調査報告

コンスウエムへブ墓の壁画に使用された 彩色顔料の非破壊化学分析

阿部 善也*1·扇谷 依李*2·日髙 遥香*2·中井 泉*3

Nondestructive Chemical Analysis of the Pigments Used in the Wall Paintings of the Tomb of Khonsuemheb

Yoshinari Abe*¹, Eri Ogidani*², Haruka Hidaka*², and Izumi Nakai*³

Abstract

We conducted nondestructive identification and chemical characterization of pigments and mortars of wall paintings in the tomb of Khonsuemheb at al-Khokha Area in the Theban Necropolis by using multiple portable analytical instruments: "portable X-ray fluorescence spectrometer", "portable micro-Raman spectrometer", "portable ultra-vioret visible absorption spectrometer", "portable fluorescence spectrophotometer", and "handheld microscope".

Based on the combined use of several nondestructive analytical techniques, the background layer of mortars and pigments used in the wall paintings are identified. The results of identification are as follows: background layer of mortars, calcite (CaCO₃), gypsum (CaSO₄.2H₂O), the mixture of calcite and gypsum; white, huntite (Mg₃Ca(CO₃)₄); black, carbon black; red, red ocher (main component: hematite α -Fe₂O₃); pink, the mixture of red and white; yellow, yellow ocher (main component: goethite (FeO(OH)); blue, Egyptian blue (main component: cuprorivaite CaCuSi₄O₁₀); turquoise blue, the mixture of blue and white; green, Egyptian green.

The multiple portable analytical instruments allow us more precise identification of pigments and mortars. In addition, the quantitative X-ray fluorescence analysis of materials, which is usually conducted by qualitative analysis, reveals the elemental compositions of each pigments and mortars.

1. 研究背景

筆者らが所属する東京理科大学中井研究室では、文化財の非破壊オンサイト分析を目的とした可搬型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オンサイト化学分析と考古化学的特性化を行ってきた(Abe et al. 2009, 2012; 阿部他 2009, 2010, 2013, 2016; 中井他 2006, 2007, 2008; 真田他 2003; 高橋、阿部 2011; 前尾他 2003)。近年では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)。また、2011年末にはルクソール・王家の谷のアメンヘテプ3世王墓内に描かれた壁画を研究対象に非破壊オンサイト化学分析を実施し、彩色に使用された顔料の同定の他、同遺跡より出土した顔料パレットの比較など、きわめて多く

- * 1 東京理科大学理学部第一部応用化学科講師
- * 2 東京理科大学大学院総合化学研究科総合化学専攻修士課程
- * 3 東京理科大学理学部第一部応用化学科教授
- * 1 Lecturer, Department of Applied Chemistry, Faculty of Science, Tokyo University of Science
- * 2 MA Student, Graduate School of Chemical Sciences and Technology, Tokyo University of Science
- * 3 Professor, Department of Applied Chemistry, Faculty of Science, Tokyo University of Science

の知見が得られている(高橋他 2013)。

今回の化学分析調査では、アル=コーカ地区で発見されたコンスウエムへブ墓を対象として、遺跡前室に残されていた壁画および発掘された彩画片の非破壊・非接触のオンサイト化学分析から、使用された彩色顔料の相同定および特性化を試みた。なお、今回の分析調査には蛍光 X 線分析装置、顕微ラマン分光分析装置、紫外可視吸収分光分析装置、分光蛍光光度計、デジタル顕微鏡という 5 種類もの可搬型分析装置を導入した。一遺跡に対してこれだけ多彩な分析手法をオンサイトで応用した研究は世界的にも例がなく、一般的な実験室系での測定を凌駕するきわめて多角的かつ信頼性の高い化学分析がオンサイトで実現した。調査は 2 つの期間に分けて実施された。まず 2016 年 1 月 6 日~ 11 日の休日を除いた 5 日間に蛍光 X 線分析装置、紫外可視吸収分光分析装置、分光蛍光光度計の 3 つの分析手法を用いた調査を実施した。さらに 2017 年 1 月 9~12 日の 4 日間に、顕微ラマン分光分析装置およびデジタル顕微鏡による調査を実施した。本稿ではこれら 2 回の調査で得られた成果をまとめて報告する。

2. 分析対象および分析手法

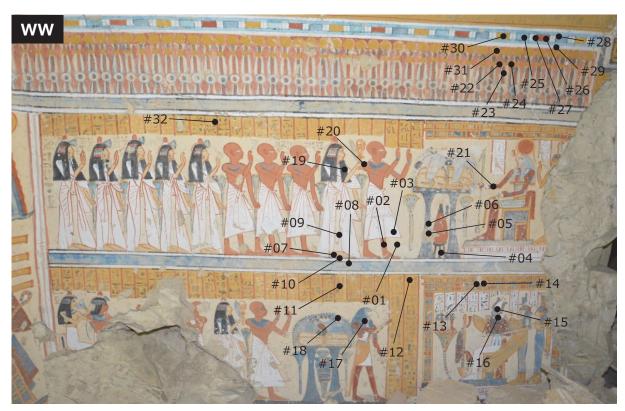
(1) 分析対象および解析の手順

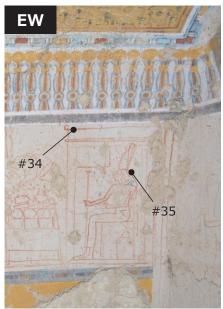
本研究の分析対象は、コンスウエムヘブ墓(KHT02)前室の壁画と、同遺跡より出土した彩画片 4 点(F1~F4)である。壁画については、特に保存状態の良かった西壁南側を中心として、南壁および東壁についても分析を実施した。まず蛍光 X 線分析により西壁南壁(WW)の 32 点、南壁(SW)2 点、東壁(EW)の 2 点、破片 4 資料(F1:6 点、F2:7 点、F3:4 点、F4:6 点)の 23 点を分析した。さらに紫外可視吸収分光分析およびデジタル顕微鏡観察についても、これら全点に対して実施した。顕微ラマン分光分析については、これらの中から 28 点を選んで実施した。分光蛍光光度分析については壁画のみを対象とし、蛍光 X 線分析を実施した 36 点のうちの青色部分 5 点および緑色部分 5 点に対して行った。また壁画の分析と合わせて、南壁東側に露出していた下地プラスター 4 点(X についても蛍光 X 線分析を行った。測定は全て非破壊非接触で実施した。壁画および彩画片の分析点を図 1 および図 2 にまとめた。

以下に解析の手順を説明する。透過力の高い X 線による壁画の分析においては、下地からの信号が必ず検出される。そこで各彩色顔料の分析結果に入る前に、まず下地プラスター部分について蛍光 X 線分析の結果を解析した。続いて 8 色(白色、黒色、赤色、ピンク色、黄色、青色、水色、緑色)に分け、彩色部分の解析を行った。全点で得られた蛍光 X 線スペクトルを定性的に読み解き、組成情報から顔料の種類を推定した。その上で、顕微ラマン分光分析、紫外可視吸収分光分析、分光蛍光光度分析により、参照物質とのスペクトル比較から、顔料の相を同定した。上記の顔料同定操作において、本稿では各色について代表的な1点のデータを提示する。さらに Fe を主成分としていた赤色および黄色顔料と、Cu を主成分としていた青色および緑色顔料については、蛍光 X 線分析の結果からより定量的な議論を展開した。

