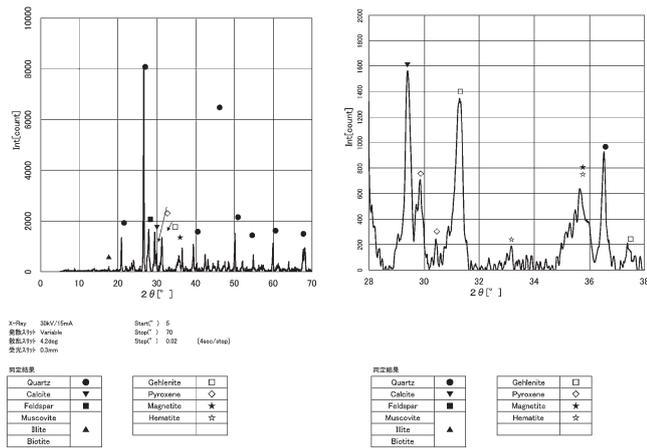


図15 ハラフ・ウバイド過渡期彩文土器(H12-184-3) 鉱物組成

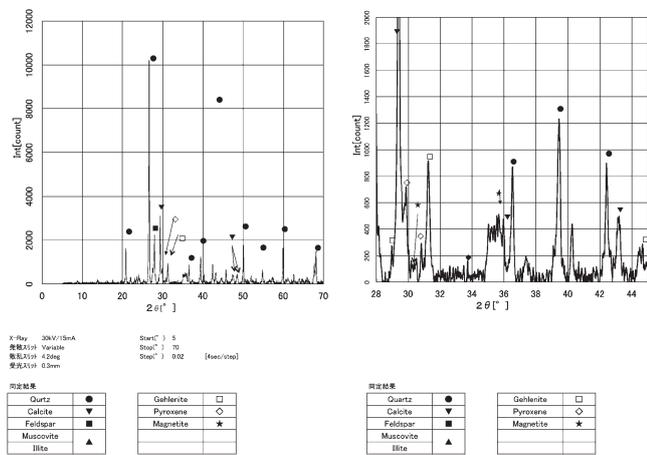


図16 灰色磨研土器 (II2-113-4) 鉱物組成

さらに、後期銅器時代初頭の灰色磨研土器 (II2-113-4) にも、輝石類や酸化鉄と共に雲母系鉱物が認められるため、比較的低い温度 (約 800~900℃) で焼かれていたと考えられる (図16)。灰色磨研土器には赤鉄鉱が見られず、磁鉄鉱が同定されているが、これは還元状態で焼成されて粘土中の酸化鉄から磁鉄鉱が生成されたことによると想像される (Shepard 1954: 37-38)。

3) 土器彩文顔料

ウバイド後期の彩文土器 (II2-149-51) を EPMA により元素マッピング分析したところ、素地部の元素は上述の日干しレンガの主成分元素と大まかな傾向で一致していることが分かった (図17)。

素地部で検出された元素のモル比を詳細に比較してみると、粘土の主成分であるアルミニウム (Al) とケイ素 (Si) の比率は 0.16 (3.29/20.78) となり、壁体 36/D の日干しレンガ 0.15 や土器試料 0.14~0.21 と大差ない。ほかに、カリウム (K) とカルシウム (Ca) の比率は 0.14 (1.64/11.67) を示し、同日干しレンガ 0.11 (1.99/17.86)

や土器試料 0.10~0.18 (1.62/16.86~2.54/13.95) と比較的近似している。

彩文部の元素組成でとくに目立つのは鉄 (Fe) とマンガン (Mn) である。彩文部の鉄 (Fe) とケイ素 (Si) のモル比率は、素地部において 0.19 (4.05/20.78) であったのに対して、彩文部では 1.52 (24.61/16.18) と著しく増加している。また彩文部では、素地部で検出されなかったマンガン (Mn) が微量に検出されている (モル比 1.25%)。

また、彩文部の元素モル比に関して、アルミニウムとケイ素の比率は 0.24 (3.92/16.18) と素地部 (0.16) に比べて微増しているに過ぎない。ところが、カリウム (K) とカルシウム (Ca) の比率は 0.90 (3.58/3.96) を示し、素地部 (0.14) と明らかに異なっている。これは彩文顔料にカリウムが添加されていることを示唆している。

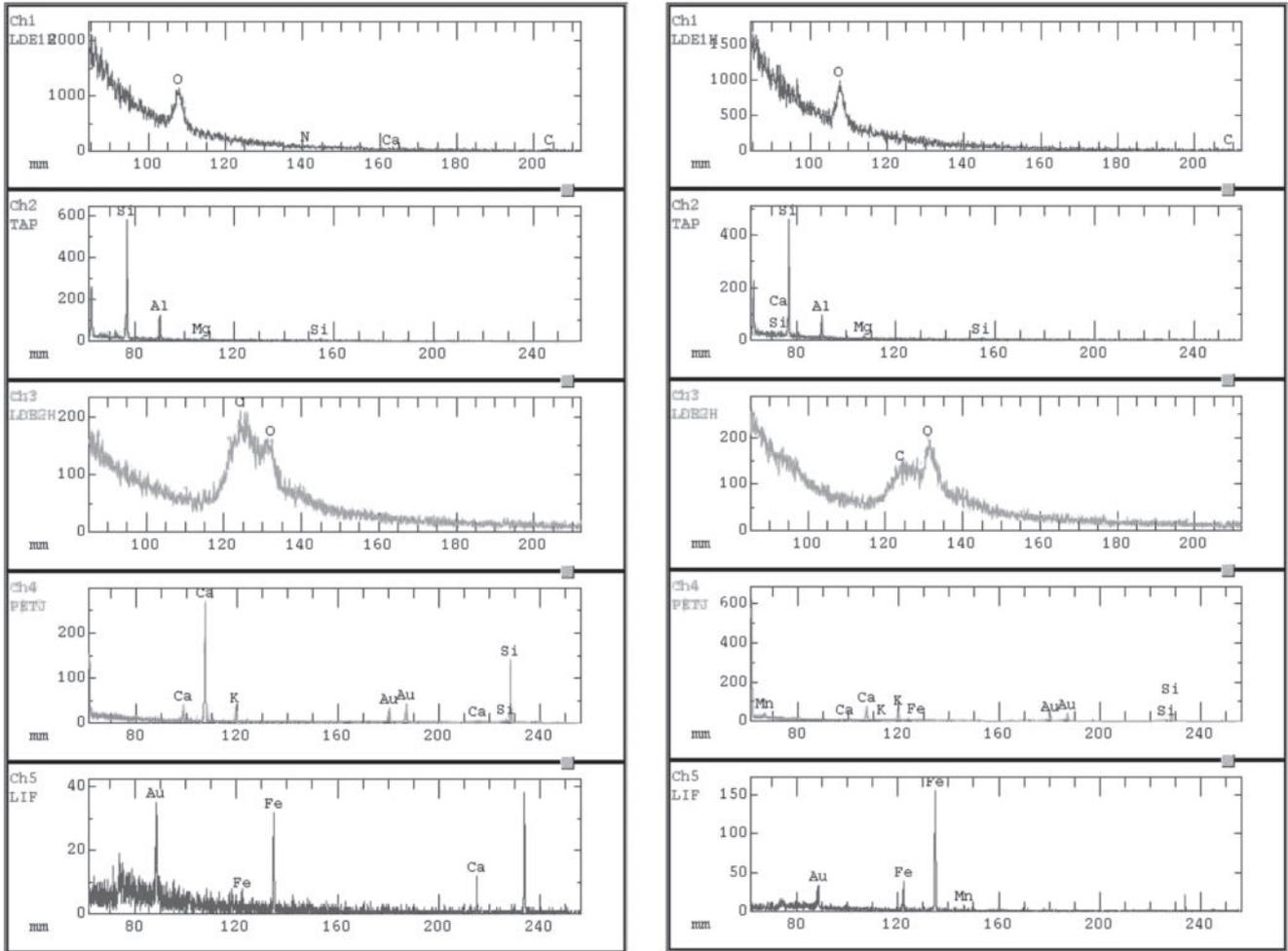
したがって、分析したウバイド彩文土器の顔料には、大量の鉄と微量のマンガンだけでなく、カリウムも混ぜられていたと推定される。前者の具体的な鉱物の候補としては、赤鉄鉱 (hematite : Fe₂O₃) に軟マンガン鉱 (pyrolusite : MnO₂) を加えたか、あるいはヤコブス鉱 (jacobite : MnFe₂O₄) のような鉄化合物を用いていたと推定される。

比較参考のために、前3千年紀の前期青銅器時代の二重彩文土器 (II2-149-50) もマッピング分析したところ、顔料成分として鉄とマンガンが含まれていたが、ウバイド後期彩文土器 (II2-149-51) ほど両元素の含有量の差は見られなかった。なお、前期青銅器時代の二重彩文土器は、ウバイド後期彩文土器に比べて、胎土・顔料ともに元素の分布が均一であり、器面が滑らかであることも明らかになった。この器面形状の特徴は、青銅器時代の土器がロクロにより水挽き成形されていたのに対して、ウバイド期の土器はロクロで成形されていないことを明示している。粘土紐輪積みで容器の祖型をつくり、回転台の上でプロポーシオンが整えられて最終的な器形に仕上げられたという、これまでの観察所見と符合する (小泉 2006: 6-8)。

