

## 4. アブ・シール南丘陵遺跡出土の第 18 王朝中期の

### ファイアンス製タイルについての化学分析調査

#### (1) はじめに

##### ①研究背景

当研究室では、考古資料の非破壊オンサイト分析を目的とした装置の開発と応用を続けている。筆者らは 2001 年より不定期にアブ・シール南丘陵遺跡での発掘調査に参加し、可搬型分析装置を持ち込んで、ガラス、ファイアンス、顔料など様々な出土資料の非破壊化学分析と考古化学的特性化を行ってきた (Abe et al. 2012, 2009; 阿部他 2010, 2009; 中井他 2008, 2007, 2006; 真田他 2003; 前尾他 2003)。また最近では同じく早稲田大学エジプト学研究所が発掘調査を行っているダハシュール北遺跡の出土資料も分析対象としており、出土資料の非破壊化学分析を通じて、メンフィス地域内に位置するアブ・シール南丘陵遺跡とダハシュール北遺跡という 2 遺跡の関連性を科学的視点から検証している (Abe et al. 2012)。

今回の化学分析調査では、蛍光 X 線分析装置と顕微ラマン分光分析装置という 2 種類の可搬型分析装置をエジプトへと持ち込み、出土資料の非破壊オンサイト分析を行った。調査期間は 2012 年 8 月 28 日～9 月 13 日まで、休日を除く 15 日間で、過去の調査と同様にエジプト考古庁管轄下の遺物収蔵庫に付属する研究施設内にて行われた。この収蔵庫にはアブ・シール南丘陵遺跡からの出土資料のほかにダハシュール北遺跡からの出土資料も所蔵されており、今回の分析調査ではダハシュール北遺跡からの出土資料についても分析を行った。この度の報告では、アブ・シール南丘陵遺跡出土のファイアンス製品に関する分析結果を取り扱う。

##### ②古代エジプトにおける銅着色剤の利用

これまでの研究では、銅 (Cu) による着色が施された古代エジプトの水色<sup>1)</sup>のファイアンス製品について、蛍光 X 線分析による組成的特性化を行ってきた。特に Cu 着色剤の原料に由来する不純物に着目しており、中でも青銅に含まれる元素であるスズ (Sn) と鉛 (Pb) が特性化に有用であることを明らかとしている (阿部他 2010, 2009; 中井他 2008)。これは、新王国時代第 18 王朝以降のファイアンス製品において、Cu 着色剤の原料として青銅の製錬・製作過程で生じた副産物や青銅の錆が再利用されていたことに起因する (Kaczmarczyk and Hedges 1983)。そのため古代エジプトにおける水色ファイアンスの組成は、青銅の主成分である Cu と Sn の割合を見ることで、青銅の再利用が行われるようになった第 18 王朝以降の時代の資料と、青銅ではない Cu 原料が利用されていた古い時代の資料とに大別できる。さらに青銅を再利用したファイアンスにおいては、青銅の金属組成がそのままファイアンスに反映されるため、Sn 以外に青銅に添加された成分 (Pb など) の量に着目することで、より細かに時代の特性化が可能となる。これまでの先行研究 (阿部他 2010, 2009; 中井他 2008) によって、筆者らはアブ・シール南丘陵遺跡出土資料を含む古代エジプトの水色ファイアンス製品の組成を 3 つのグループに分類している。グループ 1 は青銅の再利用が行われていなかった初期王朝時代～中王国時代のファイアンス製品、グループ 2 は青銅の再利用が開始された新王国時代のファイアンス製品、グループ 3 は青銅に Pb が多く含まれるようになった末期王朝時代以降のファイアンス製品である。このように、水色ファイアンスの化学組成分析から、その Cu 着色剤の原料の違い、さらには Cu 原料として用いられた青銅の組成の違いを明らかにすることが可能となる。

Cu 原料としての青銅の再利用は、ファイアンス以外にも古代エジプトのガラス (Shortland and Eremin 2006; Tite et al. 2007) や Cu を含む合成青色顔料「エジプシャン・ブルー」(Hatton et al. 2008) においても見られる。

これは同時代のメソポタミアや地中海地域には見られないエジプト独自の手法であった。では青銅を再利用するという手法は、第18王朝のいつの時点で、どういった形で生み出されたものなのであろうか。それは第18王朝エジプトのガラスとファイアンスを対象とした化学組成分析の先行研究から読み解くことかできる。すなわち、化学組成分析によってCu着色製品にSnが含まれているか否かによって、青銅の再利用がなされたか否かを推定できる。

メソポタミアからエジプトへとガラス生産技術が伝えられたのは第18王朝中期のトトメス3世（在位：前1479～1424）期のことであり（Beck 1934; Oppenheim 1973; Nicholson 1993, 2006; Shortland 2001）、第18王朝後期にはマルカタ（前14世紀前半）<sup>2)</sup> およびアマルナ（前14世紀中期）<sup>3)</sup> に大規模なガラス工房が置かれ、ガラスの大量生産が行われた。第18王朝のガラスに関しては非常に多くの化学的研究がなされている。A.J. ショートランド（Shortland）とK. エレミン（Eremin）による研究では（Shortland and Eremin 2006）、マルカタおよびアマルナより出土したCu着色ガラスについて、Cu原料として青銅が利用されていたことが明らかとなっている。ではマルカタでの大規模なガラス生産が行われるより前、トトメス3世、アメンヘテプ2世（在位：前1424～1398）およびトトメス4世（在位：前1398～1388）治世の第18王朝中期（紀元前15世紀～14世紀初頭）にエジプトで作られた、いわゆる「初期ガラス（early glass）」についてはどうだったかという、現時点でCu原料に青銅を再利用していた痕跡は見つかっていない。先述のショートランドとエレミン（Shortland and Eremin 2006）はトトメス3世およびアメンヘテプ2世期に年代づけられる初期ガラスについても化学分析を行っているが、5点のCu着色ガラスの分析からは、この時代にガラスのCu原料として青銅の再利用が行われていたことを示す結果は得られていない。同様の結果はリリキストとブリル（Lilyquist and Brill 1993）によっても得られており、化学組成分析を行ったトトメス3世期5点、アメンヘテプ2世期3点、トトメス4世期1点のCu着色初期ガラスの中で、Snが検出されたものは1点も存在しなかった。このように、マルカタで大規模なガラス生産が開始されるより前に作られた初期ガラスにおいては、青銅を再利用したという明確な化学的根拠が示されていないのが現状である。しかしながら、この問題の背景には、今日に残されている第18王朝エジプトのガラス資料の大部分がマルカタやアマルナで作られたと思われる大量生産品であり、そもそも初期ガラスに分類できる資料の絶対数が少ないという大きな原因がある。その中で化学分析に供された資料は上述したようなごく一部であるため、エジプトにおけるガラス生産初期の状況は不明確な部分が多い。またガラスの水色～青色着色に用いられるCu着色剤は濃度にして1 wt%（weight %：質量パーセント）以下であることが多く、その原料不純物として含まれるSnの量を検出するには、試料の破壊を伴う高感度な組成分析法が必要となる。上述した初期ガラスの化学組成に関する先行研究についても、用いられた分析法（WDS：波長分散型X線分析）のSnの検出下限が0.01 wt%程度であることから、ごく微量にCu着色剤が添加されている資料の場合には、Snを検出できない場合がある。