(2) 蛍光 X 線分析装置

可搬型蛍光 X 線分析装置 OURSTEX 100FA (Abe et al. 2009; Nakai et al. 2005) は、東京理科大学中井研究室と OURSTEX (株) との共同開発品である。全重量約 15 kg 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。本装置の詳細については先行研究(高橋他 2013)の「汎用型」を参照されたい。本装置は内蔵のモノクロメータの切り替えによって「白色 X 線励起」と「単色 X 線励起」の2種類の励起モードが可能である。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 1 。測定時間は両モードでそれぞれ 100 秒(live time)とし、全ての点について両モードの測定を行った。また測定ヘッド先端と分析対象との距離はほぼ 5 mm に統一し





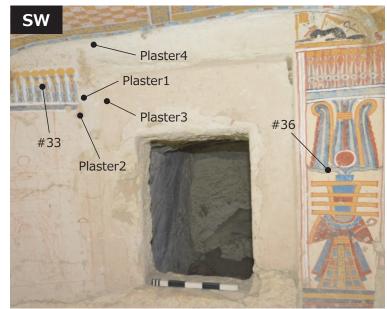


図 1 壁画(西壁南側:WW、南壁:SW、東壁:EW)の分析個所 Fig.1 Analyzed points of wall painting (southern side of western wall: WW, south wall: SW, eastern wall: EW)

た。

壁画や絵画を対象とした非破壊の蛍光 X 線分析においては、スペクトル上に検出された元素から定性的な考察を行うことが一般的である。しかし本研究では新しい試みとして、彩色顔料に含まれる元素の定量化を試みた。顔料に含まれる元素の量が明らかになれば、原料や製法を議論することが可能となる。物質に含まれる元素の量を表す最も一般的な表現方法は化学組成であり、例えば質量百分率では全元素の合計を 100 wt% として、各元素の存在量を割合で表現する。壁画や絵画の顔料の化学組成を得る方法としては、顔料

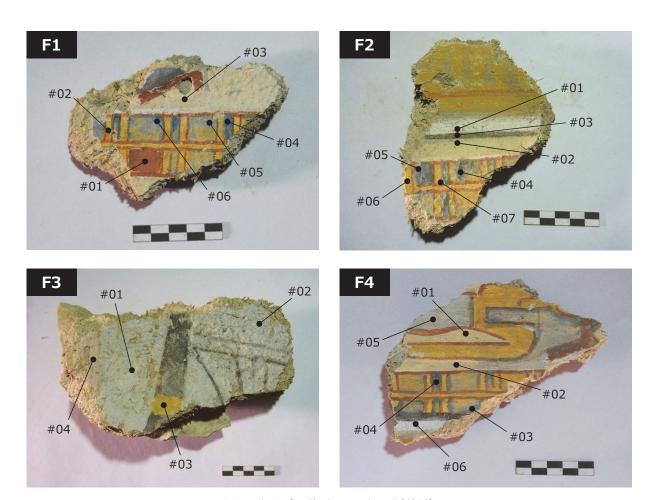


図 2 壁画の彩画片 (F1 \sim F4) の分析個所 Fig.2 Analyzed points of four painted fragments (F1 \sim F4) of wall painting

以下に顔料の半定量法開発の概要を述べる。まず、不純物元素をほとんど含まない大理石の板を用意し、これを適当な大きさに切断して、検量線用の標準試料の下地として用いた。標準試料は Fe 系と Cu 系の 2 群に分けて作成した。上記 11 元素について、典型的な酸化物の実験試薬を用意し、Fe 系については 4 段階、Cu 系については 3 段階で、各試薬の混合比を変えたものを用意した。これらを微量のダンマルワニスに溶かしてペースト状にし、大理石板上に $1.0~{\rm cm} \times 1.0~{\rm cm}$ の正方形になるようにそれぞれ塗布して、計 7 点の標準試料を作成した。各標準試料について、塗布前後の重量変化と、各試薬の混合比から、各元素の酸化物形態での存在量 $(g/{\rm cm}^2)$ を計算した。7 点の標準試料とブランクの大理石板 1 点について、実資料と同様の条件で測定し、蛍光 X 線強度と存在量の関係を示す検量線を作成した。なお標準試料作製時の塗布のムラを

考慮し、各標準試料について 5 回の分析を行い、平均値を用いた。スペクトルの解析には WinQXAS(IAEA 2000)を用いた。蛍光 X 線強度は、単色 X 線励起のスペクトルから Mn-K α 線、Fe-K α 線、Cu-K α 線、Zn-K α 線、As-K α 線、Zr-K α 線、Pb-L α 線の積分面積を、白色 X 線励起のスペクトルからその他 4 元素の K α 線の積分面積を算出後、それぞれを励起 X 線の散乱強度(Pd-L α 線または Pd-K α 線のコンプトン散乱)で規格化した値とした。得られた検量線は 1 次または 2 次式による近似で決定係数 R^2 が 0.9 以上となり、良好な検量線が得られた。この半定量手法は開発途上のものであるが、本稿ではその成果の第一報として、主要な解析結果を報告する。

(3) 顕微ラマン分光分析装置

レーザーラマン分光分析法は、本来は赤外分光分析と相補的に利用することで有機物を中心とした未知試料の分子構造を分析する手法であるが、文化財分野においては特に鉱物や顔料の非破壊同定のために利用される。本研究では、波長 785 nm の赤色半導体レーザーを搭載した可搬型顕微ラマン分光分析装置 MiniRam (米国 B&W TEK 製)を用いた。本装置の詳細については先行研究(高橋他 2013)を参照のこと。本装置は専用の顕微システム(倍率 20 倍または 40 倍)に接続することで、レーザースポットを 90 または 45 μ m まで集光することができる。測定時間は 1 スキャンあたりの露光時間を 1000 ミリ秒に設定し、スキャン回数 $30 \sim 100$ 回でスペクトルを積算した。

スペクトルの解析では、得られたスペクトルの形状を既知の顔料または鉱物のデータと直接比較することで相を同定する「指紋法」を採用した。比較となる参照物質のデータには、黒色顔料のカーボンブラックは市販顔料粉末を分析したもの、それ以外に関してはオンラインで提供されている鉱物試料の分析データベース RRUFF (Downs 2006) より引用したものを用いた。

(4) 紫外可視吸収分光分析装置

紫外可視吸収分光分析法は、対象に白色光を照射して透過または反射した成分を分光することで、対象の吸収波長を調べる手法である。色をスペクトル化することで、わずかな色調差を数値的に議論することができるため、文化財分野では古くより顔料や染料の非破壊分析で利用されてきた。本研究では、東京理科大学中井研究室が(株)東京インスツルメンツと共同開発中の可搬型紫外可視吸収分光分析装置を用いた(和泉2017)。本装置は光源・測定部・分光部の3つの部分から成り、光源および測定部を変更することにより、後述する分光蛍光光度計への切り替えが可能となっている。光源には重水素ハロゲンランプ(米国Ocean Optics 社製 DH-2000-BAL、波長 215~2500 nm)を用い、光ファイバーを通じて測定部へ白色光を導入する。測定部には透過光測定用と反射光測定用があり、後者にはさらに積分球方式と拡散反射方式があるが、本研究では拡散反射型を用いた。この方式は、光源および分光部に繋がったペン型の測定プローブ(照射径約2 mm)を対象に近づけるだけで測定できる簡易なものであり、今回のようなオンサイト分析に適している。分光部には CCD 搭載のマルチチャンネル分光器(米国 Stellar Net 社製 Black Comet-SR)を用いた。測定波長は 20~1080 nm で、分解能約 2.0 nm である。1 スキャンあたりの積算時間は 150 ミリ秒とし、これを10 回積算してスペクトルを得た。参照物質には実験用試薬(hematite: α -Fe₂O₃、goethite: FeO(OH))、天然鉱物の粉末(malachite: Cu₂CO₃(OH)₂)、および試薬を調合して合成した自作の顔料(エジプシャングリーン)を用い、それぞれをアルミニウム箔上に塗布して、同様の条件で測定した。