4) 窯壁クリンカー

後期銅器時代の土器焼成窯 20/F から得たクリンカー (II2-224-A01 : 以下、クリンカー A) と、ウバイド終末期の堆積層より出土したクリンカー (H12-194-A04 : 以下、クリンカー B) について XRF および XRD の分析を行なった。

両クリンカーの LOI を考慮した元素分析 (重量%) では、粘土の主成分である酸化アルミニウム (Al₂O₃) と二酸化ケイ素 (SiO₂) の重量比率は、0.23 (13.00/57.35) と 0.23 (11.98/52.97) の同値となった (表3)。両値は先の日干しレンガ (3点) の同重量比率 (0.26, 0.22, 0.22) に近



Unknown Specimen No. 1
 Group : iimura Sample : 120323-51-2
 UNK No. : 1 Comment : No51-2
 Stage : X= 28.3960 Y= 33.8930 Z= 11.1610
 Acc. Voltage : 15.0 (kV) Probe Dia. : 0 Scan : On Mag : 1000
 Dated on Mar 23 07:56 2012
 WDS only No. of accumulation : 1

Curr. (A) : 3.160E-08

Element	Crystal	Peak (mm)	BG-(mm)	BG+(mm)	Net (cps)	Bg-(cps)	Bg+(cps)
1 C	LDE2H 3	124.066	9.700	38.800	864.5	210.0	93.4
2 O	LDE1H 1	107.884	3.400	35.000	3487.2	2431.5	310.1
3 Mg	TAP 2	107.027	2.750	3.900	152.0	16.7	20.0
4 Al	TAP 2	90.077	2.900	1.600	1214.6	50.0	30.0
5 Si	PETJ 4	228.094	3.950	1.200	1392.1	0.0	0.0
6 K	PETJ 4	119.644	1.500	0.950	344.8	3.3	6.7
7 Ca	PETJ 4	107.294	2.600	0.650	2678.6	16.7	20.0
8 Fe	LIF 5	134.683	3.550	3.600	318.5	3.3	0.0

ZAF Metal

Element	Mass (%)	Atom (%)	K (%)	ZAF	Z	A	F
C	2.742	9.5785	0.592	4.6282	0.9277	4.9892	1.0000
O	18.440	48.3564	5.370	3.4341	0.9521	3.6068	1.0000
Mg	0.370	0.6385	0.236	1.5683	1.0012	1.5756	0.9942
Al	2.114	3.2871	1.555	1.3594	1.0331	1.3318	0.9880
Si	13.910	20.7775	11.251	1.2364	1.0054	1.2312	0.9988
K	1.531	1.6433	1.408	1.0873	1.0600	1.0585	0.9690
Ca	11.145	11.6667	10.295	1.0825	1.0375	1.0454	0.9981
Fe	5.393	4.0518	4.636	1.1635	1.1498	1.0119	1.0000
Total	55.645	100.0000	35.342				Iteration = 8

素地部

Unknown Specimen No. 1
 Group : iimura Sample : 120322-51-1
 UNK No. : 1 Comment : No51-1
 Stage : X= 26.8745 Y= 43.7405 Z= 11.5585
 Acc. Voltage : 15.0 (kV) Probe Dia. : 0 Scan : On Mag : 1000
 Dated on Mar 22 16:42 2012
 WDS only No. of accumulation : 1

Curr. (A) : 3.245E-08

Element	Crystal	Peak (mm)	BG-(mm)	BG+(mm)	Net (cps)	Bg-(cps)	Bg+(cps)
1 C	LDE2H 3	124.366	9.800	36.600	561.5	253.4	115.0
2 O	LDE1H 1	107.684	2.300	34.400	3242.2	1823.7	246.7
3 Mg	TAP 2	106.977	3.550	4.050	139.6	26.7	13.3
4 Al	TAP 2	90.127	2.200	2.200	912.7	46.7	50.0
5 Si	TAP 2	76.777	1.700	2.450	4499.5	123.3	100.0
6 K	PETJ 4	119.644	4.050	0.450	577.1	13.3	13.3
7 Ca	PETJ 4	107.344	3.100	1.150	714.8	13.3	16.7
8 Mn	PETJ 4	66.744	2.750	1.550	307.5	123.3	106.7
9 Fe	LIF 5	134.733	3.450	2.200	1549.3	3.3	3.3

ZAF Metal

Element	Mass (%)	Atom (%)	K (%)	ZAF	Z	A	F
C	1.493	7.1092	0.375	3.9858	0.8820	4.5191	1.0000
O	10.745	38.3947	4.862	2.2102	0.9075	2.4354	1.0000
Mg	0.424	0.9979	0.211	2.0110	0.9557	2.1098	0.9973
Al	1.848	3.9161	1.138	1.6242	0.9862	1.6551	0.9951
Si	7.949	16.1796	5.783	1.3747	0.9597	1.4331	0.9955
K	2.449	3.5814	2.296	1.0668	1.0103	1.0696	0.9872
Ca	2.773	3.9559	2.675	1.0366	0.9882	1.0594	0.9901
Mn	1.205	1.2538	1.077	1.1183	1.1088	1.0086	1.0000
Fe	24.042	24.6114	21.962	1.0947	1.0896	1.0047	1.0000
Total	52.928	100.0000	40.378				Iteration = 5

彩文部

図 17 ウバイド彩文土器 EPMA 分析成果

表3 クリンカー・顔料の元素分析結果 (重量%)

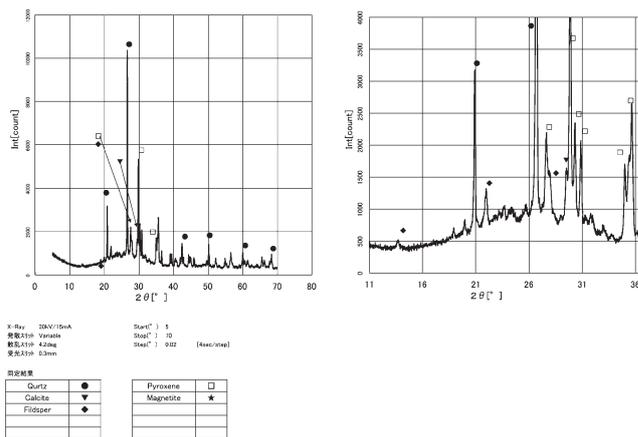
試料名	クリンカー A I12-224-A01	クリンカー B H12-194-A04	顔料 C I12-191-A02	顔料 D H12-213-A09	日干シレンガ I12-144-0	日干シレンガ I12-185-A02	日干シレンガ H12-214-A02
LOI	1.41	5.97	31.79	32.50	13.90	12.39	8.72
SiO ₂	57.35	52.97	19.67	21.40	48.21	52.95	59.15
CaO	14.57	14.33	37.84	37.84	13.35	11.81	8.20
Al ₂ O ₃	13.00	11.98	3.84	3.27	12.39	11.87	12.81
MgO	4.10	4.00	1.47	2.02	3.78	3.16	2.91
Fe ₂ O ₃	3.79	3.67	3.53	1.56	3.71	3.39	3.56
K ₂ O	2.70	4.06	0.31	0.46	2.50	2.06	1.94
Na ₂ O	1.17	1.30	0.61	0.28	0.92	1.04	1.60
TiO ₂	0.65	0.60	0.12	0.17	0.60	0.62	0.70
P ₂ O ₅	1.02	0.86	0.22	0.14	0.36	0.48	0.17
SO ₃	0.04	0.08	0.09	0.06	0.11	0.04	0.07
MnO	0.09	0.08	0.40	0.22	0.07	0.07	0.07
Cr ₂ O ₃	0.04	0.04	0.02	0.02	0.04	0.04	0.05
SrO	0.04	0.04	0.07	0.05	0.02	0.02	0.01
NiO	0.02	0.02	0.01	0.01	0.02	0.02	0.01
ZrO ₂	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.03
CuO	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.00
ZnO	0.01	0.00	0.01	0.00	0.01	0.01	0.00
TOTAL	100	100	100	100	100	100	100

似している (表1)。その他の含有率の高い元素として、酸化マグネシウム (MgO) と酸化カルシウム (CaO) の重量比率も両試料は同値 0.28 (4.10/14.57, 4.00/14.33) を示している。つまり、どちらのクリンカーも粘土の主成分元素においてほぼ同様の組成であり、日干シレンガのそれと近いことから、在地の原土から窯壁として仕上げられたものと推定される。

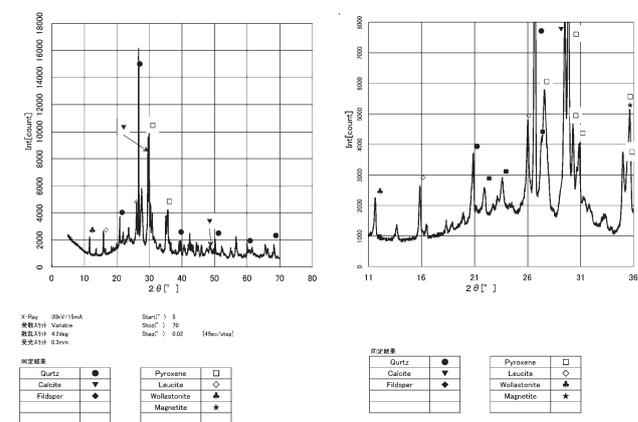
LOI 値に関しては、クリンカー A : B = 1.14 : 5.97 (%) となり、明らかに前者の方が長時間にわたって高温に曝されていた状況を示している。前者の色調はオリーブ黄 (5Y6/3) で、後者の色調はにぶい黄 (2.5Y6/3) である (図8)。クリンカー A は表面が融解して水滴状に垂れ、過度焼成土器に共通する色調を呈している。一見すると、前者の方がより高温に曝されていたようだが、次に述べる鉱物組成の分析では正反対の結果が導き出されることになった。