続いてファイアンスに関してだが、古代ガラスに比べるとファイアンスを対象とした化学分析の研究例は少ない。その中でも特に重要なのがA. カツマルチック（Kaczmarczyk）とR.E.M. ヘッジス（Hedges）（Kaczmarczyk and Hedges 1983）による古代エジプトのファイアンス製品に関する総合的な研究である。この研究の中で彼らは膨大な数のファイアンス製品の組成分析を行っており、その分析結果に基づいて資料の分類や特性化が行われている。Cu着色ファイアンスはCu着色ガラスに比べて着色剤の添加量が多く、濃度にして1 wt%を超える量のCuを含む場合が多い。そのためCu原料由来のSnについても、高感度な破壊分析法を用いずとも十分に検出することが可能である。カツマルチックとヘッジス（Kaczmarczyk and Hedges 1983）による第18王朝のCu着色ファイアンスの化学分析の結果、トトメス3世期よりも前に年代づけられる第18王朝前期の資料からも確かにSnが検出された。この結果は、トトメス3世期のエジプトにガラス生産技術が伝えられるより前からファイアンス生産において青銅の再利用がなされていたことを示しており、青銅の再利用の開始はガラ

ス生産開始と直接的には無関係ということを示している。むしろファイアンス生産において行われていた青銅の再利用という技法が、メソポタミアから伝えられたガラス生産の工程に組み込まれたという方が正確である。

ではこの青銅の再利用という手法は、当時エジプトのファイアンス生産においてどの程度普及していたのだろうか。先述のカツマルチックとヘッジス (Kaczmarczyk and Hedges 1983) による先述の化学分析から、普及の程度とその推移を追ってみよう。まずトトメス3世期までの第18王朝のCu着色ファイアンスのうち、有意な量のSnが検出された資料<sup>4)</sup>は、トトメス3世期より前の時代では15点中7点、トトメス3世期に年代づけられる資料では25点中10点であり、全体のおよそ半数または半数以下である。つまり第18王朝前期からガラス生産技術が移入されたトトメス3世期にかけては、ファイアンスの生産工程における青銅の再利用が完全には普及していたとは考えづらい。では国内ガラス生産が開始された後のアメンヘテプ2世およびトトメス4世期のCu着色ファイアンスについてはどうかというと、カツマルチックとヘッジス (Kaczmarczyk and Hedges 1983)の研究中ではわずか5点しか分析されていないが、その5点すべてが有意な量のSnを含んでいた。さらに、続くアメンヘテプ3世期の資料<sup>5)</sup>を見ると、分析された17点のCu着色ファイアンスのうち、実に16点もの資料からSnが検出された。

ここで示した各時代の資料は特定の遺跡に限定したのではなく、また様式や性質も区別せずに、単に「Cu着色ファイアンス」という広い括りで扱っている。当時のファイアンスの工房は一つではなく、またタイルか装飾品かといった用途の違い、様式的な違いによっても生産地や流通に差が生じうるため、このように広い括りで資料を議論することは、望ましいことではない。しかしここでの議論は、ファイアンスのCu着色剤の原料として青銅の再利用が行われていたか否かというきわめて単純な議論であるため、出土遺跡や資料の種類を限定せずとも、その全体的な傾向を巨視的に捉える分には問題ないものとする。そこでこれらのカツマルチックとヘッジス (Kaczmarczyk and Hedges 1983) による分析結果から、第18王朝エジプトのCu着色ファイアンスにおける青銅の再利用に関する推移をまとめると以下ようになる。まずエジプトでガラス生産が行われるより前、第18王朝前期の時点から、第2中間期には見られなかったCu着色剤原料としての青銅の利用が開始された。しかしその手法は必ずしも普遍的に利用されていたものではなく、当時エジプトに存在した一部の工房または製作集団で行われていたものと考えられる。さらにエジプト国内でガラス生産が開始されたトトメス3世期においても、青銅の再利用は必ずしもメジャーな手法ではなかったようだ。しかしながらアメンヘテプ2世およびトトメス4世期から、青銅の再利用が急速に普及し、マルカタでガラスの大量生産が開始されたアメンヘテプ3世期には、青銅の再利用はファイアンスのみならずガラスの生産工程においても普及した。このように先行研究を見る限りでは、トトメス3世期の末かアメンヘテプ2世ないしトトメス4世期にCu着色ファイアンス生産に何らかの大きな技術的変化が生じたように見受けられるが、一方でこの時代に年代づけられる資料の分析点数が少なく、その実態を正しく把握できていない可能性も考えられる。

### ③研究の目的

以上のような背景から本研究では、アブ・シール南丘陵遺跡より出土した水色ファイアンス製品のうち、先行研究の少ないアメンヘテプ2世およびトトメス4世期の資料を集中的に分析し、Cu着色剤として青銅の再利用が行われているか否かを検証した。すなわち本研究の目的は、古代エジプトのファイアンス生産において青銅をCu着色剤原料として再利用するという手法がどのように普及していったのかを明らかとし、エジプトの国内ガラス生産との関連性を考察することである。

## (2) 分析装置および調査対象

### ①分析装置

この度の分析調査では、可搬型蛍光 X 線分析装置と可搬型顕微ラマン分光分析装置という 2 種類の分析装置をエジプトに持ち込んでいるが、アブ・シール南丘陵遺跡より出土した資料の分析においては、顕微ラマン分光分析装置は使用していない。よってここでは、蛍光 X 線分析装置の詳細についてのみ説明する。顕微ラマン分光分析装置の詳細に関しては過去の報告 (阿部他 2009) や著者らの先行研究 (阿部他 2012) を参照されたい。