(5) 分光蛍光光度計

物体が特定の波長の光を吸収して、異なる波長の発光を生じる現象を蛍光という。これは光照射によって

物質中の電子がエネルギーを吸収して励起し、それが基底状態に戻る際の余分なエネルギーを光として放出したものである。蛍光の有無、さらには蛍光による吸収・発光波長は、分子の構造や含有元素に起因するものであり、物質同定に際しての重要な情報となる。また蛍光は、上述した吸収分光分析に比べて感度的に優れているため、ごく微量な成分であっても短時間で検出することが可能である。本研究では、東京理科大学中井研究室が(株)東京インスツルメンツと共同開発中の可搬型分光蛍光光度計を用いているが、この装置は先述のとおり紫外可視吸収分光分析装置とのコンバーチブル型である(和泉 2017)。共通の分光器を用いて、分光蛍光光度計として利用する際には専用の測定ヘッドを接続する。この測定ヘッドは光源と測定部が一体化したもので、3種類の単色 LED 光源(紫外光:375 nm / 照射径約 2 mm、緑色光:632 nm / 照射径約 2 mm)が搭載されており、受光部には光源に応じたロングパスフィルターを挿入する。光源の切り替えによって、3励起波長に対する蛍光の発光スペクトルを測定する。本研究では励起光として赤色光のみを使用し、蛍光 X 線分析を実施した青色または緑色顔料部分の一部について分析を行った。1 スキャンあたりの積算時間は 100 ミリ秒とし、これ 10 回積算してスペクトルを得た。参照物質として、先行研究(Jaksch et al. 1983)に倣って合成した cuprorivaite(CaCuSi4O10)の粉末をアルミニウム箔上に塗布し、同様の条件で測定した。

(6) デジタル顕微鏡

顔料粒子の形態的な特徴も、その種類を判断する上での重要な情報の一つとなる。本研究ではラップトップ型コンピュータの USB ポートを電源として動作する小型のデジタル顕微鏡(スリーアールソリューション (株) 製 Anyty) を用いて、顕微倍率約 600 倍で非破壊非接触の観察を行った。

3. 結果と考察

(1) 下地

南壁東側のプラスター 4 点の蛍光 X 線スペクトルを図 3 に示した。なお、本稿で示す蛍光 X 線スペクトルは全て白色 X 線励起で得られたものを用いており、縦軸(強度)は励起 X 線である Pd-K α 線のコンプトン散乱強度を用いて規格化し、対数として表記した。4 点とも Ca の明瞭なピークが検出されたが、これはプラスターの主成分となる石灰石(calcite: CaCO $_3$)または二水石膏(gypsum: CaSO $_4$.2H $_2$ O)の構成元素である。Sr は Ca と同じアルカリ土類元素であり、Ca に随伴する典型的な不純物である。さらに Plaster1 と Plaster4 からは S が検出されており、これら 2 点については石膏プラスターであると考えられる。これに対して Plaster2 においては S のピークが明らかに弱く、石灰プラスターだと推定される。なお Plaster2 においては、他の 3 点に比べて Si、K、Ti、Fe などの元素が強く検出されているが、これらはプラスターに混入された粘土やスサに由来するものである。Plaster3 においては、S のピーク強度が石膏プラスター(Plaster1、Plater4)と石灰プラスター(Plaster2)の中間的な値となった。両者を混合したもの、あるいは両者を塗り重ねたものである可能性が考えられる。

先述のように、蛍光 X 線分析では下地からの信号も合わせて検出される。よってこれ以降、彩色顔料部分の蛍光 X 線スペクトルを提示する際には、ここで示した Plaster4 のスペクトルを比較のために下地として示すこととする。

(2) 白色顔料

白色顔料の分析例として、彩画片 F2 の #01 についての分析結果を示す。顕微鏡観察の結果、目立った不純物は含まない、均一性の高いきめ細やかな白色顔料であった(図 4a 参照)。この点について得られた蛍光

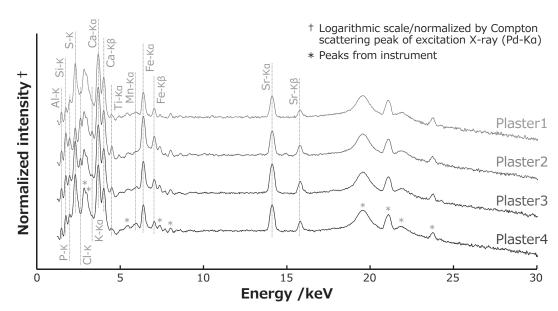
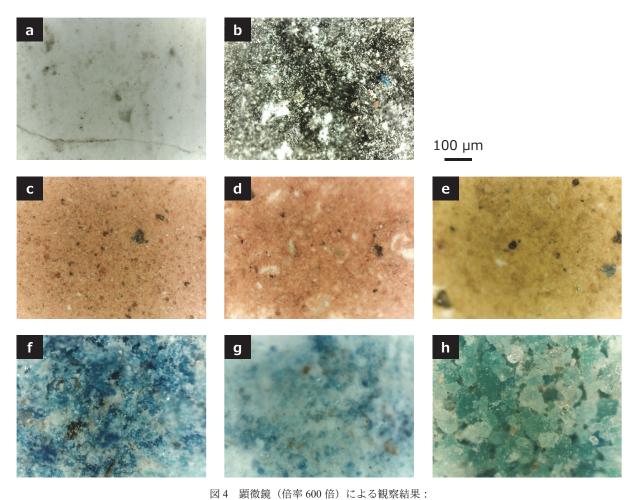


図 3 壁画下地プラスター部分 4 点(Plasterl ~ 4)の蛍光 X 線スペクトル Fig.3 X-ray fluorescence spectra of four background plaster parts (Plasterl~4) of the wall painting



(a) 白色顔料部分 F2 #01、(b) 黒色顔料部分 WW #19、(c) 赤色顔料部分 WW #02、(d) ピンク色顔料部分 WW #24、(e) 黄色顔料部分 WW #30、(f) 青色顔料部分 WW #08、(g) 水色顔料部分 WW #25、(h) 緑色顔料分 WW #36 Fig.4 Microscopic photographs of

(a) white pigment part F2 #01, (b) black pigment part WW #19, (c) red pigment part WW #02, (d) pink pigment part WW #24, (e) yellow pigment part WW #30, (f) blue pigment part WW #08, (g) tourquoise pigment part WW #25 and (h) green pigment part WW #36