クリンカー A・B の X 線回折試験によると、いずれにも粘土に由来する石英 (quartz)、方解石 (calcite)、長石 (feldspar) が同定された (図18)。また、どちらにも焼成による生成物と想定される輝石 (pyroxene)、磁鉄鉱 (magnetite) が認められたが、クリンカー B ではほかに白榴石 (leucite) と珪灰石 (wollastonite) も同定された。さらに、クリンカー A は、ガラス相の存在の目安となる 10~35°C 間のバックグラウンドがクリンカー B よりも低く、白榴石が認められなかった。

クリンカーの分析結果として、サラット・テペの後期銅石器時代初頭の土器焼成窯 20/F は、ウバイド終末期の類似施設に比べて相対的に低い温度で焼かれていたと推察される。たしかに、回折線グラフにおいて、ガラス相の存在



1 クリンカー A (I12-224-A01)



2 クリンカー B (H12-194-A04)

図18 クリンカー鉱物組成

の目安となる 10~35℃間のバックグラウンドの高さを見ると、クリンカー A・Bともに比較的高温（900℃以上）に曝されていた。しかし、クリンカー A のバックグラウンドがクリンカー B のものよりもわずかに低く、白榴石が存在しないことから、前者は後者と比べて相対的に低い温度で焼成されていたと推定される。

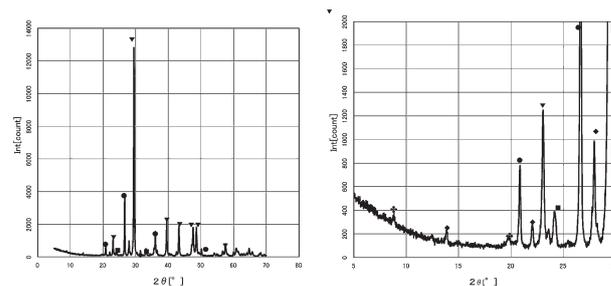
5) 赤色顔料塊・粉末

後期銅石器時代初頭の部屋 84/M の床面 81/T から検出した赤色顔料塊 (I12-191-A02：以下、顔料 C) と、ウバイド後期後半の三列構成プラン住居址の床面 57/T 直下から採取した赤色顔料粉末 (H12-213-A09：以下、顔料 D) を XRF と XRD により分析した。

LOI を考慮した元素分析結果（重量％）によると、顔料 C・D には、二酸化ケイ素 (SiO₂) や酸化アルミニウム (Al₂O₃) に比べて、酸化カルシウム (CaO) の含有率が目立っている（表 3）。どちらの顔料にも酸化カルシウムが 37.84% も含まれており、日干しレンガの 8.20~13.35% と比較するとその多さが顕著である。同時に、酸化マンガン (MnO) の含有率も高い。顔料 C の同値は 0.40%、顔料 D は 0.22% となっており、各日干しレンガの値 0.07% と比較すると明らかに目立つ。

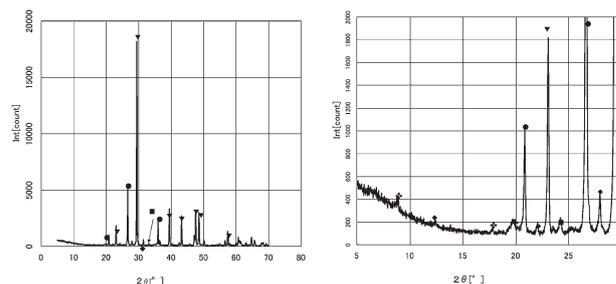
両顔料の二酸化ケイ素に対する酸化カルシウムと酸化マグネシウム (MgO) の和の重量比率も調べてみると、それぞれ 2.00 ((37.84+1.47)/19.67)、1.86 ((37.84+2.02)/21.40) となっている。こうした値は、上述の日干しレンガの同重量比率 0.36 ((13.35+3.78)/48.21)、0.28 ((11.81+3.16)/52.95)、0.19 ((8.20+2.91)/59.15) と比べて明らかに高い。また、粘土の主成分元素である酸化アルミニウム (Al₂O₃) と二酸化ケイ素 (SiO₂) の重量比率は、それぞれの顔料で 0.20 (3.84/19.67)、0.15 (3.27/21.40) となり、日干しレンガの同重量比率 (0.26、0.22、0.22) と大きな差はない。よって、顔料 C・D は、同じような原土を素材として、意図的に石灰石 (limestone: CaCO₃) を添加していたと推定される。

さらに、顔料成分の顕著な点として、顔料 C には酸化鉄 (Fe₂O₃) が多量に認められる。酸化鉄と二酸化ケイ素の重量比率は 0.18 (3.53/19.67) であり、各日干しレンガの同重量比率 0.08 (3.71/48.21)、0.06 (3.39/52.95)、0.06 (3.56/59.15) とかなり違っている。この分析結果は、顔料 C に酸化鉄が意図的に加えられていることを示している。他方、顔料 D の酸化鉄と二酸化ケイ素の重量比率は 0.07 (1.56/21.40) であり、顔料 C と比べて酸化鉄が少ない。実際に、顔料 C の色調は赤褐 (10R5/4) で、顔料 D の色調はにぶい橙 (2.5YR6/4) であり、前者の方が赤味は強い (図 9)。これは酸化鉄の含有率の高さに起因している



X-Ray: 30kV/15mA
 検出器: Vanacke
 露光時間: 4.50s
 走査速度: 0.3mm
 Start: 5
 Stop: 30
 Step: 0.02 (2θ/step)

1 顔料 C (I12-191-A02)



X-Ray: 30kV/15mA
 検出器: Vanacke
 露光時間: 4.50s
 走査速度: 0.3mm
 Start: 5
 Stop: 30
 Step: 0.02 (2θ/step)

物質名	相
Quartz	●
Calcite	▼
Feldspar	◆

物質名	相
Illite	◆
Hematite	■

物質名	相
Quartz	●
Calcite	▼
Feldspar	◆

物質名	相
Illite	◆
Hematite	■

2 顔料 D (H12-213-A09)

図 19 顔料鉱物組成

と思われる。

X 線回折図において、顔料 C・D には粘土に由来する石英 (quartz)、方解石 (calcite)、長石 (feldspar) が確認された (図 19)。また、どちらの顔料にも赤鉄鉱 (hematite) も同定された。酸化鉄成分が赤鉄鉱だけであることから、顔料 C・D は煨焼されていた可能性がある。さらに、両顔料にはイライト (illite) も見られたが、カオリナイト (kaolinite) とハロイサイト (halloysite) の回折線が認められなかった。

鉱物組成から見た顔料の特性として、いずれも粘土に方解石を主成分とする石灰石を配合していたと推定される。また、どちらの顔料にもカオリナイトやハロイサイトが認められないことから、ある程度の温度 (450℃以上) で煨焼されていたと推定される。さらに、日干しレンガ (I12-144-0) や粗製無文土器 (I12-117-6) でも認められていたイライトが同定されていることより、煨焼温度はそれほど高くなかったと考えられる。

4. 考察

1) 先行期の焼成技術と石灰質粘土

日干しレンガと土器試料の XRF・XRD による分析の結

果、サラット・テペ遺跡出土の土器胎土に共通する最も顕著な点として、カルシウム (Ca) やマグネシウム (Mg) が多く含まれているということが分かった。在地の石灰質粘土を素地として、ウバイド期から後期銅石器時代にかけて多様な土器が製作され、焼成温度はいくつかの温度帯に分かれることも明らかにされた。ここで、石灰質粘土の利用に関して、ウバイド期に先行する土器新石器時代後半のサマツラ彩文土器の事例が参考になるので、別稿で紹介した内容を再整理してみる (小泉 2010)。

サマツラ期の土器焼成技術の特徴として、中部メソポタミアのテル・アル・ソワン (Tell es-Sawwan) 遺跡 III 層より過度焼成の土器片が大量に出土し、テル・ソングル (Tell Songor) 遺跡 A 号丘でも高温焼成されて緑味を帯びた土器片が報告されている (Yasin 1970: 9; Kamada and Ohtsu 1995: 281)。管見でも、サマツラ土器やチョガ・マミ・トランジショナル (Choga Mami Transitional) 土器に、過度焼成されて緑味を帯びた土器片を認めている¹⁴⁾。サマツラ土器は先行する土器新石器時代の土器よりも高い温度で焼かれていたことはほぼ確かなようである¹⁵⁾。

顕微鏡観察によると、酸化焰焼成されたサマツラ土器にはガラス固化が顕著であることから、850~1050℃の高温で焼かれたとされる (Tite and Maniatis 1975: 123; Simpson 1997a: 39)。他方、サマツラ精製土器 (Samarra Fine Ware) で、緑味を帯びることもある淡青色の器面に暗色系の彩文が定着するには、約 850~1050℃の温度が必要であったという指摘もされている (Nieuwenhuys et al. 2001: 158-160)。

