

縄文土器製作の基礎的研究

二宮修治・近藤久美子・田中順一
大沢眞澄・後藤和民*・庄司 克*

化学教室

(1979年4月5日受理)

1. はじめに

縄文土器の製作技術に関しては、出土した土器試料の考察を基礎として、原料粘土の採取から、成型、文様のつけ方、焼成に至るまで従来考古学的に多くの論議がなされている。また土器類の材質の研究^{1,2)}も含めて、その焼成温度の検討もアルミナの溶出比,^{3,4)}熱的分析,⁵⁻¹³⁾熱ルミネッセンス,¹⁴⁾メスバウアー分光法,¹⁵⁻²¹⁾電子スピン共鳴法,²²⁾鉱物の熱変化,^{23,24)}釉の融解,²⁵⁾熱電対などによる測定²⁶⁻²⁸⁾など諸種の自然科学的方法によりなされ、縄文土器に対しては 550° ~ 950 °C という温度が提出されている。

しかしながら、その多くは出土試料の分析・検討より得られた情報の解析から、胎土の化学的ならびに鉱物的組成の決定、焼成条件（温度、雰囲気、焼成法など）の推定、ひいては産地分析に関する問題などへのアプローチがなされている。根本的課題としての焼成前の組成が不明のまま、即ち焼成にもとづいておこる種々の変化を考慮せずに、原料物質を仮定することにより論議がすすめられている場合が多い。

この欠如部分を補うものとして、実験的な土器製作の研究が多面的になされている現状であるが、当時の製作技法、条件に近似した方法が有意義であることは論をまたないところであろう。かかる観点より千葉市加曽利貝塚博物館において実施されている野天での縄文土器焼成にもとづく土器複製^{25,29)}関係の試料を中心に、素地土として粘土に諸種混合物が含有される場合の焼成条件、それに伴う土器色相の変化ならびに化学組成にもとづく産地分析の可能性などの基礎的問題に関する検討を行なった。実際の試料として、加曽利貝塚出土の縄文土器についても同様の検討、考察を行なった。

熱過程の解析は示差熱分析、熱重量測定、X線回折分析により、また主成分化学組成の検討には蛍光X線分析法（波長分散型）を用いた。

2. 試 料

2.1 縄文土器製作実験関係試料

原料物質は、千葉市加曽利貝塚対岸、滑橋貝塚付近の露頭より採取したもの5種類で、露頭は層位的に上部より現地表である腐蝕土（Bと表記）、関東ローム（L）、粘質の赤色粘土（R）、青白色粘土（W、常総粘土層）、砂（S、成田層）より成る。採取した粘土は、乾燥後、粉碎し細粒状にした。これら5種類の原料を適宜混合し、素地土を調製した。

*千葉市加曽利貝塚博物館

Table 1. Compositions of Test plates and Reproduced potteries (%)

Component	B	L	R	W	S (%)
Test plates					
No. 2	0	20	15	35	30
4	0	20	20	40	20
6	0	20	20	50	10
7	10	10	23	57	0
8	0	10	23	57	10
9	5	5	25	65	0
10	0	5	25	65	5
Reproduced potteries					
20	0	20	20	50	10
21	10	20	20	50	0
Middle Jomon					
Thick type	0	20	10	50	20
Late Jomon					
Thin type	20	10	20	50	0

焼成実験に用いた試験板 (約100×100×10mm, No. 2, 4, 6, 7, 8, 9, 10) および複製土器 (No. 20, 21) は, Table 1 に示す混合比をもつ素地土により作製したものである。なお, 焼成は, 野天でまきにより30~40分間行なった。

2.2 縄文土器出土試料

土器試料は, 加曽利貝塚にて表面採集したもの20点で, 時代順に北貝塚出土の加曽利EⅠ式同EⅡ式, 南貝塚出土の堀之内Ⅰ式, 加曽利BⅡ式, 安行Ⅰ式の5型式各4点ずつである。

3. 実験方法

土器試料は, 純水にて浸漬洗浄後ステンレス製乳鉢で粉碎し, さらにメノウ乳鉢で325 mesh以下まで細粉化した。なお, 分析に供した試料はすべて風乾状態のものである。