X線スペクトルを図5に示した。スペクトルの形状は先述のプラスターと類似しており、CaおよびSのピー クが強く検出された。しかしながら、これらの元素は石膏プラスターの主成分であり、下地からの情報を検 出している可能性がある。そこで、この白色顔料部分で顕微ラマン分光分析を行ったところ、図6に示すよ うに、1122 cm⁻¹ にピークが検出された。典型的な白色顔料である calcite および gypsum のスペクトルと比較 した結果、ピークの位置が一致せず、別の物質であると考えられる。本研究の蛍光 X 線分析は大気中で行 われたため、エネルギーの低い軽元素の蛍光 X 線は空気により減衰され、検出することができない。そこ でこの白色顔料が本装置で検出できない Na や Mg といった軽元素を含む物質である可能性を想定し、類似 したラマンスペクトルを持つ物質を検索したところ、ハント石(huntite: $Mg_3Ca(CO_3)_4$)の CO_3^{2-} の対称伸縮 振動に同定された(図6参照)。Huntite は粒子が細かく高い反射率を持ち、輝度が高く滑らかな白色を呈す るとされ (Blom-Böer 1994)、顕微鏡による観察結果ともよく一致する。白色顔料としての huntite の利用は 比較的多くの報告があり (Dodd et al. 2009; Eastaugh et al. 2005; Heywood 2001)、筆者らがアメンヘテプ 3 世 王墓にて行った壁画の分析においても白色顔料として huntite が同定されている(高橋他 2013)。また A. エル・ ゴレシー(El Goresy)がまとめた古代エジプトの彩色顔料の変遷を見ても(El Goresy 2000)、ラメサイドに おける huntite の利用が指摘されている。Huntite の産出地として、北アフリカではチュニジア西部が報告さ れているが (Perthuisot et al. 1990)、この鉱物自体は Mg に富む塩湖や地層中に一般的に見られるものであり、 エジプト国内に採掘地があった可能性も否定できない。また、コンスウエムヘブ墓とアメンヘテプ3世王墓 というルクソール西岸の2遺跡で同じ白色顔料が同定された点は興味深く、建設年代に差はあるものの、あ るいは同じ場所で採掘された huntite が両遺跡で使用された可能性も考えられる。

(3) 黒色顔料

黒色顔料部分(WW #19)については、図 4b に示すように、デジタル顕微鏡により細かい黒色の粒子が観察された。古代エジプトにおいて壁画に利用された黒色顔料はカーボンブラックが一般的であるが、新王国時代にのみ Mn を主成分とする酸化物の利用が見られるとの報告があり(Lee and Quirke 2000)、筆者らが分析したアメンヘテプ 3 世王墓の壁画においては両者の利用が同定されている(高橋他 2013)。黒色顔料部分で蛍光 X 線分析を行った結果を図 5 に示した。黒色顔料には Mn が含まれておらず、カーボンブラックである可能性が考えられる。そこで白色顔料の場合と同様に、黒色顔料部分で顕微ラマン分光分析を行ったところ、参照物質として分析したカーボンブラックと同じく、1350 cm⁻¹ 付近の D-band と、1590 cm⁻¹ 付近の G-band が検出された(図 7 参照)。よってこの壁画に使用された黒色顔料はカーボンブラックであると同定された。

(4) 赤色、ピンク色および黄色顔料

赤色顔料部分の蛍光 X 線分析スペクトルの例として、WW #02 の分析結果を図 8 に示す。赤色顔料部分では Fe の明瞭なピークが検出されたことから、赤鉄鉱(hematite: α - Fe_2O_3)を主成分とするレッドオーカーが使用されたものと考えられる。そこで WW #02 において紫外可視吸収スペクトルを測定したところ、参照物質として測定した hematite の粉末と吸収および反射の波長が一致したことから、この顔料の色が hematite に起因するものであることが確かめられた(図 9 参照)。なお赤色顔料部分の蛍光 X 線スペクトルでは、hematite には含まれない AI、Si、K、Ti についてもピーク強度が増加しているが、これらはレッドオーカーに含まれるケイ酸塩鉱物および粘土鉱物に由来する元素と考えられる。実際に赤色顔料部分の顕微鏡写真(図 4c)を見ても、赤色粒子の他に白色および暗色の鉱物粒子が混在しており、hematite 単相ではないことは明らかである。なお東壁において、赤色顔料を用いた壁画の下書きが描かれているが、この下書き線(EW

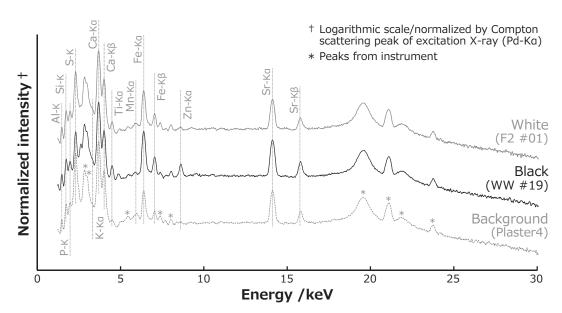


図 5 白色顔料部分 (F2 #01) および黒色顔料部分 (WW #19) の蛍光 X 線スペクトル Fig.5 X-ray fluorescence spectra of white pigment part (F2 #01) and black pigment part (WW #19)

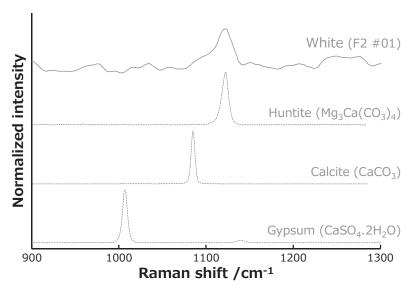


図 6 顕微ラマン分光分析による白色顔料(F2 #01)の相同定 Fig.6 Phase indenfication of white pigment (F2 #01) by micro-Raman spectroscopy

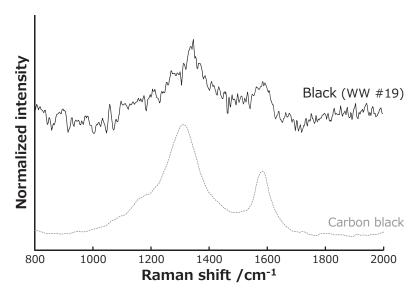


図 7 顕微ラマン分光分析による黒色顔料(WW #19)の相同定 Fig.7 Phase indenfication of black pigment (WW #19) by micro-Raman spectroscopy

#34、#35) についても蛍光 X 線分析により Fe が検出されたことから、壁画の彩色と同じくレッドオーカーであると考えられる。

この壁画には細部にピンク色の顔料を用いた彩色が施されているが、蛍光 X 線分析によりピンク色顔料部分(WW #24)からも Fe が検出された(図 8 参照)。また赤色顔料部分と同様に、紫外可視吸収スペクトル(図 9)より、このピンク色顔料部分においても主な着色要因として hematite が存在していることが明らかとなった。そこでピンク色顔料部分の顕微鏡写真(図 4d)を見てみると、先述の赤色顔料に数 + ~数百 μ m の白色粒子が混在したものであることが見て取れる。すなわちピンク色顔料は、赤色顔料であるレッドオーカーに、意図的に白色顔料を混合することで作られた混色顔料であると考えられる。なお、この混合された白色顔料が、彩色顔料と同じく huntite なのか、それともプラスターで利用されていた calcite ないし gypsum なのかは、今回の分析からは同定することができなかった。

続いて黄色顔料部分(WW #30)の蛍光 X 線分析の結果、図 10 に示すように、赤色顔料と同様に Fe の明瞭なピークが検出された。そこでこの黄色顔料の紫外可視吸収スペクトルを測定したところ、参照物質として測定した針鉄鉱(goethite: FeO(OH))と吸収および反射の波長が一致したことから(図 11 参照)、このgoethite を含む Fe の酸化鉱物(および水酸化鉱物)を主成分とする黄色顔料のイエローオーカーであると同定された。黄色顔料部分の蛍光 X 線スペクトルには Al、Si、K、Ti のピークが検出されており、また図 4e に示した顕微鏡写真を見てもわかるとおり、赤色顔料(レッドオーカー)と同じく一定量のケイ酸塩鉱物や粘土鉱物が含まれるものと考えられる。なお筆者らがアメンヘテプ 3 世王墓にて行った壁画の分析では、黄色彩色の一部において石黄(orpiment: As_2S_3)が同定されている(高橋他 2013)。エル・ゴレシーの研究によれば、古代エジプトにおける黄色顔料としての orpiment の利用に関して、第 18 王朝のトトメス 3 世期から第 19 王朝初期のラメセス 1 世期まで、および第 20 王朝のラメセス 4 世期が指摘されているが、これらの間については不明とされている(El Goresy 2000)。