こうした土器焼成技術を読む鍵は土器製作用の素地にある。サマツラ土器の分布するメソポタミア周辺では、ティグリス・ユーフラテス両水系の流域に堆積する石灰質に富む粘土質土壌が土器製作の素地として活用されてきた。

一般的に石灰質粘土は、炭酸カルシウム (CaCO_3) を豊富に含んでいるため、脱炭酸反応により約 750℃以上の温度で酸化カルシウム (CaO) と二酸化炭素 (CO_2) が発生しやすくなる ($\text{CaCO}_3 \rightarrow \text{CaO} + \text{CO}_2$)。およそ 850℃を超えると、酸化カルシウムは粘土中の石英 (SiO_2) と結合して珪酸カルシウム ($n\text{CaO} \cdot \text{SiO}_2$) が生成される ($n\text{CaO} + \text{SiO}_2 \rightarrow n\text{CaO} \cdot \text{SiO}_2$)。この生成過程において、粘土中の粒子が低融点で焼結してガラス固化状態となり、850~1050℃の温度帯で胎土中の構造が安定する。約 1050℃を超えると、それまで安定していた構造が非晶質化して融解すると考えられている (Maniatis and Tite 1981: 68, 75; Simpson 1997b: 54)。

ようするに、メソポタミア周辺の石灰質粘土を素地とする土器は、850~1050℃の温度帯をある程度維持すれば、

胎土における低融点の焼結により、多少雑な操窯でも彩文土器を焼き上げることができる。1050℃を超えると、融解現象が起きて器壁が歪んだり、色調は緑味を帯びるようになる。上記の先行研究では、こうした特徴からサマツラ精製土器の焼成温度が推定されてきている。

ウバイド期になると、広範な地域で共通した焼成技術が展開していく。とくに、ウバイド土器の最大の特徴は多孔質かつ硬質な素地にあり、これは高温焼成により生じた特性である。この基本属性はメソポタミア全域で共通して見られる (Simpson 1997a: 42; 小泉 2006: 3-6)。

これまでの筆者の観察によると、胎土に鉍物粒が認められる場合、白色のものがほとんどである¹⁶⁾。より高温で焼成された土器胎土では、鉍物が焼け切れて素地に空洞が形成されていることがある。胎土中の不整形を呈する空洞は、もともと石灰石の微小な碎片があったためと解釈されている (Orton et al. 1993: Table A.2)。こういった石灰分の焼け切れた素地がウバイド土器に特有の多孔質な印象を与えている。

今回の分析成果は、ウバイド土器の観察所見を裏付けるだけでなく、石灰分の豊富な粘土を素地としているという一般的なウバイド土器の傾向を支持している (Simpson 1997b: 54)。ウバイド土器の焼成は、少しでも油断すると過度焼成となり、形が歪んだり、緑色からオリーブ色へと変化してしまうという危うさをはらんでいる。だが、高温で焼き過ぎてしまうというやや未熟さの残る操窯であっても、薄膜状に彩文を定着させる焼成技術が定型化して、広く普及していた。こうした石灰質粘土を上手く活用した焼成技術は、ウバイド期以降も後期銅石器時代の土器製作に認められる。つまり、サマツラ期の段階で整っていた石灰質粘土を素地とした彩文土器の焼成技術がウバイド期に本格的に展開していき、後続のウルク前期 (後期銅石器時代初頭) 以降もその伝統が継承されていったと考えられる。

石灰質粘土を用いて高温で焼き上げるという技術は共通していながら、サマツラ土器とウバイド土器という2つの土器様式は明らかに異なっている。自身の観察所見では、両者の明瞭な違いは彩文顔料の塗り感に現れている。前者は比較的厚ぼったい印象を与えるものが目立ち、後者はかすれるほどの薄手の仕上がりになっている (cf. Noll et al. 1975: 604)。サマツラ土器とウバイド土器は、ほぼ共通の焼成技術伝統にありながら、彩文顔料の調整と施文方法において決定的に異なっていた。この点こそが土器様式の差として現れていると筆者は推考している。

2) 胎土組成と焼成温度の相関

今回の分析の結果、ウバイド期から後期銅石器時代にかけての土器は、時期によって多様な温度帯で焼成されてい

た状況がある程度捉えることができた。LOI 値の相対的な比較、鉍物組成の比較検証、熱重量・示差熱分析の結果にもとづいて、低温（約 450℃ 以上）、高温（約 900℃ 以上）、両者の中間（約 800~900℃）の 3 つの温度帯を想定することができた。

まず、LOI 値の比較では、予想通り相対的な土器焼成温度を大まかに推定することができた。後期銅石器時代初頭の粗製無文土器 (I12-117-6) の LOI 値は、各日干しレンガの値と近似しており、かなり低温で焼成されたと推測された。それに対して、ウバイド後期の彩文土器 (H12-185-39, I12-121-1) の LOI 値は最も低いことから、かなりの高温で焼成されたと想定された。そして、ハラフ・ウバイド過渡期の彩文土器 (H12-184-3) と後期銅石器時代初頭の灰色磨研土器 (I12-113-4) の LOI 値は中間的な値を示しており、前二者の中間程度と推定された。

つぎに、土器胎土の鉍物組成に関して、原土に含まれていた粘土鉍物以外の輝石類や鉄化合物を比較検討することで、およその温度帯を推察することができた。後期銅石器時代の粗製無文土器には、日干しレンガ（生粘土）に含まれている粘土鉍物のカオリナイト (kaolinite) が同定されており、胎土の芯部は不完全焼成であることも勘案して、およそ 450℃ 以上の低温で焼かれていた可能性が高い (Rice 1987: 90; 高嶋 1996: 39-40)。

ウバイド後期の彩文土器には、焼成によって生成されたゲーレン石 (gehlenite) などの輝石類が認められることから、およそ 900℃ 以上の高温で焼成されていたと考えられる (黒川・川村 1977: 163-164; Maniatis and Tite 1981: 65; Rice 1987: 98)。また、ムライト (mullite) が認められないことから、1000~1100℃ の温度帯を越えていなかったと推定される (Rice 1987: 50, 103-104; 高嶋 1996: 39-40)。

ハラフ・ウバイド過渡期の彩文土器や後期銅石器時代初頭の灰色磨研土器には、ゲーレン石などの輝石類が同定されると同時に、カオリナイトや雲母系鉍物 (muscovite, illite, biotite) なども認められた。よって、これらの土器は、ウバイド彩文土器よりも低くかつ粗製無文土器よりも高い、800~900℃ 程度の温度帯で焼成されていたという大まかな見通しを立てられる。そして、後期銅石器時代の還元焰焼成は、ウバイド彩文土器が酸化焰焼成されていた高温を必要としなかったようだ。

さらに、窯壁クリンカーの分析により、後期銅石器時代の土器焼成窯 (クリンカー A) は、ウバイド終末期の窯 (クリンカー B) に比べて低い温度で焼かれていたことが分かった。一見すると、前者の表面が激しく溶融しており、かなりの高温に曝されていたような印象を与えている (図 8-2, 3)。しかし、鉍物組成の分析によると、クリンカー A のバックグラウンドがクリンカー B のものより低

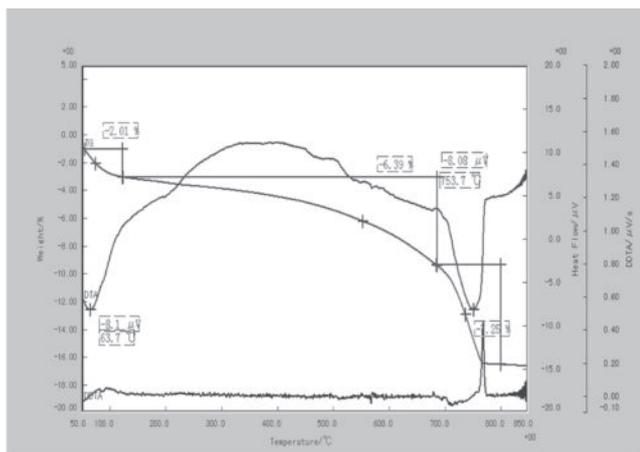
く、白榴石 (leucite) が存在しないことから、前者は相対的に低い温度で焼成されていたことが明らかにされた。白榴石は長時間にわたり約 1100℃ 以上の高温状態で生成される鉍物であることから (浜野 1961: 260)、クリンカー B は相当の高温に長時間曝されていたと想像される。

クリンカー A・B の分析により、窯壁は何回も焼成されても、窯壁を構成している粘土中の鉍物組成は最高温度で焼かれた状態を示す、という当初の予想通りの結果が得られた。そして、後期銅石器時代初頭の灰色磨研土器はウバイド後期の彩文土器よりも低い温度帯で焼成されていた、という先の XRF・XRD の分析成果と符合している点が注目される。灰色磨研土器はある程度の高温で焼かれていたのではないかと見られる向きもあったが、今回の一連の分析により、灰色磨研土器は比較的低温で焼成されていたと考えられる。