3.1 熱分析

焼成前後の熱的变化, 熱的過程の追跡には, 理学電機製マイクロ型高温示差熱天秤 (Rigaku 8076D型)を用い, 示差熱分析(DTA; differential thermal anlysis), 熱重量測定 (TG; thermogravimetry)を行なった。本装置による測定条件をTable 2に示す。標準試料には, α -アルミナ(α - Al_2O_3)を用い, 試料皿には白金試料皿 (5.2 mm ϕ × 5.0mm)を用いた。測定に供した分析試料

Table 2. Conditions for TG-DTA

Standard sample	α - Al_2O_3
Atmosphere	in Air
Pan	Pt
Thermo-couples	Pt - Pt Rh
Heating rate	10°C/min
TG range	50mg
DTA range	± 50 μ V
Chart speed	2.5 mm/min

Rigaku Denki TG-DTA 8076D

は約50mgである。

3.2 X線回折分析

諸種鉱物の同定には、理学電機製ガイガーフレックスを用いた。X線管球は銅 (40kV, 20mA) フィルターにはニッケルを使用。

回折用試料の調製にさいしては、大部分の試料はアルミニウム・ホルダーを用いたが、量の少ない試料については、ガラス凹板ホルダーを用いた。

3.3 蛍光X線分析 (XRF)

化学組成、主として主成分元素存在量の測定には、理学電機製蛍光X線分析装置 (波長分散型) を用いた。X線管球はクロム、分光結晶は LiF (フッ化リチウム; Fe, Ti, Sr の測定) および EDDT (エチレンジアミン α -酒石酸; Si, Al, K, Ca の測定) を用いた。

粉末試料 1 g と、バインダーおよび稀釈剤としてのセルロース粉末 2 g を、Spex 社製ミキサーミル (#5100) で 5 分間混合し、油圧プレスにて加压成型 (40mm の円盤状) し、測定試料とした。本法によって得られた蛍光X線スペクトルの一例を Fig. 1 に示す。定量にさいしては、ピークとその前後のバックグラウンドの 3 点について計測を行ない、ネットピークの計数値を求めた。

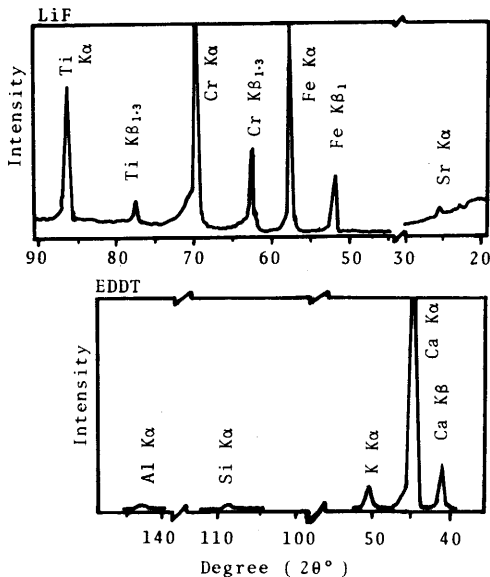


Fig. 1 X-ray fluorescence spectrum of Jomon pottery (Kasori EI-1)

Target excitation: Cr-tube 50kV 24mA

Analyzing crystal	Detector
Li F	Scintillation
	counter
EDDT	Gas-flow
	proportional
	counter

Atmosphere: Vacuum

比較標準としては、地質調査所標準岩石 JG-1 (花崗セン緑岩) および JB-1 (玄武岩) を用いた。本法により得られた定量値を機器中性子放射化分析法 (INAA) および原子吸光分析法による同一試料の定量値と比較して定量性の検討を行なったが、その一例として鉄の場合を Fig. 2 に示す。機器中性子放射化

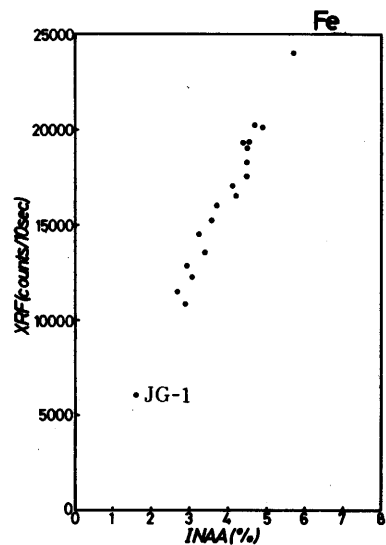


Fig. 2 Correlation diagram between INAA and XRF for Fe.