先述のように、本研究では彩色顔料部分の蛍光 X 線スペクトルを解析し、顔料に含まれる元素の存在量(g/cm^2)の半定量化を行った。赤色顔料のレッドオーカーと黄色顔料のイエローオーカーは、どちらも Fe の酸化鉱物とケイ酸塩鉱物および粘土鉱物から成る天然土を用いた顔料である。いずれの顔料においても蛍光 X 線分析によって Fe と共に Al、Si、K、Ti が共通して検出されているが、これらは Fe 酸化鉱物と共に含まれ

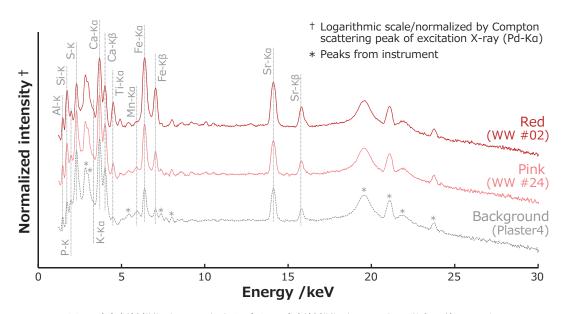


図 8 赤色顔料部分 (WW #02) およびピンク色顔料部分 (WW #24) の蛍光 X 線スペクトル Fig.8 X-ray fluorescence spectra of red pigment part (WW #02) and pink pigment part (WW #24)

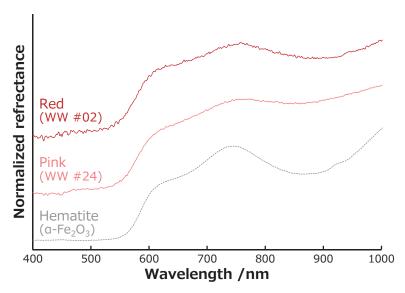


図 9 紫外可視吸収分光分析による赤色顔料(WW #02)およびピンク色顔料(WW #24)の相同定 Fig.9 Phase indenfications of red pigment (WW #02) and pink pigment (WW #24) by ultra-vioret visible absorption spectroscopy

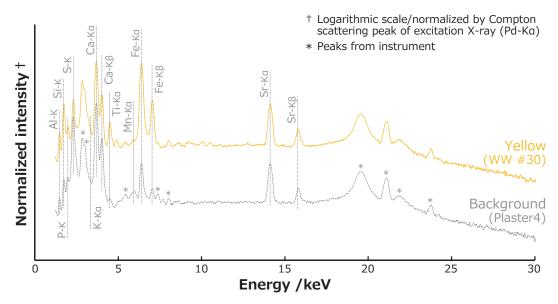


図 10 黄色顔料部分(WW #30)の蛍光 X 線スペクトル Fig.10 X-ray fluorescence spectrum of yellow pigment part (WW #30)

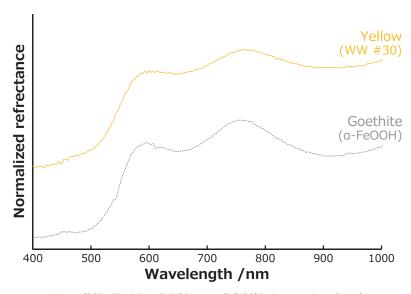


図 11 紫外可視吸収分光分析による黄色顔料(WW #30)の相同定 Fig.11 Phase indenfication of yellow pigment (WW #30) by ultra-vioret visible absorption spectroscopy

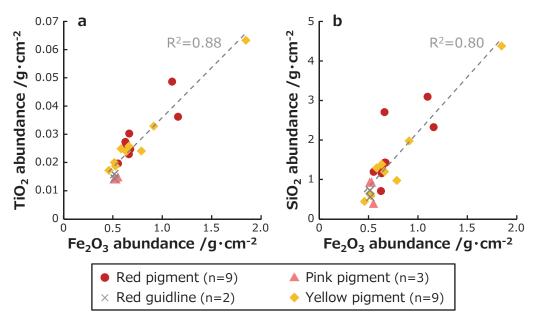


図 12 赤色および黄色顔料の組成的特性化:(a) Fe₂O₃ vs. TiO₂、(b) Fe₂O₃ vs. SiO₂ Fig.12 Chemical compositional characterizations of red and yellow pigments: (a) Fe₂O₃ vs. TiO₂, (b) Fe₂O₃ vs. SiO₂

るケイ酸塩鉱物や粘土鉱物に由来とするものと考えられ、人為的に添加されたものではない。よってその存在割合は、原料の採掘地の地質等により決定されると考えられ、これらの顔料の起源を考察する上で有用であると期待される。そこで今回分析した壁画および彩画片の赤色顔料部分 9点、ピンク色顔料部分 3点、赤色下書き線 2点、黄色顔料部分 9点について、 Fe_2O_3 存在量に対して TiO_2 存在量および SiO_2 存在量をプロットし、それぞれ図 12a および b に示した。Fe と Ti および Si の間には明確な量的相関性が見られ、図中に示すように決定係数は $R^2=0.88$ および 0.80 と高い値が得られた。なお図 12b において、赤色顔料部分で 1点だけ特異的に SiO_2 存在量が多い点(WW #26)があるが、非破壊非接触の分析においては表面に付着した砂の影響も考えられるため、これが有意な差であるかは判断できない。以上より、赤色顔料のレッドオーカーと黄色顔料のイエローオーカーの間に、高い組成的共通性が示された。これはすなわち、この壁画に使用されたレッドオーカーとイエローオーカーの原料が、地質的に近しい場所で採取されたことを意味している。今回の結果のみから具体的な採取地まで特定することはできないものの、天然土を原料とするこれらの顔料は入手が容易であるため、遺跡からあまり遠くない場所で得られたものと推定できる。同様の解析を他の遺跡の Fe 系顔料に対しても適用し、データを蓄積することで、その流通や変遷が明らかになっていくと期待される。

(5) 青色、水色および緑色顔料

蛍光 X線分析により、青色顔料部分(WW#08)からは顕著な量の Cu が検出された(図 13 参照)。Cu を 主成分とする青色顔料としては、天然鉱物の藍銅鉱(azurite: $Cu_3(CO_3)_2(OH)_2$)を粉末化したものが一般的であるが、古代エジプトにおいてはエジプシャン・ブルーと呼ばれる合成顔料が利用されていた。エジプシャン・ブルーはキュプロリバ鉱(cuprorivaite: $CaCuSi_4O_{10}$)を主成分とする合成顔料であり、銅、珪砂、石灰、融剤を原料として合成された(Jaksch et al. 1983)。その最古の利用例は第 1 王朝最後の王であるカア王治世のものとされ、広く普及するようになったのは第 4 王朝以降である(Hatton et al. 2008)。近年になって cuprorivaite が波長 $450\sim800$ nm の光(特に 630 nm 前後の赤色光)を吸収し、近赤外領域に特徴的な強い蛍光を発することが明らかとなった(Accorsi et al. 2009)。そこで本研究ではこの cuprorivaite の蛍光特性