可搬型蛍光 X 線分析装置 OURSTEX 100FA-IV (Abe et al. 2012; 菊川他 2009) は、当研究室と OURSTEX (株) との共同開発品である。全重量約 15kg の装置パーツを分割することで、国内外のあらゆる場所に持ち込むことが可能である。X 線発生装置としてパラジウム (Pd) ターゲットの X 線管球を使用しており、管球から発生した X 線を Pd 製コリメータによって直径約 2mm に集光している。検出器にはシリコンドリフト検出器 (SDD) を備えており、検出器の動作温度は汎用型ではペルチェ冷却素子により -28℃、軽元素対応型ではペルチェ冷却素子と外付けの水冷ユニットの組み合わせにより -35℃ に設定してある。本装置の測定ヘッド部分は円柱型の真空チャンバに接続されており、チャンバ内を小型ポンプにより真空に引くことが可能となっている。さらに SDD 表面に取り付けられたベリリウム (Be) 製の窓材をプラスチック製のものに変更したことで、ナトリウム (Na) やマグネシウム (Mg) といったガラスの組成的特性化に有用な軽元素の検出を可能としている。測定ヘッド部分には CMOS カメラと白色 LED 照明が内蔵されており、操作用コンピュータ上で分析箇所を観察が可能となっている。本装置の最大の特徴は、励起 X 線の単色化機構である。本装置は湾曲結晶グラフィット製のモノクロメータを内蔵しており、X 線管球より発生した Pb の Ko 線のみを選択的に試料に照射・励起することが可能である。このモノクロメータを使用した分析モード (単色 X 線モード) で得られる蛍光 X 線スペクトルでは、本来 X 線管球より発生する白色 X 線に由来するバックグラウンドが抑えられ、Cu や Pb といった重元素を 10 ppm オーダーまで検出することが可能となる。こうした X 線の単色化機構は、同種の可搬型装置では他に類がない。一方、モノクロメータを使用しない場合の分析モード (白色 X 線モード) では、ケイ素 (Si) やカルシウム (Ca) といった軽元素や、単色 X 線モードでは励起が困難な Sn やアンチモン (Sb) などの重元素の分析に用いられる。検出感度は元素により異なるものの、白色 X 線モードでは幅広い種類の元素について 100 ppm オーダーまでの検出が可能である。この単色 X 線モードと白色 X 線モードという 2 種類の分析モードの組み合わせによって、本研究で使用した蛍光 X 線分析装置は、同種の可搬型装置と比べて世界最高レベルの分析性能を有している。

測定条件等は、電圧を 40 kV で固定し、管電流を白色 X 線モードでは 0.25 mA、単色 X 線モードでは 1.00 mA に設定した<sup>6)</sup>。測定時間は両モードでそれぞれ 200 秒 (live time) とし、全ての点について両モードの測定を行った。得られた蛍光 X 線スペクトルについて、解析ソフト WinQXAS (IAEA 2000) を用いた各蛍光 X 線ピークの積分強度の算出を行い、定量化の際に用いた。定量化には濃度既知の標準ガラス試料 (全 20 種) により作成した検量線法を用い、全 20 元素の定量値を酸化物濃度 (wt%) として計算した。なおファイアンスの主成分であるシリカ (二酸化ケイ素: SiO<sub>2</sub>) は、定量値が得られたその他の成分の合計を 100 wt% から引いた残差として計算してある。なお定量化の詳細については先行研究 (Abe et al. 2012) を参照のこと。

### ②資料調査

本研究で分析対象としたのは、アメンヘテプ 2 世およびトトメス 4 世期に年代づけられる水色ファイアンス製品 40 点である。これらは全て丘陵頂部に位置する矩形の日乾燥瓦遺構の周辺より発見されたものである。遺構を構築する日乾燥瓦の中にはアメンヘテプ 2 世とトトメス 4 世の王名が押されたものが存在し、またトト

メス4世の王名を刻んだ石灰岩製ステラも出土していることから、この遺構はアメンヘテプ2世およびトトメス4世に関わる建造物であると考えられている（早稲田大学エジプト学研究所編 2007）。

分析したファイアンススタイルはいずれも胎部分が赤みを帯びており、釉部分は濃淡の差はあるものの全て水色である。完形のものと同破片のものがあり、完形のものを見ても形状や大きさはまばらである。中には表面に岩塩や石膏が析出している部分も見られた。分析に際しては、まず釉部分を肉眼で観察し、付着物および析出物の見られない部分を選び出し、アルコールを付着させた紙製ウエスで拭いてから分析を行った。

### (3) 結果と考察

分析した40点のファイアンススタイルの定量結果をTable 4にまとめた。なおTable 4には先行研究（Abe et al. 2012）で求められた本分析法による各元素の検出下限（L.L.D. : Lower Limit of Detection）も合わせて示してあり、定量値が検出下限を下回ったものはn.d.（not detected）と表記した。さらに信憑性のある定量が行えるものと判断できる下限（定量下限、L.L.Q. : Lower Limit of Quantification）を検出下限の3.3倍とし、定量値が定量下限を下回ったものは参考値として括弧付きで示してある。以後の議論において、この定量値を用いたプロットでは、検出下限未満（n.d.）の場合を0とした。検出下限以上で定量下限未満（括弧付き）の場合は、一応の値として参考値をプロット上に示したが、定量値としての信憑性は高くないことに注意されたい。

#### ①青銅の再利用について

今回分析した40点のファイアンススタイルはいずれも1 wt%を超える著量のCuを含み、Cu着色剤の添加により着色されていることが確認された。Cu着色剤の原料に青銅を再利用していたかを判別するために、分析により得られた各資料の酸化銅（CuO）定量値に対して二酸化スズ（SnO<sub>2</sub>）定量値をプロットし、Fig.62とした。40点の資料のうち、定量下限（SnO<sub>2</sub> 0.033 wt%）を上回る有意な量のSnを含んでいた資料は21点であり、他の19点からは明らかに区別された。この21点におけるCuO定量値に対するSnO<sub>2</sub>定量値の比（SnO<sub>2</sub>/CuO）を求めると、平均0.030で最小0.014、最大0.056だった。すなわちCuに対して1.4%以上のSnを含むことになり、Cu着色剤として青銅が再利用されていた可能性が高いものと考えられる。この有意な量のSnを含む21点を本稿は「Cu+Snタイプ」と称する。残る19点については、いずれもSnO<sub>2</sub>の定量値が定量下限を下回っており、Snをほとんど含まないCu原料が用いられたものと考えられる。さらに詳細は後述するが、この19点のうち9点からは、Cuの他に青色着色剤であるコバルト（Co）が検出された。以後、本稿ではSnを含まない19点のうちCoを含む9点を「Cu+Coタイプ」、Coを含まない10点を「Cuタイプ」と表記する。