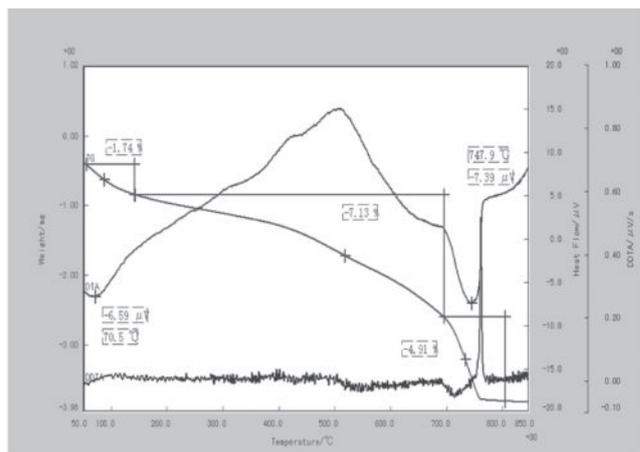
灰色磨研土器は、還元状態で焼成されることで独特の色調を呈している。一般的に、土器胎土に含まれた鉄分が還元状態で灰色に変化することは良く知られている (Rye 1981: 47; Rice 1987: 337)。また、石灰質粘土が還元状態で焼成されると、比較的低温で焼結 (ガラス固化) が進行していき、以降の昇温で結晶構造に大きな変化が見られないとされている (Maniatis and Tite 1981: 65)。つまり、後期銅石器時代初頭の灰色磨研土器は、石灰質粘土を素地として比較的低温の還元焰で焼かれていたと推考される。

くわえて、土器胎土の元素ならびに鉍物の組成分析とあわせて、TG-DTA により土器試料の焼成温度と熱量の関係についても分析を試みた。その結果、LOI 値や XRD の鉍物組成などの分析成果にもとづく相対的な推定温度の関係をより強固に裏付けることとなった (図 20)。ウバイド後期の彩文土器はいずれも発熱・吸熱反応のピークがほとんどない (I12-121-1)、あるいは極めて弱く (H12-185-39)、熱重量の減り方も微少である。よって、これらの試料の焼成温度はかなり高かったために、胎土中の脱炭酸反応が十分に進んでいたことを示している。

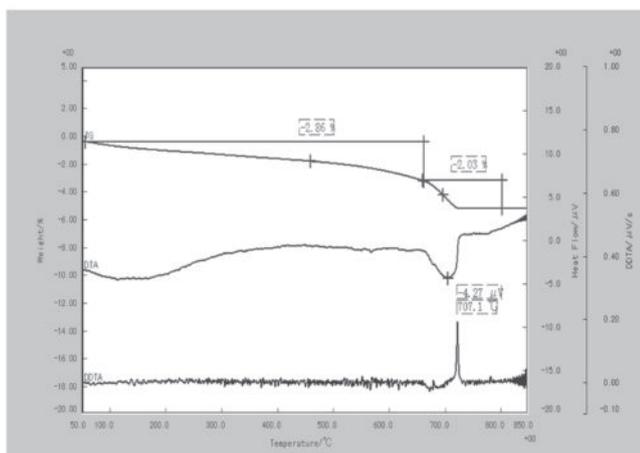
それに対して、後期銅石器時代初頭の粗製無文土器 (I12-117-6) は、発熱・吸熱反応のピークが際立ち、熱重量も著しく減少しており、日干しレンガ (I12-144-0) の反応と極めて近い。これは本試料がかなり低温で焼成されていたために、胎土中の炭酸カルシウムの脱炭酸化が不十分であったことを示している。また、同試料の発熱反応のピークが日干しレンガのそれよりも突出しているのは、胎土に大量のスサが含まれているためと推測される。XRD でカオリナイトや雲母系鉍物が同定されていることから、粗製無文土器の表面は 450℃ を越える温度に曝されていたものの、芯部にまで十分に熱が伝わるだけの時間が与えられなかったと想像される。



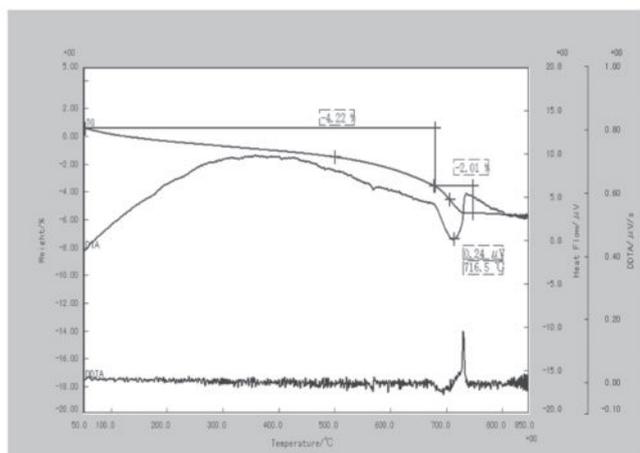
1 日干レンガ (I12-144-0)



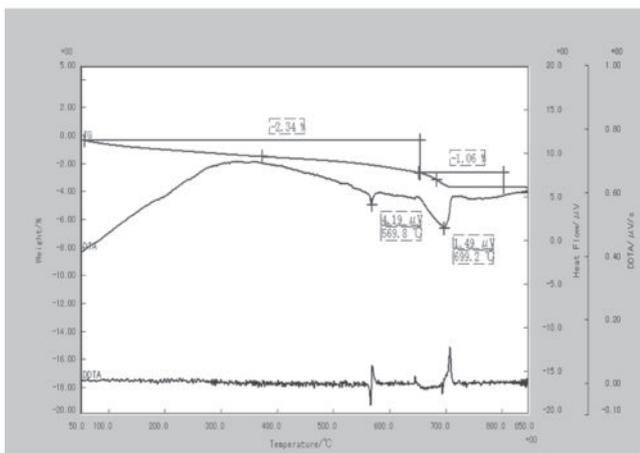
2 粗製無文土器 (I12-117-6)



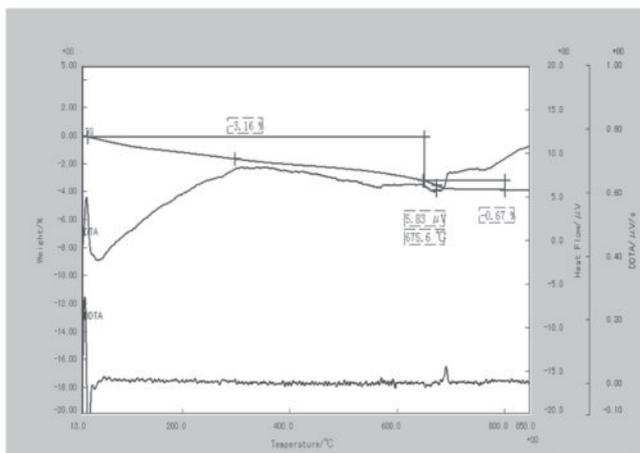
3 過渡期彩文土器 (H12-184-3)



4 灰色磨研土器 (I12-113-4)



5 ウバイド彩文土器 (H12-185-39)



6 ウバイド彩文土器 (I12-121-1)

図20 発熱・吸熱反応グラフ

表4 鉱物組成・熱分析から推定した西アジア都市形成期の土器焼成温度

推定温度	粘土変化	後期銅石器時代初頭 粗製無文土器 I12-117-6	ハラフ・ウバイド過渡期 彩文土器 H12-184-3	後期銅石器時代初頭 灰色磨研土器 I12-113-4	ウバイド後期 彩文土器 H12-185-39	ウバイド後期 彩文土器 I12-121-1	参照文献
450~ 500°C	結晶水揮発： カオリン →メタカオリン	↕	↕	↕	↕	↕	Rice 1987: 90; 高嶋 1996: 39-40
750~ 800°C	脱炭酸： 炭酸カルシウム →生石灰						Rice 1987: 98; ローズ 2000: 46
870~ 900°C	石灰素地高密度化： 生石灰+メタカオリン？ →ゲーレン石/輝石類						Rice 1987: 98; 黒川・川村 1977: 163-164
1000~ 1100°C	ムライト化： メタカオリン →ムライト						Rice 1987: 50; 高嶋 1996: 39-40

(筆者作成)

ハラフ・ウバイド過渡期の彩文土器 (H12-184-3) や後期銅石器時代の灰色磨研土器 (I12-113-4) は、発熱・吸熱反応のピークならびに熱重量の減り方が粗製無文土器に比べてかなり弱く、ウバイド後期の彩文土器にやや近い。土器焼成温度が胎土中の脱炭酸反応の進行する程度であったものの、ウバイド彩文土器ほどの高温には達していなかった様子が見えてくる。つまり、ハラフ・ウバイド過渡期の彩文土器や後期銅石器時代の灰色磨研土器は、粗製無文土器よりも高く、かつウバイド彩文土器に近い中間的な温度帯で焼成されていたと推考される。

以上の XRF・XRD および TG-DTA の分析結果をもとにして、都市形成期の土器に関する作業仮説的な推定焼成温度を一覧にしてみた (表4)。

3) 彩文顔料の成分と配合

彩文顔料の成分について、ウバイド後期の彩文土器と赤色顔料塊 (粉末) の分析の結果、精製された粘土に石灰石 (limestone: CaCO₃) を配合して、鉄 (Fe) および微量のマンガン (Mn)、さらにカリウム (K) も添加していたことが明らかになった。

顔料 C・D の元素分析結果 (重量%) によると、各顔料の粘土の主成分元素である酸化アルミニウム (Al₂O₃) と二酸化ケイ素 (SiO₂) の重量比率は、日干しレンガのそれと大差ない。他方、酸化カルシウム (CaO) や酸化マンガ (MnO) の含有率が日干しレンガのそれに比べてかなり高く、両顔料の二酸化ケイ素に対する酸化カルシウムと酸化マグネシウム (MgO) の和の重量比率も日干しレンガと比べて明らかに高い (表3)。つまり、顔料 C・D は、土器胎土とほぼ同質の粘土を素材として、石灰石を配合していたと推定された。