水色顔料部分 (WW #25) についても蛍光 X 線分析を行った結果、青色顔料と同様に Cu および Si が特徴 的に検出された (図 13 参照)。よって青色顔料と同じくエジプシャン・ブルーが用いられているものと考えられる。 青色顔料部分と水色顔料部分で顕微鏡写真を比較してみると、図 4f に示した青色顔料部分では鮮やかな青色粒子が観察されたのに対し、図 4g に示した水色顔料部分では青色粒子と白色粒子が混在している様子が観察された。よって先述したピンク色顔料の場合と同様に、この水色顔料についても青色顔料(エジプシャン・ブルー)に何らかの白色顔料を混合した混色顔料であると同定された。

古代エジプトで利用された緑色顔料について、天然鉱物の孔雀石(malachite: Cu2(CO3)(OH)2)を粉末化 して用いた例も一部見つかっている一方で、「エジプシャン・グリーン」または「グリーン・フリット」と 呼ばれる合成物の利用が指摘されている (El Goresy 2000; Hatton et al. 2008; Lee and Quirke 2000; Pagès-Camagna and Colinart 2003)。エジプシャン・グリーンは第18王朝より登場する顔料であり、エジプシャン・ ブルーと共通の原料(銅、珪砂、石灰、融剤)を用いて合成されたと考えられるが、後述するようにその配 合比は異なる。このエジプシャン・グリーンの発色要因として、珪灰石 (wollastonite: $CaSiO_3$) の Ca^{2+} の一 部が Cu²⁺ に置換した物質と、Cu²⁺ を含むソーダ石灰ガラスの2種類が指摘されている。他にもパラアタカ マ石(paratacamite: Cu2(OH)3Cl)などの塩化物が用いられたとする報告もある(Lee and Quirke 2000)。ただ し第 18 王朝以前の緑色顔料に関しては疑問点も多く、エジプシャン・ブルーの風化物または副産物である という主張もある。なおエジプシャン・ブルーに黄色顔料を混ぜた混色顔料が用いられたケースもあり、実 際に筆者らがアメンヘテプ3世王墓にて行った壁画の化学調査では青色(エジプシャン・ブルー)と黄色(石 黄)の混色顔料が同定されている(高橋他 2013)。今回分析したコンスウエムヘブ墓の壁画について、緑色 顔料部分(SW #36)の蛍光 X 線分析の結果を図 15 に示した。Cu の明瞭なピークが検出され、上述したよ うな Cu を含むいずれかの緑色顔料であると考えられる。Cl はほとんど検出されていないことから、塩化物 系の緑色顔料は候補から除外され、malachite の粉末か、エジプシャン・グリーンか、あるいはエジプシャン・ ブルーと黄色顔料の混色が想定される。緑色顔料部分では Si のピークが特徴的に検出されているため、原 料として珪砂を用いた合成顔料であるエジプシャン・グリーンまたはエジプシャン・ブルーのいずれかが利 用されたものと期待される。そこで先述した cuprorivaite が持つ蛍光特性に着目して、緑色顔料部分で蛍光 スペクトルの測定を行い、青色顔料部分と比較したものを図16に示した。その結果、緑色顔料部分におい ても cuprorivaite 由来の蛍光が観測されたものの、その強度は青色顔料部分に比べて 1/5 以下であった。よっ て緑色顔料部分には cuprorivaite が含まれるが、主成分であるとは考えづらく、エジプシャン・ブルーと黄 色顔料の混色によるものではないと考えられる。そこで先行研究(Pagès-Camagna and Colinart 2003)に従っ てエジプシャン・グリーンを合成し、緑色顔料部分と紫外可視吸収スペクトルを比較した(図 17 参照)。ま た比較のために、図 17 には粉末化した malachite のスペクトルも示してある。図からわかるように、緑色顔 料の吸収は合成したエジプシャン・グリーンとよく一致した。この結果は、非破壊非接触のオンサイト分析 によって、エジプシャン・グリーンの利用を同定した初の成果である。さらに改めて蛍光 X 線スペクトル (図

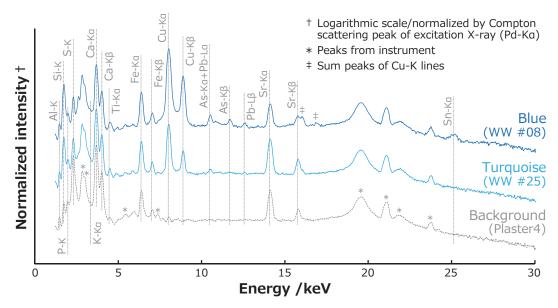


図 13 青色顔料部分(WW #08)および水色顔料部分(WW #25)の蛍光 X 線スペクトル Fig.13 X-ray fluorescence spectra of blue pigment part (WW #08) and turquoise pigment part (WW #25)

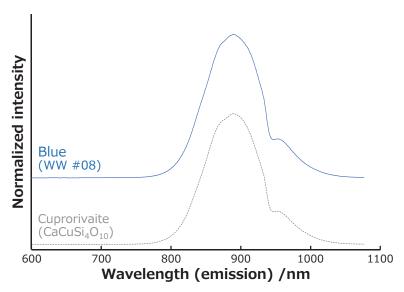


図 14 分光蛍光光度分析による青色顔料(WW #08)の相同定 Fig.14 Phase indentation of blue pigment (WW #08) by fluorescence spectroscopy