先述のように、先行研究（Kaczmarczyk and Hedges 1983）ではアメンヘテプ2世およびトトメス4世期に年代づけられる全てのCu着色ファイアンスにおいて青銅の再利用が行われていた。しかしながら本研究で得られた結果からは、青銅の再利用が行われていた資料数は全体のおよそ半分であり、先行研究の5点も含めると全45点中26点となった。この新たな結果を踏まえ、第18王朝エジプトのファイアンスおよびガラス生産における青銅の再利用の普及について改めて考察する。Fig.63に、トトメス3世より前の第18王朝前期（①）、トトメス3世期（②）、アメンヘテプ2世およびトトメス4世期（③）、およびアメンヘテプ3世期（④）のCu着色ファイアンスにおける青銅の再利用が行われていた資料の割合を表した。青銅をCu着色剤原料として再利用するという手法は、第18王朝前期の時点からすでにファイアンス生産の中で利用されていた。しかしながらその手法は必ずしも普遍的なものではなく、割合としては当時生産されたCu着色ファイアンス製品の半分に満たない。その後のアメンヘテプ2世およびトトメス4世期では、ファイアンス生産における青銅の再利用の頻度は多少の増加が見られるものの、ガラス生産において青銅が再利用された痕跡は見つかっていない。

Table 4 40点のファイナンススタイルの定量結果 (単位 wt%)

Object No.	SiO <sub>2</sub> †	Na <sub>2</sub> O	MgO	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	K <sub>2</sub> O	CaO	TiO <sub>2</sub>	SnO <sub>2</sub>	Sb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	MnO	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CoO	NiO	CuO	ZnO	Rb <sub>2</sub> O	SrO	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	ZrO <sub>2</sub>	PbO	
<i>Cu+Sn type (n=21)</i>																					
AK05-A490	95.4	n.d.	-0.31	0.7	0.08	0.8	-0.01	0.08	n.d.	n.d.	0.12	n.d.	-0.002	2.471	0.011	-0.001	0.004	n.d.	0.008	0.007	
AK05-A543	89.2	-0.8	1.09	1.07	0.16	0.94	-0.03	0.13	n.d.	n.d.	0.09	n.d.	n.d.	6.419	0.015	-0.001	0.004	n.d.	-0.003	0.008	
AK06-o933	93	-0.7	-0.31	1.12	0.2	0.73	0.04	0.09	n.d.	n.d.	0.26	n.d.	n.d.	3.552	0.008	-0.001	-0.003	n.d.	0.005	0.006	
AK08-A014	91.8	n.d.	1.38	0.94	0.11	1.64	-0.01	0.15	n.d.	n.d.	0.06	n.d.	n.d.	3.905	0.009	-0.001	-0.003	n.d.	-0.003	0.008	
AK08-A039	89.2	3.3	0.57	1.31	-0.05	1.92	-0.02	0.09	n.d.	-0.01	0.16	n.d.	n.d.	3.334	0.005	n.d.	0.008	n.d.	0.004	0.02	
AK08-A458	93.1	n.d.	0.53	0.88	0.09	1.37	-0.01	0.1	n.d.	n.d.	0.1	n.d.	n.d.	3.803	0.007	-0.001	0.008	n.d.	0.005	0.011	
AK08-A588	92.9	-1.2	0.69	0.68	0.07	1.48	-0.01	0.07	n.d.	n.d.	0.1	n.d.	n.d.	2.751	0.005	-0.001	0.008	-0.001	0.006	0.023	
AK08-F053	90.6	-1.5	0.81	0.83	0.1	2.45	-0.02	0.07	n.d.	-0.01	0.17	n.d.	n.d.	3.383	0.006	-0.001	0.009	n.d.	0.004	0.024	
AK08-F081	92.7	n.d.	0.85	0.67	-0.04	1.89	-0.01	0.1	n.d.	-0.01	0.06	n.d.	n.d.	3.61	-0.002	n.d.	0.008	n.d.	-0.003	0.017	
AK08-F231	90.9	-1	0.97	0.7	-0.03	2.23	-0.03	0.09	n.d.	-0.02	0.1	n.d.	n.d.	3.782	0.008	n.d.	0.009	n.d.	-0.003	0.082	
AK08-F281	93.5	n.d.	0.88	0.78	0.1	1.48	-0.02	0.06	n.d.	-0.01	0.19	n.d.	n.d.	2.967	0.015	-0.001	-0.003	-0.001	-0.003	0.006	
AK08-F315	85.8	4	1.54	1.45	0.07	1.09	0.06	0.08	n.d.	-0.01	0.38	n.d.	n.d.	5.528	0.006	n.d.	-0.003	n.d.	0.004	0.004	
AK08-o004	91.7	n.d.	-0.41	0.7	0.17	2.44	-0.02	0.08	n.d.	-0.01	0.13	n.d.	n.d.	4.329	0.011	-0.002	0.007	n.d.	0.004	0.009	
AK08-o499	92.3	n.d.	1.44	0.86	0.11	1.4	-0.01	0.12	n.d.	-0.01	0.12	n.d.	n.d.	3.628	0.011	-0.001	-0.003	n.d.	-0.002	-0.002	
AK08-o549	86.1	5.8	0.89	1.44	0.15	1.36	-0.01	0.18	n.d.	n.d.	0.16	n.d.	n.d.	3.925	0.017	-0.001	-0.003	n.d.	0.004	0.005	
AK08-o673	93.1	-0.6	-0.45	0.77	-0.04	1.25	-0.01	0.11	n.d.	n.d.	0.07	n.d.	n.d.	3.548	-0.003	n.d.	0.008	n.d.	0.004	0.014	
AK08-o779	94.3	-0.9	-0.36	0.74	-0.06	0.48	-0.01	0.08	n.d.	n.d.	0.09	n.d.	n.d.	2.915	0.012	n.d.	-0.002	n.d.	-0.002	0.014	
AK08-o854	95.1	-0.5	0.66	1.01	-0.02	0.87	-0.01	0.09	n.d.	n.d.	0.07	n.d.	n.d.	1.607	-0.002	n.d.	0.006	-0.001	-0.002	0.011	
AK08-o855	92	3.1	-0.49	0.85	-0.03	1.1	-0.01	0.11	n.d.	n.d.	0.06	n.d.	n.d.	2.264	-0.003	n.d.	0.006	n.d.	-0.002	0.017	
AK08-o919	90.9	1.7	0.54	0.94	-0.05	1.59	-0.02	0.1	n.d.	-0.01	0.12	n.d.	n.d.	3.956	0.005	-0.001	0.007	n.d.	-0.003	0.105	
AK09-o444	90.4	2.6	0.85	0.88	0.15	1.32	-0.01	0.14	n.d.	n.d.	0.14	n.d.	n.d.	3.5	0.004	-0.001	0.007	n.d.	0.008	0.02	
L.L.D.	0.03	0.5	0.15	0.05	0.02	0.01	0.01	0.01	0.02	0.01	0.01	0.003	0.002	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	

Elements quantified by white X-ray mode: Na, Mg, Al, K, Ca, Ti, Sn, Sb

Elements quantified by monochromatic X-ray mode: Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Rb, Sr, Y, Zr, Pb