彩文部の元素マッピング分析によると、ウバイド後期の彩文土器 (I12-149-51) では大量の鉄と微量のマンガ (Mn) が同定された。顔料 C・D の分析成果もあわせると、赤鉄鉱 (hematite: Fe₂O₃) に微量の軟マンガ (pyrolusite:

MnO₂) を意図的に加えたり¹⁷⁾、あるいは酸化マンガ (Mn) の含まれているヤコブス鉱 (jacobsite: MnFe₂O₄) などを用いたと考えられる。さらに、従来から指摘されているように褐鉄鉱 (limonite: FeO(OH)・nH₂O) を用いていた可能性もある (Shepard 1954: 37; Courtois and Velde 1983: 59)。

一般的に、ウバイド彩文土器の彩文色調は黒そのものよりも暗赤褐〜極暗赤褐に集中していることから、こうした鉄化合物が暗赤褐 (2.5YR3/2) の色彩を産み出していたようだ。

先行研究では、ウバイド彩文土器の顔料の準備段階における、素地と同質の粘土に鉄化合物を配合する方法についてはすでに指摘されてきた (Noll et al. 1975: 604-605)。これは鉄化合物の顔料を器面に定着しやすくする工夫であったようだ。また、ウバイド彩文土器の顔料は、赤鉄鉱あるいは磁鉄鉱 (magnetite: Fe₃O₄) などの酸化鉄が主体となっている点も広く認められてきた (Oates et al. 1977: 229; Courtois and Velde 1983: 59-60)。この傾向はサマッラ彩文土器の顔料成分にも共通している (Noll et al. 1975: 604-605)。今回の分析成果は、こうした先行研究によって示されてきた顔料配合の想定とほぼ一致している。

今回の分析によるさらなる成果として、彩文顔料の成分としてカリウムも同定された。上述のウバイド後期彩文土器の分析では、彩文部の元素モル比に関して、カリウム (K) とケイ素 (Si) の比率が 0.22 (3.58/16.18) となっており、素地部の同値 0.08 (1.64/20.78) に比べて明らかに増えている (図17)。他方、顔料 C・D の元素組成においては、酸化カリウム (K₂O) と二酸化ケイ素 (SiO₂) の重量比率はいずれも 0.02 (0.31/19.67, 0.46/21.40) となっており、各日干しレンガの同重量比率 0.05 (2.50/48.21)、0.04 (2.06/52.95)、0.03 (1.94/59.15) とほとんど変わらない (表3)。

これらの元素量の関係は、いったん顔料塊 (粉末) を準備した後で、カリウム成分を添加してから施文していたこ

とを示唆している。おそらくカリウムは植物由来のもので、雑木灰などが顔料に混ぜられたと推定される。近場に自生していた樹木の候補として、タマリスクのような灌木が思い浮かぶ。顔料へのカリウム混入は、サマッラ期の彩文土器よりもむしろハラフ期の彩文土器に通じる。ハラフ彩文土器の一部には、鉄化合物に微量のカリウム成分が含まれている (Steinberg and Kamilli 1984: 200)。

ここで、彩文顔料の配合という点においても、ウバイド彩文土器の伝統を辿ることができる。サマッラ土器のほかに、ウバイド土器のもう一つの源流となるのがハラフ土器である。サマッラ期やウバイド期の彩文土器がかなりの高温で焼成されていたのに対して、ハラフ期の彩文土器はそれほど高くない温度で焼かれていたようだ。管見では、サマッラ彩文土器とウバイド彩文土器の胎土はいずれも多孔質で硬質であるのに対して、ハラフ彩文土器の胎土はきめが細かく比較的軟質である (小泉 2006: 3)。

ハラフ彩文土器の一部には、微量のカリウム (K) が含まれており、光沢を帯びた黒色彩文となっている。カリウム成分の含まれた植物灰が、顔料に融剤として混ぜられていたとされる (Kamilli and Steinberg 1985: 322; Steinberg and Kamilli 1984: 193)。よって、ハラフ彩文土器で開発されていた技術、すなわちそれほど高い温度でなくても顔料が器面に定着しやすい工夫が、ウバイド彩文土器に継承されていった可能性がある。

さらに、顔料 C・D の鉱物組成に関して、どちらにもカオリナイト (kaolinite) やハロイサイト (halloysite) が認められないことから、450℃以上に加熱されていたと推測される。他方、イライト (illite) が同定されたため、粘土中の結晶水が抜け切れる程度の温度までは焼かれていなかったと考えられる。したがって、顔料 C・D は約 500~800℃で煨焼されていたと推定される。

以上を整理すると、今まで酸化鉄などの碎粒を粘土と水で溶いて彩文顔料にしていたと想像されてきたが、今回の分析により、精製粘土に石灰石と酸化鉄を配合して煨焼したものを準備してから各種顔料に用いた、という入念な作業工程を想定するに至った。都市形成期の顔料は、まず精製した粘土に多量の石灰石と適量の赤鉄鉱および微量のマンガ、あるいはヤコブス鉱などを配合した。つぎに、これを約 500~800℃で煨焼して、顔料を使えるように準備しておき、随時微量の植物灰を加えてから塗彩した。

顔料の使い方に関して、ウバイド期においてはおもに褐色系彩文として用い、ウルク併行期 (後期銅石器時代初頭以降) には赤色系淡彩 (ウォッシュ) として活用していった¹⁸⁾。西アジア都市形成期において、手の込んだ顔料準備の技術が一貫しており、時期によって彩文あるいは淡彩として表現の仕方が変化していったと考えられる。ウバイ

ド期からウルク期への文化変遷のなかで、顔料の異なる使い方の基盤には共通した土器製作技術の伝統が通底している点を改めて確認することができた。

おわりに

一般的に、ウバイド彩文土器には黒斑が残されておらず、重ね焼きによって生じる焼成斑が認められることから、燃焼室と焼成室の分離した複室窯で焼成されていたと推定されている。同時に、都市形成期の粗製無文土器の表面には黒斑が残されていることから、開放型の野焼きや燃料を被せた覆い焼き、もしくは単室窯などでの焼成が想定されている。西アジアでは、古くから野焼きやピット状の単室窯が現れ、ハッスーナ期に昇焰式土器焼成窯が登場した。その後、いずれの焼成施設も利用され続けているため、その違いは粗製土器と精製彩文土器など用途別の焼き分けとして解釈されてきた (Moorey 1994: 144; 常木 2004: 221)。

今回のさまざまな理化学的な分析によると、こうした粗製土器と彩文土器の焼き分けという考え方を十分に支持する結果となっている。後期銅石器時代初頭の粗製無文土器は、胎土の芯部が不完全焼成されて、日干しレンガに近い LOI 値、粘土中のカオリナイトや雲母系鉱物の残存、不十分な脱炭酸化といった所見から、野焼きや覆い焼き、あるいは単室窯などでおよそ 450℃以上の低温で焼成されていたと推定される。

他方、ウバイド後期の彩文土器は、黒斑の痕跡がなく、かなり低い LOI 値、粘土中のゲーレン石や輝石の存在、十分な脱炭酸化といった諸点から、昇焰式土器焼成窯で約 900℃以上の高温で焼成されていたと考えられる。そして、ハラフ・ウバイド過渡期の彩文土器や後期銅石器時代の灰色磨研土器は、LOI 値、鉱物組成、脱炭酸反応のいずれにおいても、粗製無文土器よりもむしろウバイド彩文土器に近い中間的な状況を示していることから、昇焰式土器焼成窯において約 800~900℃程度の温度帯で焼成されていたと推考される。

ハラフ・ウバイド過渡期の彩文土器がウバイド後期の彩文土器よりも低い温度帯で焼かれていた背景には、素地と顔料の準備だけでなく、燃料の種類や操窯 (酸化還元タイミングなど) といった、ウバイド期とは異なる焼成技術に起因していたと想像される。後期銅石器時代初頭の灰色磨研土器に関しては、昇焰式土器焼成窯で還元状態を一定時間維持するという特殊な焼成技術を特徴としている。一連の元素・鉱物組成分析によると、灰色磨研土器は比較的低温で焼かれていた可能性が高いことから、焼成の初期段階から各種燃料の使い分けや、焚口・焼成室開口部 (あるいは煙道) などの開閉タイミングにより、独特な灰色の土

器を焼き上げたと推察される。いずれも、実験考古学とあわせて理化学的に検証していくべき課題として残された。

そして、土器の推定焼成温度の精度をより高めるためには、土器胎土中の鉱物に関して輝石類がどの程度の温度帯で生成されていったのかだけでなく、鉄化合物の酸化・還元の推移も詳細に検討していく必要がある。西アジアの遺跡で採取した日干しレンガ試料を細かい温度帯で焼成実験して、それぞれの鉱物組成の違いを比較検証していく作業が今後とも求められる。その際、SEMも活用して結晶構造の変化を観察していくつもりである。

本稿での分析・考察により、西アジア都市形成期の土器焼成技術は先行期のさまざまな土器製作の伝統を諸側面で受け継いできたことが見えてきた。サマッラ期に確立されていた石灰質粘土の素地に鉄化合物の顔料を塗って高温で焼成する技術がウバイド期に継承されていった。ウバイド期では、彩文の塗り感が薄手となり、ハラフ期の彩文土器の特徴であるカリウム成分を融剤とした顔料定着技術も導入された。