15) を見ると、青色顔料部分の結果と同様に、Cu原料に由来すると考えられる金属元素(As、Pb、Sn)が検出されていることがわかる。

すでに述べたとおり、今回同定されたエジプシャン・ブルーおよびエジプシャン・グリーンはどちらも 主成分として Cu を含む合成顔料であり、同種の原料が使用された。主な化学組成はどちらも SiO_2 、CaO、 CuO、Na,Oの4成分で表すことができるが、原料の配合比が異なるために、化学組成に差が生じる(Hatton et al. 2008)。本研究の蛍光 X 線分析では軽元素である Na は検出できず、Ca は下地からの影響があるため定 量対象外としたが、SiO2と CuO については存在量として半定量値が得られている。そこでエジプシャン・ ブルーおよびエジプシャン・グリーンのバルク組成の文献値と、本研究でオンサイト分析により得られた 両顔料の組成を比較した。G.D. ハットン (Hatton) らはアマルナを始めとするエジプト新王国時代の遺跡 より出土したエジプシャン・ブルー 22 点について、電子顕微鏡に接続したエネルギー分散型 X 線分光器を 用いてバルク組成を分析している (Hatton et al. 2008)。この分析値のうち SiO2 と CuO の質量濃度の比を取 ると、 $SiO_2/CuO = 6.6\pm3.8$ (平均 \pm 標準偏差)となる。同様に彼らはエジプシャン・グリーンについても 20 点の分析値(バルク組成)を報告しており、 $SiO_2/CuO = 13.7 \pm 4.8$ である。このようにエジプシャン・ブルー とエジプシャン・グリーンは組成が異なり、エジプシャン・グリーンの方が Cu の含有量が少ない。そこで 本研究の蛍光 X 線分析により算出した各分析点における存在量から、同様に SiO₂/CuO 比を算出した。図 13 および図15でスペクトルを示した青色顔料部分(WW#08)および緑色顔料部分(SW#36)について算出 した各元素の存在量から SiO_2 /CuO 比を求めると、それぞれ 4.7 (青色)、10.6 (緑色) となり、エジプシャ ン・ブルーとエジプシャン・グリーンの組成の差が定量的に確かめられた。またこれらの値は、ハットンら による文献値の組成とも比較的よく対応している (Hatton et al. 2008)。よって本研究で用いた顔料組成の半 定量化方法について、まだ試験段階ではあるものの、その信頼性が確かめられたと言えよう。続いて、これ ら2種類の顔料について、Cu原料由来と考えられるいくつかの金属元素が共通して検出されている。この うち Sn と As について、Cu との量的相関性を検証した。CuO 存在量が 0.1 g/cm² 以上となった青色・水色顔 料部分 13 点と、緑色顔料部分 7 点について、CuO 存在量に対して SnO, 存在量および As₂O3 存在量をプロッ トし、それぞれ図 18a および b とした。今回分析した壁画の青色顔料 (エジプシャン・ブルー)と緑色顔料 (エ ジプシャン・グリーン) は、Cu と Sn および As の間に明確な量的相関性があり、またこれらの含有割合が 両顔料で同じであったことから、同じ Cu 原料を用いて合成されたものであることが明らかとなった。ここ で、蛍光 X 線分析の半定量値から、使用された Cu 原料の種類の推定を行う。図 18a および b に示した近似 直線の傾きを求めると、CuO vs. $\mathrm{SnO_2}$ (図 18a)では 0.138、CuO vs. $\mathrm{As_2O_3}$ (図 18b)では 0.005 となり、こ れらの値は Cu 原料における Cu と Sn および As の含有割合と考えることができる。Sn と Cu の合金を青銅、 As と Cu の合金をヒ素銅と呼ぶが、新王国時代エジプトではこれら2種類の合金が利用されており、ガラス やファイアンス生産においてそのスクラップや副産物が再利用されていた(Kaczmarczyk and Hedges 1983; Shortland and Eremin 2006)。これらの合金に関する詳細は筆者らの先行研究(阿部他 2016)を参照のこと。 As や Sn は天然の Cu 鉱石中にも元素置換または共生鉱物の形でしばしば不純物として混入するが、P.R. モー レー (Moorey) や J. オグデン (Ogden) によれば、金属銅製品に意図的な As が添加されていたか否か (つ まりヒ素銅か否か)の判断として、As 濃度 1 wt% が目安になるとしている(Moorey 1994; Ogden 1999)。同 様に青銅の判定においては、Sn 濃度 5 wt% が一般的な目安となる。よって今回分析した青色顔料(エジプシャ ン・ブルー) および緑色顔料 (エジプシャン・グリーン) については、As は Cu 鉱石由来の不純物であった のに対し、Sn は意図的な添加が行われたもの、すなわち青銅が Cu 原料として使用されていたものと考えら れる。ここでエル・ゴレシーは、新王国時代のエジプシャン・ブルー/グリーンについて不純物元素の変遷 を報告しており、第18王朝のトトメス3世期以前はAsが含まれていたものの、同治世からSnの混入(つ

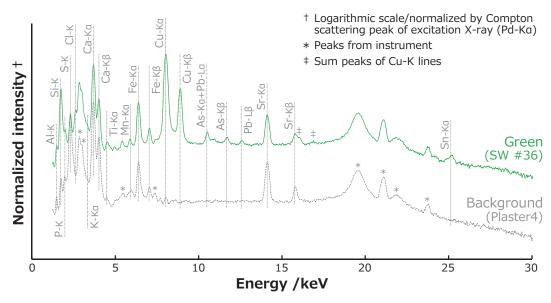


図 15 緑色顔料部分(SW #36)の蛍光 X 線スペクトル Fig.15 X-ray fluorescence spectrum of green pigment part (SW #36)

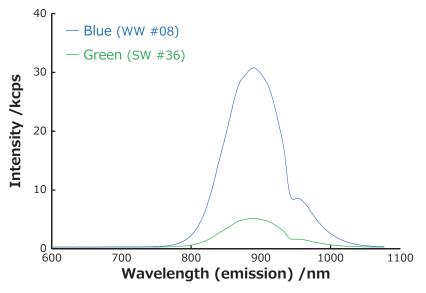


図 16 青色顔料部分(WW #08)と緑色顔料部分(SW #36)の蛍光スペクトル比較 Fig.16 Comparison of fluorescence spectra of blue pigment part (WW #08) and green pigment part (SW #36)

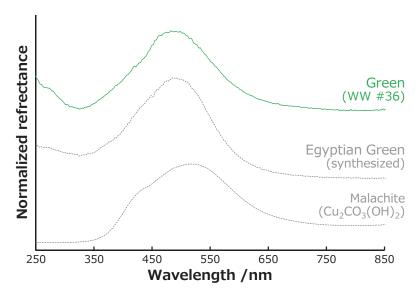


図 17 紫外可視吸収分光分析による緑色顔料部分(SW #36)の相同定 Fig.17 Phase indenfication of green pigment (SW #36) by ultra-vioret visible absorption spectroscopy

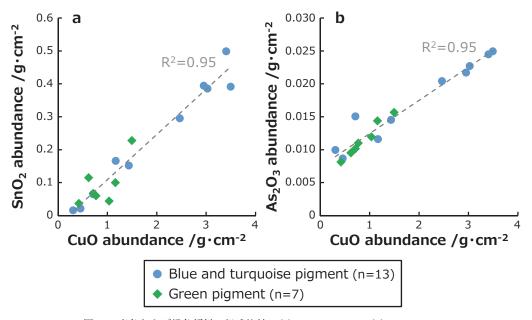


図 18 青色および緑色顔料の組成比較:(a) CuO vs. SnO₂、(b) CuO vs. As₂O₃ Fig.18 Chemical compositional characterizations of blue and green pigments: (a) CuO vs. SnO₂, (b) CuO vs. As₂O₃

まり青銅の再利用)に切り替わり、第 19 王朝のラメセス 2 世期からは Pb の混入が見られるようになり、これらは古代エジプトにおける銅合金の生産技術を反映していると指摘している(El Goresy 2000)。今回分析したエジプシャン・ブルー/グリーンはほとんど Pb を含まないものであり、彼の研究に照らし合わせれば、ラメセス 2 世期以前のものということになる。ただし当時エジプトで銅合金およびエジプシャン・ブルー/グリーンを生産していた拠点は複数あったと考えられ、彼の指摘した組成変遷がエジプト全土の資料に適用できるとは考えづらい。ただしいずれにせよ、遺跡内で実施した非破壊非接触の蛍光 X 線分析から顔料の組成を定量的に比較することが可能となり、結果として使用された原料の共通性等に関する議論が可能となった点は、本研究の特筆すべき成果の一つと言えよう。

4. まとめ

コンスウエムへブ墓前室に残されていた壁画および出土した彩画片に対して、可搬型分析装置を用いた非破壊非接触のオンサイト化学分析を実施した。複数の分光分析を多角的に導入することで、壁画の彩色に使用された一連の顔料を正確に同定することができた。また、従来は定性的に利用される蛍光 X 線分析を定量的に解析することで、各顔料に含まれる元素の組成的特徴を明らかにすることが可能となった。

註

- 1) 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。
- 2) 筆者らが本研究と同様の装置を用いてガラスやファイアンス、金属製品の化学組成分析結果を報告しているが(例えば、阿部他 2016)、X線が高い透過力を持つという点に注意が必要である。非破壊の蛍光 X線分析により化学組成を算出する場合、分析対象が X線の透過影響を受けない十分な厚さを有し、かつ表面から内部まで組成が一定であるという仮定が必要となるが、壁画に塗布された顔料の場合にはこれらの仮定が成立しない。これは、X線の透過によって表層の顔料だけでなく、少なからず下地(プラスターなど)からの情報が検出されるためである。例えば、完全に同一な化学組成を持つ顔料であっても、塗布された厚さが異なる場合には異なる信号(スペクトル)が得られるため、そこから算出される見かけ上の化学組成は一致しない。

参考文献

- Abe, Y., Harimoto, R., Kikugawa, T., Yazawa, K., Nishisaka, A., Kawai, N., Yoshimura, S. and Nakai, I.
 - 2012 "Transition in the use of cobalt-blue colorant in the New Kingdom of Egypt", Journal of Archaeological Science 39, pp.1793-1808.
- Abe, Y., Nakai, I., Takahashi, K., Kawai, N. and Yoshimura, S.
 - 2009 "On-site analysis of archaeological artifacts excavated from the site on the outcrop at Northwest Saqqara, Egypt, by using a newly developed portable fluorescence spectrometer and diffractometer", *Analytical and Bioanalytical Chemistry* 395, pp.1987-1996.
- Accorsi, G., Verri, G., Bolognesi, M., Armaroli, N., Clementi, C., Milianid, C. and Romanic, A.
 - 2009 "The exceptional near-infrared luminescence properties of cuprorivaite (Egyptian blue)", *Chemical Communications*, 2009, 23, pp.3392-3394.