† Calculated to normalize the total elemental content to 100 wt%.

n.d. : not detected (lower than L.L.D., Lower Limit of Detection)

( ) : trace amount (lower than L.L.Q., Lower Limit of Quantification)

Object No.	SiO <sub>2</sub> †	Na <sub>2</sub> O	MgO	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	K <sub>2</sub> O	CaO	TiO <sub>2</sub>	SnO <sub>2</sub>	Sb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	MnO	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CoO	NiO	CuO	ZnO	Rb <sub>2</sub> O	SrO	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	ZrO <sub>2</sub>	PbO	
<i>Cu type (n=10)</i>																					
AK06-o820	93	2.3	0.57	0.87	0.15	0.28	n.d.	-0.01	n.d.	-0.01	0.09	n.d.	n.d.	2.715	0.008	-0.001	-0.003	-0.001	-0.002	0.004	
AK08-F098	91	-0.9	0.61	0.8	0.13	1.54	-0.02	-0.02	n.d.	-0.01	0.19	n.d.	-0.005	4.719	0.014	-0.001	0.006	-0.001	0.004	0.013	
AK08-o013	92.9	-1.4	0.81	0.94	0.13	1.03	-0.02	-0.01	n.d.	-0.01	0.21	n.d.	n.d.	2.509	0.024	-0.001	-0.003	n.d.	-0.003	-0.003	
AK08-o042	91.7	n.d.	0.69	1.43	0.17	1.01	0.06	-0.01	n.d.	-0.02	1.03	n.d.	n.d.	3.886	0.01	-0.001	0.004	n.d.	0.004	0.004	
AK08-o457	91.2	-0.5	1.43	0.88	0.14	1.74	-0.03	-0.01	n.d.	-0.01	0.14	n.d.	n.d.	3.876	0.024	-0.001	0.007	n.d.	0.004	0.006	
AK08-o926	85.8	4.8	1.59	0.75	0.1	1.77	-0.01	-0.01	n.d.	n.d.	0.05	n.d.	n.d.	5.092	0.012	n.d.	0.008	n.d.	-0.001	0.004	
AK09-o050	91	-1.4	0.7	0.77	0.17	0.71	-0.03	-0.02	n.d.	-0.01	0.14	n.d.	n.d.	4.966	0.016	-0.001	0.004	-0.001	0.004	0.01	
AK09-o082	89.4	1.9	0.64	0.73	0.27	1.14	-0.02	-0.01	n.d.	n.d.	0.13	n.d.	-0.006	5.674	0.014	-0.002	0.005	-0.001	0.005	0.011	
AK09-o245	90	-0.5	-0.33	1.02	0.07	1.15	0.04	-0.02	n.d.	n.d.	0.22	n.d.	n.d.	6.596	0.02	n.d.	0.005	n.d.	0.004	0.009	
AK09-o578	91.2	1.8	0.53	0.81	0.13	1.54	-0.01	-0.01	n.d.	-0.03	0.23	n.d.	n.d.	3.688	0.009	n.d.	0.004	-0.001	-0.003	0.006	
<i>Cu+Co type (n=9)</i>																					
AK08-A459	85.1	4.1	0.93	3.88	0.24	1.01	0.04	-0.01	n.d.	0.16	0.3	0.083	0.06	3.973	0.095	-0.002	0.005	-0.002	0.005	0.021	
AK08-A851	90.8	2.5	1.52	2.19	0.4	0.54	0.05	-0.01	n.d.	0.13	0.36	0.081	0.072	1.271	0.103	-0.002	0.004	-0.002	-0.003	0.012	
AK08-A869	91.4	2	1.04	1.71	0.25	0.69	-0.03	-0.01	n.d.	0.15	0.33	0.092	0.064	2.096	0.098	-0.002	0.004	-0.002	0.004	0.02	
AK08-F241	93.2	1.9	-0.29	1.57	0.16	0.78	-0.01	-0.01	n.d.	0.07	0.18	0.062	0.05	1.619	0.085	-0.001	-0.001	-0.001	-0.002	0.008	
AK08-F291	85.7	6.2	0.5	3.9	0.25	1.2	0.04	n.d.	n.d.	0.14	0.29	0.081	0.061	1.51	0.085	-0.001	0.004	-0.001	0.004	0.027	
AK08-o833	91.7	-1.3	-0.37	1.89	0.16	0.86	-0.03	-0.01	n.d.	0.15	0.29	0.089	0.068	2.973	0.083	-0.002	-0.002	-0.001	-0.002	0.015	
AK08-o839	91.1	2.1	-0.33	2.8	0.45	0.6	-0.02	-0.01	n.d.	0.08	0.18	0.077	0.057	2.038	0.1	-0.002	-0.002	-0.001	-0.003	0.017	
AK08-o840	90.1	2.9	-0.38	2.6	0.24	0.92	-0.02	-0.01	n.d.	0.11	0.23	0.077	0.066	2.197	0.103	-0.001	-0.002	-0.001	-0.003	0.014	
AK08-o919	86.4	4.4	-0.45	2.54	0.3	0.84	0.06	-0.01	n.d.	0.1	0.32	0.098	0.054	4.253	0.136	-0.002	-0.003	-0.001	0.004	0.034	
L.L.D.	0.03	0.5	0.15	0.05	0.02	0.01	0.01	0.01	0.02	0.01	0.01	0.003	0.002	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	

Elements quantified by white X-ray mode: Na, Mg, Al, K, Ca, Ti, Sn, Sb

Elements quantified by monochromatic X-ray mode: Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Rb, Sr, Y, Zr, Pb

† Calculated to normalize the total elemental content to 100 wt%.

n.d. : not detected (lower than L.L.D., Lower Limit of Detection)

( ) : trace amount (lower than L.L.Q., Lower Limit of Quantification)