筆者は、サマッラ期の石灰質粘土の高温焼成技術と、ハラフ期の比較的低温で顔料を定着させる顔料配合技術が融合した結果、ウバイド期において高温で焼き過ぎてしまうというやや未熟さの残る操窯であっても、薄膜状に彩文を定着させる焼成技術が生まれたと捉えている。ウバイド彩文土器がかつてないほどの広範囲に普及していった背景には、焼成温度の維持に不安定な側面を持ちつつ、効率的なモノづくりに向けた独特の土器焼成技術の進展を看取できる。

西アジアにおける焼成技術は、人々の暮らしの変化に同調しながら推移していった。より快適な暮らしを目指す都市化の過程において、画一的な規格を目指した反復的な生産体制が編み出されていった(小泉 2006)。つまり、ウバイド期において、石灰質粘土の素地としての活用、回転台における容器成形、顔料の入念な準備、昇焰式土器焼成窯による高温焼成といった一連の土器生産工程が定型化されていった。

ただし、この都市形成期前半の土器生産は世帯単位を基本としていたため、専門工人の熟練度には達していない(小泉 2000)。未熟な操窯ゆえに、ウバイド期には高温で焼き過ぎてしまった土器が目立つのである。やがて、ウルク期の本格的な都市化の段階になると、独立した専業工房において土器焼成技術が洗練されて、安定した操窯のもとで比較的低温により還元焰焼成する域にまで達する。都市化の進行、すなわちより快適な暮らしへの指向性が、定型化された反復的なモノづくりをより効率的なモノづくりへと導いていったのであろう。その先に、都市誕生と共に土器の大量生産体制が顕在化してくる。

謝辞

本稿は、平成 22～24 年度科学研究費補助金・基盤研究 (C)「西アジア都市形成期の土器製作における顔料定着と還元焰焼成」(課題番号 22520772) による研究成果の一部である。茨城県工業技術センター窯業指導所の鴨志田武、吉田博和、久野亘央、ならびに同センター本所の小島均の各氏には、サラット・テペ出土試料の分析試験などで多大なご協力をいただき、推敲段階で有益なご教示を頂戴したことを深く感謝申し上げます。(株)コペルコ科研の増田薫氏と東京理科大学の五月女祐亮氏には、理化学的分析手法についてさまざまなご教示をいただいたことを拝謝申し上げます。ケンブリッジ大学マクドナルド研究所の J. オーツ氏からは、チョガ・マミ・トランジショナル土器の観察所見の公表に関して許可を頂戴したのでお礼申し上げます。

註

- 1) 基盤研究 (C)「西アジアの都市化における土器製作技術の多角的研究」(平成 19～21 年度; 研究代表者: 小泉龍人) により、早稲田大学本庄キャンパス(埼玉県本庄市)において 2007 年に小型土器焼成窯を築窯して、焼成実験を継続してきた。同窯の構造は、燃料を投入する燃焼室(下室)を半地下式にして広い空間を確保して、作品を詰める焼成室(上室)は最小限の空間に圧縮している。一連の実験で、彩文定着には昇焰式土器焼成窯がきわめて有効であることを確かめることができた。
- 2) 基盤研究 (C)「西アジア都市形成期の土器製作における顔料定着と還元焰焼成」(平成 22～24 年度; 研究代表者: 小泉龍人) により、小型土器焼成窯で顔料定着実験を継続するとともに、土器試料の理化学的分析も試みてきた。
- 3) 本稿は、日本西アジア考古学会第 17 回総会・大会(筑波大学、2012 年 6 月)および同 18 回総会・大会(東京大学、2013 年 6 月)にて口頭発表した内容をもとにして執筆した。
- 4) クリンカーとは、過度焼成されて溶融状態になったために形状や色調が著しく変わってしまった窯壁や土器片などを指す。
- 5) ヨーロッパ(ソリュートレ文化)では石器の剥離に加熱処理が採用され、350～400℃でゆっくりと加熱されたらしい(Kooyman 2001: 67, 75)。なお、南アフリカでは、「シルクリート」(silcrete)と呼ばれる良質な石材を剥離するときの加熱処理技術が、すでに 164,000 年前頃に確立されていたとされる(Brown et al. 2009: 860-861)。
- 6) 西アジア最古級の例としては、シリアのムレイベト(Mureybet)遺跡で、先土器新石器時代初頭の IIIA 層から焼成女性土偶が見つまっているが、年代はおおよそ 11,500 年前と遅れる(Cauvin 2000: 25)。
- 7) 土製投弾やトークンなども意図的に焼かれるようになる。
- 8) かつて筆者は、東京大学イラク・イラン調査団より許可をいただき、テル・サラサート(Telul eth-Thalathat) II のウバイド土器を電気窯で試験的に再焼成した。その際、800℃で器面・色調はまったく変化せず、1050℃で土器片全体がチョコレート状に溶けてしまった。1100(1050)℃近くの高温焼成により、粘土中の炭酸カルシウムが融解したという想定に立ち、ウバイド土器は約 800～900℃で焼成されていたと推測した(小泉 2006: 11)。筆者の再焼成実験にもとづくウバイド彩文土器の焼成温度の推定値は、先行研究で示された温度(1050～1150/1200℃)よりも低く、むしろサマッラ彩文土器の焼成推定温度(850～1050℃)に近い。
- 9) 素地に細粒砂などが意図的に混ぜられていた場合、石英や長石などの鉱物組成において日干しレンガのそれとは異なる結果を