Blom-Böer, I.

- 1994 "Zusammensetzung altägyptischer Farbpigmente und ihre Herkunftslagerstätten in Zeit und Raum", Oudheidkundige Mededelingen uit het Rijksmuseum van Oudheden te Leiden 74, pp.55-107.
- Dodd, L.S., Scott, D.A., Nikias, G.A., Au, J. and Ramos, A.
 - 2009 "The ritual significance of colour: Specialised pigments in a wooden Egyptian funerary statuette from New Kingdom", *The Journal of Egyptian Archaeology* 95, pp.83-104.

Downs, R.T.

2006 "The RRUFF Project: an integrated study of the chemistry, crystallography, Raman and infrared spectroscopy of minerals", Program and Abstracts of the 19th General Meeting of the International Mineralogical Association in Kobe,

Japan, O03-13.

Eastaugh, N., Walsh, V., Chaplin, T. and Siddall, R.

2005 Pigment Compendium: A Dictionary of Historical Pigments, Oxford.

El Goresy, A.

2000 "Polychromatic wall painting decorations in monuments of pharaonic Egypt: compositions, chronology and painting techniques", in Sherratt, S. (ed.), *Proceedings of the First International Symposium: "The Wall Paintings of Thera", Volume* I, Athens, pp.49-70.

Hatton, G.D., Shortland, A.J. and Tite, M.S.

2008 "The production technology of Egyptian blue and green frits from second millennium BC Egypt and Mesopotamia", Journal of Archaeological Science 35, pp.1591-1604.

Heywood, A.

2001 "The Use of Huntite in Ancient Egypt", Met Objectives 3, pp.1-3.

IAEA

2000 WinQXAS, Quantitative X-ray Analysis System for Windows, A Software from International Atomic Energy Agency.

Jaksch, H., Seipel, W., Weiner, K. L. and El Goresy, A.

1983 "Egyptian blue - Cuprorivaite a window to ancient Egyptian technology", Naturwissenschaften 70, pp.525-535.

Kaczmarczyk, A. and Hedges, R.E.M.

1983 Ancient Egyptian faience: an analytical survey of Egyptian faience from predynastic to Roman times, London.

Lee, L. and Quirke, S.

2000 "Painting materials", in Nicholson, P.T. and Shaw, I. (eds.), *Ancient Egyptian Materials and Technology*, Cambridge, pp.104-120.

Moorey, P.R.

1994 Ancient Mesopotamian materials and industries: the archaeological evidence, Oxford.

Nakai, I., Yamada, S., Terada, Y., Shindo, Y. and Utaka, T.

2005 "Development of a portable X-ray fluorescence spectrometer equipped with two monochromatic X-ray sources and silicon drift detector and field analysis of Islamic glasses at an excavation site in Egypt", *X-ray Spectrometry* 34, pp.46-51.

Ogden, J.

2000 "Metals", in Nicholson, P.T. and Shaw, I. (eds.), *Ancient Egyptian Materials and Technology*, Cambridge, pp.148-176. Pagès-Camagna, S. and Colinart, S.

2003 "The Egyptian green pigment: its manufacturing process and links to Egyptian blue", *Archaeometry* 45, pp.637-658. Perthuisot, J.-P., Castanier, S. and Maurin, A.

1990 "La Huntite (CaMg3CO4) de la Sebkha el -Melah (Zarzis, Tunisie): un exemple de microbiodiagenèse carbonatogène", Bulletin de la Société Géologique de France 8, pp.657-666.

Shortland, A.J. and Eremin, K.

2006 "The analysis of second millennium glass from Egypt and Mesopotamia, Part 1: new WDS analyses", *Archaeometry* 48, pp.581-605

阿部善也、大越あや、内沼美弥、扇谷依李

2016 「非破壊オンサイト蛍光 X 線分析によるアブ・シール南丘陵遺跡集団埋葬墓出土遺物の化学的特性化」、『エジプト学研究』第22号、日本エジプト学会、pp.69-89.

阿部善也、遠山加奈枝、中村彩奈、大越あや、中井 泉

2013 「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」、『エジプト学研究』別冊第16号、早稲田大学エジプト学会、pp.67-77.

阿部善也、張本路丹、中井 泉

2009 「X線化学分析」、『エジプト学研究』別冊第13号、早稲田大学エジプト学会、pp.37-76.

2010 「化学分析」、『エジプト学研究』別冊第 14 号、早稲田大学エジプト学会、pp.94-116.

和泉亜理沙

2017 『東京理科大学総合化学研究科総合化学専攻 2016 年度修士論文』.

真田貴志、保倉明子、中井 泉、前尾修司、野村恵章、谷口一雄、宇高 忠、吉村作治

2003 「新開発のポータブル蛍光 X 線分析装置によるエジプト、アブ・シール南丘陵遺跡出土遺物のその場分析」、『X 線分析の進歩』34、日本分析化学会、pp.289-306.

高橋寿光、阿部善也

2011 「古代エジプト、新王国時代の青色彩文土器の起源に関する一考察 — アブ・シール南丘陵遺跡出土資料の X 線化学分析から」、『西アジア考古学』12、西アジア考古学会、pp.79-95.

高橋寿光、西坂朗子、阿部善也、中村彩奈、中井 泉、吉村作治

2013 「アメンヘテプ 3 世王墓壁画に使用された顔料の化学分析」、『エジプト学研究』第 19 号、早稲田大学エジプト学会、pp.59-96.

中井 泉、加藤慎啓、柏原輝彦、熊谷和博、保倉明子

2006 「X線化学分析」、『エジプト学研究』別冊第10号、早稲田大学エジプト学会、pp.56-83.

中井 泉、K. タンタラカーン、阿部善也

2008 「X線化学分析」、『エジプト学研究』別冊第 12 号、早稲田大学エジプト学会、pp.68-87.

中井 泉、前尾修司、田代哲也、K. タンタラカーン、宇高 忠、谷口一雄

2007 「ポータブル粉末 X 線回折装置の開発と考古遺物のその場分析への応用」、『X 線分析の進歩』38、日本分析化 学会、pp.371-386.

前尾修司、中井 泉、野村恵章、山尾博行、谷口一雄

2003 「可搬型 X 線回折装置の試作」、『X 線分析の進歩』34、日本分析化学会、pp.125-132.

エジプト学研究 第23号 2017年3月31日発行

発行所 / 日本エジプト学会 〒 169-8050 東京都新宿区戸塚町 1-104 早稲田大学エジプト学研究所内 発行人 / 吉村作治 The Journal of Egyptian Studies No.23 Published date: 31 March 2017

Published by The Japan Egyptological Society
1-104, Totsuka-chyo, Shinjyuku-ku, Tokyo, 169-8050, Japan
© The Japan Egyptological Society