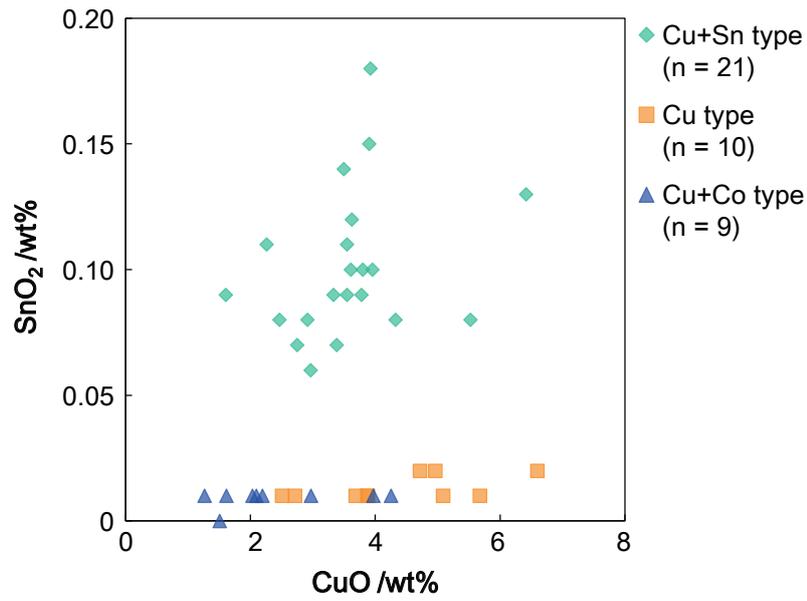


Fig.62 分析した全40点のファイアンススタイルの酸化銅 CuO と二酸化スズ SnO<sub>2</sub> の定量値

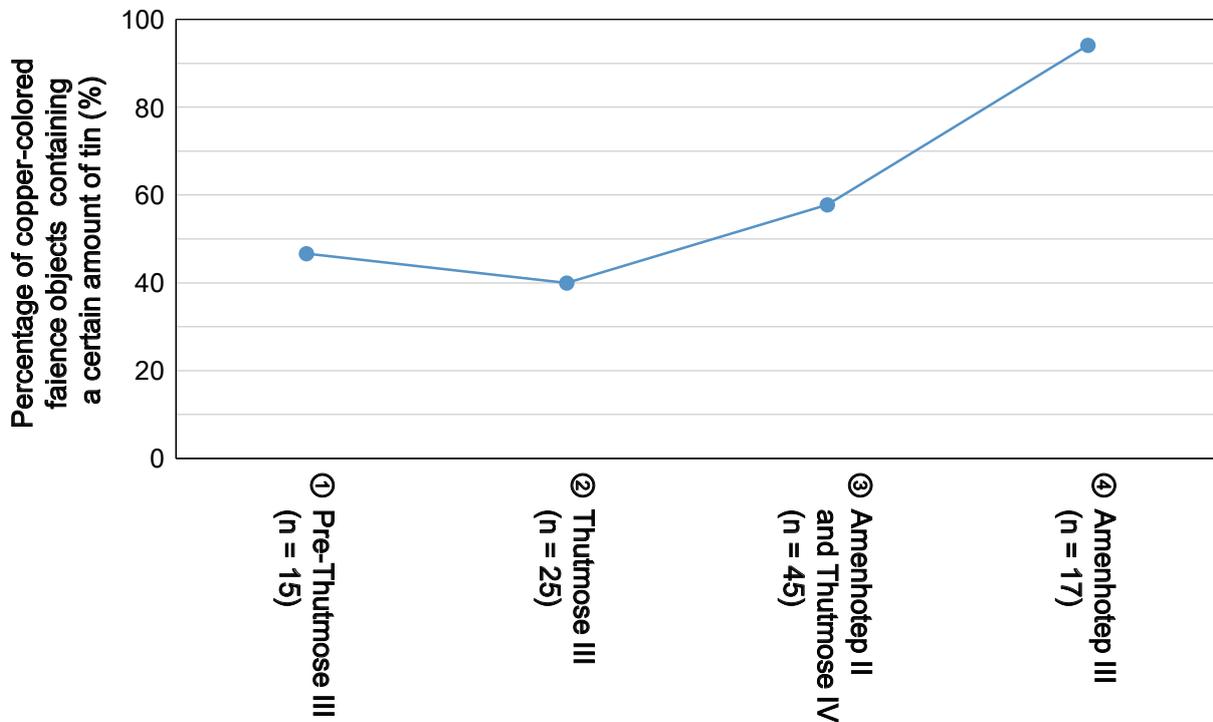


Fig.63 Cu 着色ファイアンス製品に見られる青銅の再利用の頻度推移  
(本研究で扱った資料以外のデータは先行研究 (Kaczmarczyk and Hedges 1983) から引用)

アメンヘテプ3世の時代になると、Cu着色ファイアンスのほとんどが着色剤として青銅を用いたものとなり、また青銅の再利用はガラス生産においても見られるようになる。すなわちアメンヘテプ2世およびトトメス4世期というのは、先行研究(Kaczmarczyk and Hedges 1983)で予見されたようなファイアンス生産技術における劇的な変化が生じた時代ではなく、トトメス3世期からの流れを引き継ぐ形で、青銅の再利用という手法が緩やかに広まった時代だったと捉えるべきである。むしろ技術的革新という点ではその後のアメンヘテプ3世期の方が重要であり、青銅の再利用がファイアンス生産で普遍化しただけでなく、ガラス生産へも拡大されたのがこの時代である。青銅を再利用するという手法がエジプトで普及した背景には、この時代にマルカタで大規模なガラス生産が行われたことが関係しているものと考えられる。この時代のCuは青銅を含む金属製品の他に、古来より生産されていたファイアンスや顔料の原料、そして大量のガラスの着色剤として利用されることとなった。用途の多いCu資源の有効な活用法として着目されたのが、当時一部のファイアンス生産で行われていた青銅の再利用だったのではないだろうか。つまり古代エジプトにおける青銅の再利用は、エジプトでガラス生産が開始されるよりも前から行われてはいたが、この手法がエジプト全土に普及する契機としてガラス生産規模の拡大が関係していた可能性が考えられる。

しかしこの考察は、マルカタでガラスの大量生産が開始される前のエジプトで作られたガラス(初期ガラス)の生産において、Cu着色剤原料としての青銅の再利用が行われていないと仮定した場合である。前述したように、先行研究(Shortland and Eremin 2006; Lilyquist and Brill 1993)ではガラス中に微量のSnを検出できていなかっただけであれば、あるいはトトメス3世期に国内ガラス生産が開始された時点からすでに青銅の再利用が導入されていた可能性もある。近年行われている古代ガラスの化学組成研究では、レーザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析(LA-ICP-MS)という超高感度分析法が普及しつつある。ごく微量ながら資料の破壊を伴うという欠点はあるが、今回議論になっているような不純物レベルの元素であっても、ppm(0.0001 wt%)のオーダーまで感度よく分析することができる。こうした超高感度分析手法を初期ガラスに適用することで、青銅の再利用がどのような形でガラス生産に普及していったのか、その全貌が明らかにされていくものと期待したい。あるいは、古代ガラス生産においてCuは還元焼成下で赤色着色剤としても機能し、この時代のCu着色赤色ガラスは青色のものに比べて10倍にも及ぶ高濃度のCuを含むことが知られている(Brill 1999)。つまり着色剤としてのCuを多く含む赤色ガラスであれば、今回のような非破壊の化学組成分析からでも、Snなどの微量成分を検出することが可能であると期待される。また今回はあまり詳しく触れることはなかったが、合成青色顔料のエジプシャン・ブルーもまた古代エジプトにおける重要なCuの用途の一つである。第18王朝後期のアマルナより出土したエジプシャン・ブルーについては著量のSnが含まれることが指摘されているが(Hatton et al. 2008)、果たして第18王朝のどの段階からエジプシャン・ブルー生産に青銅の再利用が導入されたのかは明らかではない。今回Cu着色ファイアンスについて示されたような青銅の再利用の推移をその他のCu着色製品についても検証することで、古代エジプトにおける青銅の再利用の全貌が明らかにされることであろう。