- 示すことになる。しかし、後述するように、比較的低温で焼成されたと推定される粗製無文土器 (I12-117-6) の鉱物組成を見る限りでは、石英や長石などは日干しレンガ (I12-144-0) と顕著な違いを見出すことができなかった。よって、素地は原土を主体として準備されており、たまにスサなどの植物質の混和材が加えられていたと推定される。
- 10) 先の註にて記したように、スサ以外には素地に細粒砂などが意図的に混ぜられていた可能性がきわめて低いため、今回の分析では混和材としての鉱物粒をとくに想定していない。
 - 11) ただし、壁体 55/D の日干しレンガ (H12-214-A02) に関しては、原土に細粒砂が混ぜられていたか、もしくは他の日干しレンガと異なる原土が用いられた可能性も残されている。指導所にて温度帯を変えた焼成実験を実施したところ、壁体 52/D の日干しレンガ (I12-185-A02) とまったく異なる反応が確かめられた。実験結果については別稿にて述べる予定。
 - 12) 日本の代表的な陶土 (笠間など) と比較して、カルシウムが大量に含まれ、マグネシウムも目立つことが確認された。
 - 13) 壁体 55/D の日干しレンガ (H12-214-A02) の LOI 値は 8.72 とやや低めであり、上記の註にあるように焼成実験の成果と併せて要検討事項である。
 - 14) ケンブリッジ大学マクドナルド研究所の J. オーツ (Oates) 氏のご厚意で、2006 年筆者はチョガ・マミ・トランジッショナル土器などを実見する機会を得た (小泉 2006: 11-12)。
 - 15) さらに遡って、土器新石器時代前半の土器はより低温で焼かれていたという見解がある。レヴァントのイエリコ (Jericho) 遺跡で出土した土器新石器時代前半 (ハッサーナ併行期) の土器片断面を電子走査顕微鏡で観察したところ、いずれも高温焼成によるガラス固化 (vitrification) 現象が認められなかった。これらの土器は約 800°C 未満の比較的低温で酸化焰焼成されていたという (Maniatis and Tite 1981: 72-74)。
 - 16) 北メソポタミア周辺のウバイド土器には白色鉱物粒が目立ち、有色の細粒砂はほとんど見られない。
 - 17) 鉄系の顔料定着にはさまざまな工夫が必要であるという点は、古代西アジアに限らず広く認められる。現代日本の陶芸でも、酸化第二鉄に微量の二酸化マンガンを混ぜたり、動物質タンパク質の膠を意図的に添加して、器面への定着度を高めることが知られている (指導所の久野亘央氏からのご教示による)。
 - 18) 時期によって酸化鉄の含有率が異なっている点も今後の検討課題である。
- 引用・参考文献
- Brown, K. S. et al. 2009 Fire as An Engineering Tool of Early Modern Humans. *Science* 325/14: 859-862.
- Cauvin, J. (translated by T. Watkins) 2000 *The Birth of the Gods and the Origins of Agriculture*. Cambridge, Cambridge University Press.
- Courtois, L. and B. Velde 1983 Microscopic and Microprobe Analysis of Tell el 'Oueili Ceramics (Ubaid Phases: 1 and 4). *Sumer* 39: 56-61.
- Courtois, L. and B. Velde 1985/86 Technical Studies of Ubaid 0-3 Pottery Samples from Tell el 'Oueili. *Sumer* 44: 126-134.
- Delcroix, G. and J. -L. Huot 1972 Les Fours Dits «De Potier» Dans L'Orient Ancien. *Syria* 49: 35-95.
- Freestone, I. and D. Gaimster (eds.) 1997 *Pottery in the Making: World Ceramic Traditions*. London, British Museum Press.
- Gamble, C. 2007 *Origins and Revolutions: Human Identity in Earliest Prehistory*. Cambridge, Cambridge University Press.
- Gibson, McG. (ed.) 1990 *Prehistoric Pottery for the Archaeologist*. Leicester, Leicester University Press.
- Goren-Inbar, N. et al. 2004 Evidence of Hominin Control of Fire at Gesher Benot Ya'qov, Israel. *Science* 304: 725-727.
- Kamada, H. and T. Ohtsu 1995 Fourth Report on the Excavations at Songor A: Samarra Period. *Al-Rāfidān* 16: 275-366.
- Kamilli, D. C. and A. Steinberg 1985 New Approaches to Mineral Analysis of Ancient Ceramic. In G. Jr. Rapp and J. A. Gifford (eds.), *Archaeological Geology*, 313-330. New Haven and London, Yale University Press.
- Kayani, P. I. 1997 Formative Pyrotechnology in Northern Mesopotamia. *Paléorient* 22/2: 13-141.
- Kooyman, B. P. 2001 *Understanding Stone Tools and Archaeological Sites*. University of New Mexico Press.
- Maniatis, Y., A. Simopoulos, A. Kostikas and V. Perdikatsis 1983 Effect of Reducing Atmosphere on Minerals and Iron Oxides Developed in Fired Clays: The Role of Ca. *Journal of the American Ceramic Society* 66/11: 773-781.
- Maniatis, Y. and M. S. Tite 1981 Technological Examination of Neolithic-Bronze Age Pottery from Central and Southeast Europe and from the Near East. *Journal of Archaeological Science* 8: 59-76.
- Matson, F. R. 1971 A Study of Temperatures Used in Firing Ancient Mesopotamian Pottery. In R. H. Brill (ed.), *Science and Archaeology*, 65-79. Cambridge, Massachusetts, The Massachusetts Institute of Technology.
- Moorey, P. R. S. 1994 *Ancient Mesopotamian Materials and Industries: The Archaeological Evidence*. Oxford, Clarendon Press.
- Nieuwenhuys, O., L. Jacobs, B. Van As, T. Broekmans and A. M. Adriaens 2001 Making Samarra Fine Ware-Technological Observations on Ceramics from Tell Baghouz (Syria). *Paléorient* 27/1: 147-165.
- Noll, W., R. Holm and L. Born 1975 Painting of Ancient Ceramics. *Angewandte Chemie International Edition* 14/9: 602-613.
- Oates, J., T. E. Davidson, D. Kamilli and H. McKerrell 1977 Seafaring Merchants of Ur? *Antiquity* 51: 221-234.
- Ökse, A.T., A. Görmüş, T. Koizumi, D. Yaşın Meier, N. Soyukaya 2012 Ihsu Barajı-Salat Tepe 2010 Kazısı. *XXXIII. Kazi Sonuçları Toplantısı (33rd International Symposium of Excavations, Surveys and Archaeometry)*. Kültür Varlıkları ve Müzeler Genel Müdürlüğü Yayın No: 155-1, 173-187. Ankara, Republic of Turkey, Ministry of Culture and Tourism, General Directorate for Cultural Heritage and Museums.
- Ökse, A.T., A. Görmüş, T. Koizumi, D. Yaşın Meier, N. Soyukaya 2013 Ihsu Barajı-Salat Tepe 2011 Kazısı. *XXXIV. Kazi Sonuçları Toplantısı (34th International Symposium of Excavations, Surveys and Archaeometry)*. Kültür Varlıkları ve Müzeler Genel Müdürlüğü Yayın No: 159-1, 365-376. Ankara, Republic of Turkey, Ministry of Culture and Tourism, General Directorate for Cultural Heritage and Museums.
- Orton, C., P. Tyers and A. Vince (eds.) 1993 *Pottery in Archaeology*. Cambridge Manuals in Archaeology. Cambridge, Cambridge University Press.
- Rice, P. M. 1987 *Pottery Analysis: A Sourcebook*. Chicago and London, University of Chicago Press.
- Rye, O. S. 1981 *Pottery Technology: Principles and Reconstruction*. Manuals on Archaeology 4. Washington, Taraxacum.
- Schmandt-Besserat, D. 1974 The Use of Clay before Pottery in the Zagros. *Expedition* 16/2: 11-17.
- Shepard, A. O. 1954 *Ceramics for the Archaeologist*. Washington, D. C., Carnegie Institution of Washington.
- Simpson, St J. 1997a Prehistoric Ceramics in Mesopotamia. In Freestone and

- Gaimster (eds.), 38-43.
- Simpson, St J. 1997b Early Urban Ceramic Industries in Mesopotamia. In Freestone and Gaimster (eds.), 50-55.
- Steinberg, A. and D. C. Kamilli 1984 Paint and Paste Studies of Selected Halaf Sherds from Mesopotamia. In P. M. Rice (ed.), *Pots and Pottery: Current Approaches in Ceramic Archaeology*, 187-208. Los Angeles, University of California.
- Streily, H. A. 2000 Early pottery kilns in the Middle East. *Paléorient* 26/2: 69 - 81.
- Thuesen, I. and K. Heydorn 1990 Instrumental Neutron Activation Analysis of ED I-II Pottery from the Diyala Region. In Gibson (ed.), 65-89.
- Tite, M. S. and Y. Maniatis 1975 Examination of Ancient Pottery Using the Scanning Electron Microscope. *Nature* 257: 122-123.
- Van As, A. and L. Jacobs 1989 Technological Aspects of the Prehistoric Pottery. In P. M. M. G Akkermans (ed.), *Excavations at Tell Sabi Abyad: Prehistoric Investigations in the Balikh Valley, Northern Syria*. BAR International Series 468, 215-232. Oxford, BAR.
- Vandiver, P. B., O. Soffer, B. Klima, and J. Svoboda 1989 The Origins of Ceramic Technology at Dolni Věstonce, Czechoslovakia. *Science* 246: 1002-1008.
- Yasin, W. B. A. 1970 Excavations at Tell es-Sawwan, 1969. *Sumer* 26: 3-20.
- 井 博幸 1995「古代メソポタミアの土器工房」大川清博士古希記念会編『王朝の考古学』3-30頁 雄山閣。
- 黒川利一・川村資三 1977「石灰磁器に関する研究（第1報）—石灰質素地の焼結過程について—」『名古屋工業技術試験所報告』26巻5号 157-165頁。
- 小泉龍人 2000「古代メソポタミアの土器生産—製作技術と工房立地から見た専門化—」『西アジア考古学』1号 11-31頁。
- 小泉龍人 2006「古代西アジアの土器製作技術—文化の拡散経路と都市化—」『国士館考古学』2号 1-22頁。
- 小泉龍人 2009「ウバイド彩文土器の吸着実験—操窯と昇温について—」『日本西アジア考古学会第14回総会・大会（広島大学）要旨集』26-31頁 日本西アジア考古学会。
- 小泉龍人 2010「西アジアの火—土器焼成窯と温度—」菊池徹夫編『比較考古学の新天地』993-1002頁 同成社。
- 小泉龍人 2012「メソポタミア都市形成期の彩文土器—ウバイド土器の理化学的分析と焼成実験—」『日本西アジア考古学会第17回総会・大会要旨集』41-44頁 日本西アジア考古学会。
- 小泉龍人 2013「彩文土器の焼成実験—西アジア都市形成期の土器製作技術—」岡内三真編『技術と交流の考古学』121-132頁 同成社。
- 小泉龍人 2013「銅石器時代の土器復原研究—窯壁と顔料の理化学的分析—」『日本西アジア考古学会第18回総会・大会要旨集』37-40頁 日本西アジア考古学会。
- 小泉龍人・T. オクセ・A. ギョルムシュ 2013「ティグリス川上流域の都市化を探る—トルコ、サラット・テペ遺跡発掘調査（2010～2012年）—」『平成24年度 考古学が語る古代オリエント（第20回西アジア発掘調査報告会報告集）』60-65頁 日本西アジア考古学会。
- 小泉龍人・齋藤正憲 2009「古代オリエントの土器製作復原—土器焼成窯の構築と彩文土器の焼成実験—」（日本オリエント学会第50回大会発表要旨）『オリエント』51巻2号 159頁。
- 小泉龍人・齋藤正憲 2012「オリエント都市形成期の土器製作復原—小型土器焼成窯の改良と牛糞藁の燃料化—」（日本オリエント学会第54回大会要旨）『オリエント』55巻2号 114頁。
- 高嶋廣夫 1996『実践 陶磁器の科学—焼き物の未来のために—』内田老鶴圃。
- 常木 晃 1997「西アジア先史時代の土器焼成窯とその生産力—考古資料と民族資料から—」『東海大学校地内遺跡調査団報告—1995年度—』7 169-185頁。
- 常木 晃 2004『ハラフ文化の研究—西アジア先史時代への新視角—』同成社。
- 常木 晃 2005「シリアの民族誌から見た土器生産の専門化」佐々木幹雄・齋藤正憲編『世界の土器づくり』61-82頁 同成社。
- 浜野健也 1961「カリ長石の熔融と白榴石問題—陶磁器素地の微構造に関する研究（第12報）—」『窯業協会誌』69巻788号 257-261頁。
- ローズ, D. (南雲龍・南雲龍比古訳) 2000『陶芸の粘土釉薬』日貿出版社。
- 早稲田大学土器づくり研究会 1994「多目的実験窯の構築および焼成実験報告」『史観』131冊 77-93頁。

小泉 龍人

国士館大学イラク古代文化研究所

Tatsundo KOIZUMI

The Institute for Cultural Studies of Ancient Iraq

Kokushikan University