## ②コバルト着色剤の組成的特徴

先述のように、40点のCu着色ファイアンススタイルについて行った蛍光X線分析において、9点の資料からCoが検出された(Cu+Coタイプ)。CuとCoはどちらもガラス・ファイアンス生産において青色着色剤として利用されたが、Cuが水色に近い明るい青色を呈するのに対して、Coは紺色とでも呼ぶべき暗い青色を呈するのに用いられる。Coを含む9点について得られた酸化コバルト(CoO)の定量値は最大で0.098 wt%であり、CuOの定量値の1/10以下である(Table 4参照)。しかしCoはガラス・ファイアンス中でごく微量(~0.001 wt%)でも青色に発色する。そのためこれらCoが検出された9点のタイルは、他のタイルに比べて明らかに

釉部分の青味が強い。また Fig.62 および Table 4 を見ると、Cu+Co タイプは青銅に由来する Sn を含まないだけでなく、そもそも Cu の添加量も少ないという傾向がある。Cu+Co タイプで青銅の再利用が行われていなかった理由に関しては、単純に青銅の再利用を行っていた工房で Co 着色剤が使用されていなかった可能性もあるが、後述するように当時 Co 着色剤はきわめて希少なものであり、いわば Co 着色製品は贅沢品であった。これに対して青銅を再利用するという手法は資源を有効活用しようという節約行為であるため、Co 着色剤の利用と Cu 着色剤としての青銅の再利用は相反する面もある。また Cu の量が少ないのは Co による発色を目立たせるためとも考えられ、Co 着色剤と Cu 着色剤の添加量によって色調を調整していたことを示している。

第 18 王朝のエジプトの Co 着色剤については非常に多くの研究が行われており、ガラスやファイアンスの着色剤および彩文土器用の青色顔料「コバルト・ブルー」の Co 原料として、エジプト西方砂漠のオアシスに特徴的に産出する「コバルト・ミョウバン (cobaltiferous alum)」が用いられていたことが明らかになっている (Kaczmarczyk 1986)。コバルト・ミョウバンというのは通称で、厳密にはミョウバン (明礬) ではなくモウバン (毛礬) の一種であり、苦土毛礬 (pickeringite:  $MgAl_2(SO_4)_4 \cdot 22H_2O$ ) の Mg サイトに Co を始めとする遷移元素が置換したものである。コバルト・ミョウバンの採掘地として、ハルガ・オアシスとダフラ・オアシスの 2 箇所が指摘されている (Shortland et al. 2006b) が、筆者らの先行研究 (Abe et al. 2012) によって第 18 王朝のガラス・ファイアンス生産に利用された Co 着色剤の原料となるミョウバンはダフラ・オアシス内の 1 拠点 (アイン・アシール) で採掘されていた可能性が高いことが明らかとなっている。当時の技術レベルではコバルト・ミョウバンから Co のみを分離することができないため、Co 以外の遷移元素 (マンガン Mn、ニッケル Ni、亜鉛 Zn) や、主成分であるアルミニウム (Al) が、Co 着色剤の不純物として Co 着色製品 (ガラス、ファイアンス、顔料) にも含まれる。そこで Table 4 に示した Cu+Co タイプの定量結果を見てみると、他のタイプには見られない様々な遷移元素が検出されていることがわかる。Cu+Co タイプのファイアンススタイル 9 点について、着色剤である Co と、ミョウバン由来の不純物として含まれる遷移元素 (Mn、Ni、Zn) の酸化物としての定量値 (CoO、MnO、NiO、ZnO) の比率を 2 種類の三角ダイアグラムとして Fig.64 に示した。Fig.64 には、筆者らの先行研究 (Abe et al. 2012) で示されたコバルト・ミョウバンを原料とする Co 着色製品 (第 18 王朝の Co 着色ガラス・ファイアンス) の組成範囲が示されているが、今回の調査で分析したタイル 9 点は全てこの組成範囲に収まった。また Table 4 の定量結果から各組成タイプにおける酸化アルミニウム ( $Al_2O_3$ ) 定量値の平均値を求めると、Cu+Sn タイプおよび Cu タイプではそれぞれ 0.92 wt% および 0.90 wt% なのに対し、Cu+Co タイプでは 2.56 wt% と、Co を含まない資料の 2 倍以上もの Al を含むことがわかる。これらの組成的特徴の一致から、今回の分析で Cu+Co タイプに分類された 9 点のファイアンススタイルには、エジプト西方砂漠で得られたコバルト・ミョウバンを原料とした Co 着色剤が添加されているものと考えられる。

そもそもメソポタミアからエジプトへとガラス生産技術が伝えられたトトメス 3 世期の時点で、メソポタミアではガラスの Co 着色技術は存在しなかった (Moorey 1994)。さらに、少なくともトトメス 3 世期またはそれ以前のエジプトにおいて、Co 着色剤を用いたファイアンス製品や顔料は生産されていなかった。よって Co 着色剤の利用は、エジプトへのガラス生産技術の移入を契機として、エジプト国内で開始されたものであると考えられる。エジプトへのガラス生産技術の移入からコバルト・ミョウバンの発見まではきわめて短く、トトメス 3 世期に作られた初期ガラスの中ですでにコバルト・ミョウバンを原料とする Co 着色剤が利用されている (Newberry 1922; Nicholson 2006; Lilyquist and Brill 1993)。その後、コバルト・ミョウバンは第 18 王朝中期のうちにファイアンスの青色着色剤や、Co を含む青色顔料の原料として用いられるようになり、第 18 王朝後期にその利用は最盛期を迎えたとされる (Shortland et al. 2006a, 2006b)。今回分析したファイアンススタイルは第 18 王朝中期のアメンヘテプ 2 世およびトトメス 4 世期に年代づけられるため、ファイアンス生産におけるコバルト・ミョウバンの利用例としてはかなり早い時期の資料にあたる。また、膨大な数の古代エジプトの

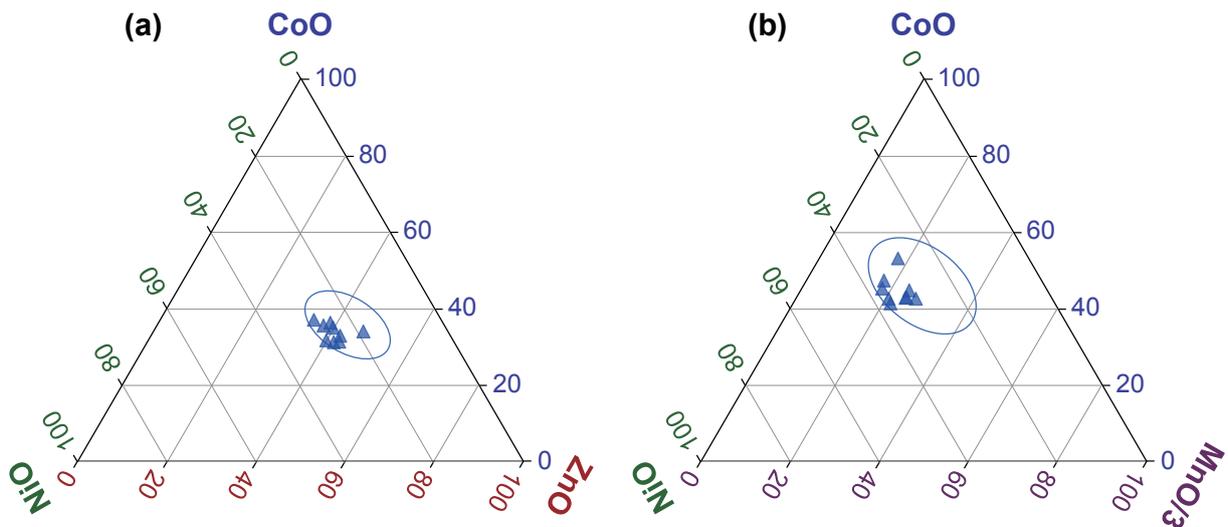


Fig.64 三角ダイアグラムによるCu+Coタイプ9点のCo着色剤の組成的特性化  
 (a) CoO-NiO-ZnO ダイアグラム、(b) CoO-NiO-MnO/3 ダイアグラム  
 (破線は先行研究 (Abe et al. 2012) で示された第18王朝のCo着色ガラス・ファイアンスの組成範囲)

ファイアンスの化学分析を行ったカツマルチックとヘッジス (Kaczmarczyk and Hedges 1983) の先行研究を見ても、アメンヘテプ3世期以前の資料で有意な量のCoが検出されたものは1点(182-107-610)のみである。よって第18王朝中期のファイアンス製品にCo着色剤が利用されていることを化学的に実証したという点でも、今回のファイアンススタイルの分析は重要であるといえよう。

アメンヘテプ3世期にCo着色のガラス・ファイアンスおよびCoを含む青色顔料が大量に生産されるようになってからも、Co着色剤の価値が損なわれることはなく、Co着色製品は王族を始めとする高貴な階級にとってのステータスシンボルであった。言い換えれば、Co着色剤の利用拡大が行われるアメンヘテプ3世期より前の時代においては、その希少性は非常に高かったものと考えられる。またこれらのファイアンス製品が出土した日乾煉瓦遺構の周辺からは、同時代に年代づけられる彩文土器が数多く出土しており、先述した青色顔料コバルト・ブルーによる装飾が施されていた (高橋、阿部 2011; Abe et al. 2009)。きわめて希少性の高いCo着色剤が用いられたファイアンススタイルおよび彩文土器が出土していることは、本遺構の築造に当時の王であるアメンヘテプ2世あるいはトトメス4世が深く関係していた可能性を示唆するものである。

#### (4) まとめ

アブ・シール南丘陵遺跡の日乾煉瓦遺構の周辺より出土したCu着色ファイアンススタイルについて、非破壊組成分析を行った。この遺構はアメンヘテプ2世およびトトメス4世に関連づけられるものであり、これまで不鮮明だった第18王朝中期のエジプトのファイアンス生産における青銅の再利用の推移を解明するうえで重要な資料である。分析の結果、青銅の再利用の痕跡が確認されたのは全体のおよそ半数であり、先行研究で示されていたよりも青銅の再利用の普及は遅かった可能性が示された。その普及の背景にはマルカタにおける大規模なガラス生産の開始が関連していたものと考えられ、ファイアンス生産における青銅の再利用の一般化と同手法のガラス生産への導入は同時期であった可能性が示された。

また分析したタイルの一部には、CuとCoという2種類の青色着色剤が添加されていたことが明らかとなった。さらに、Co着色タイルの組成的特徴から、そのCo着色剤の原料はエジプト西方砂漠のオアシスで得られるコバルト・ミョウバンであることがわかった。マルカタ王宮造営以前のファイアンス生産においてCo着色

剤が利用されていたことを化学的に示した例は非常に少ない。またこの当時 Co 着色剤はきわめて希少であったものと考えられることから、これらの Co 着色タイルは日乾煉瓦遺構の築造が王族または王自身の手によるものであることを裏付ける希少な資料といえよう。

(阿部善也・遠山加奈枝・中村彩奈・大越あや・中井 泉)

#### 註

- 1) ガラスおよびファイアンスの着色において、Cu は共存元素や添加量によって青色や緑色の着色剤にもなるが、本稿ではそれらも一括して Cu による着色を水色着色として扱う。
- 2) アメンヘテプ 3 世（在位：前 1388～1351）の時代に、テーベ西岸に造られた王宮。20 世紀初頭の発掘調査によってガラス製作時に用いた坩堝とスラグが見つかったと記されているが（Keller 1983）、これらの資料は現在行方不明になっている。他にもガラス塊（ロッド、ドロップ）が数多く見つかっており、ガラス生産に関係する拠点だったことは間違いないだろう。
- 3) アマルナの発掘は 18 世紀から行われているが、ガラス工房としての可能性が示されたのは 19 世紀末の調査であり、3～4 基のガラス工房跡が発見された（Petrie 1894; Nicholson 2007）。
- 4) ここでの「有意な量」とは、Cu に対する Sn の定量値（酸化物濃度）の割合が 1% を超えていたものとする。対象は酸化銅（CuO）の定量値が 1 wt% を上回っているものに限定し、さらに同一資料内で複数の点を分析している場合には 1 点のデータのみを参照した。
- 5) グラーブより出土し、発掘者である W.M.F. ピートリー（Petrie）によって「group of Amenhotep III」に分類された資料 7 点も含まれる（Petrie 1891: 16-17, Pl.XVII）。
- 6) ただし本装置には、検出器の不感時間（dead time）の割合が 30% を超える場合に管電流を低下させる自動調整機能が備わっている。