分析で得られた定量値と、蛍光X線分析法で得られた計数値は比較的良い相関を示す (INAAの値に対し、相対誤差 $\pm 10\%$ 以内)。原子吸光分析法の場合でも同様な結果が得られた。このことは土器試料においては、マトリックスが比較的類似しているためであると考えられる。このように、本法は類似したマトリックスをもつ試料に対して、半定量分析法としては、簡便かつ有用な方法であろう。

4. 結果および考察

4.1 焼成条件の検討

4.1.1 原料物質

縄文土器の主材料は粘土であるが、粘土だけでは土器を作ることは不可能であるといわれている。この理由として、ねばりが強すぎて成形作業が困難であること、可塑性に乏しいこと、収縮が激しく、ひび割れが生じ易いことなどが挙げられる。縄文土器には種々の混和剤の混入が認められ、中期の阿玉台式土器—黒雲母、勝坂式土器—花崗岩の腐蝕土、阿高式土器—滑石などの特殊な混和物は別として、一般には縄文時代中期—後期の土器の胎土中には、腐蝕土、ローム、砂などの混和物が含まれていると考えられている。本実験の土器の素地土は、粘土にこれらの混和物をまぜてねりあげ、つくられたものである。

各種原料物質の示差熱分析曲線を Fig. 3 に示す。腐蝕土 (B) では、有機物の燃焼ピーク (300 ~ 450 °C 付近の発熱ピーク) が顕著である。

ローム (L) では、アロフエン (allophane; 100 °C 付近, 850 °C 付近ピーク), 赤色粘土 (R), 青白色粘土 (W) では、ハロイサイト (halloysite; 500 °C 付近, 900 °C, 1130 °C 付近のピーク) など粘土鉱物に対応するピークが認められる。このことはX線回折の結果からも確認される。砂 (S) では、粘土鉱物の存在も認められるが、その量は少ないものと考えられる。これは、熱重量減少が、赤色粘土、青白色粘土ではそれぞれ17%, 12%であるのに対し、砂 (S) では5%であることから明らかである。なお574 °Cの吸熱ピークは石英にもとづくものである。

4.1.2 試験板

原料物質の混合比を変化させた場合、熱的過程にどのような差異が生ずるかを検討するために、原料物質の混合比を変えて7種類の素地土を調製し、試験板を作製、焼成実験を行なった。これらの示差熱分析の結果を原料とともに Fig. 4 に示す (Table 1 参照)。試験板のA, Bは、それぞれ焼成前、焼成後に対応するものである。図中の矢印記号は、示差熱分析曲線における吸

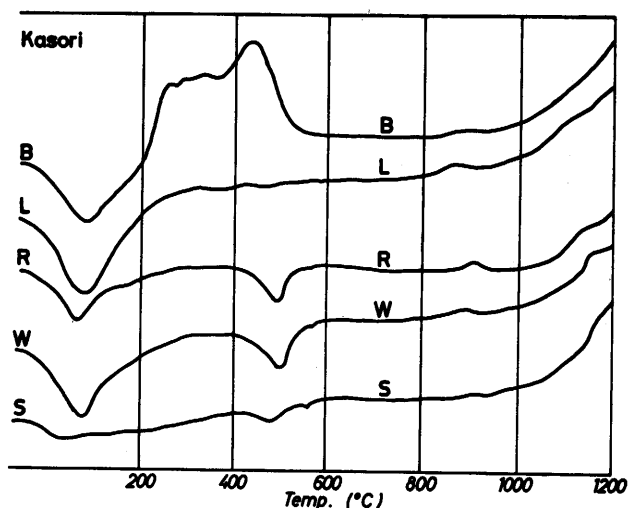


Fig. 3 DTA curves of Raw materials

Analytical conditions see Table 2.

熱 (↓) および発熱 (↑) ピークの位置 (温度) を表わす。

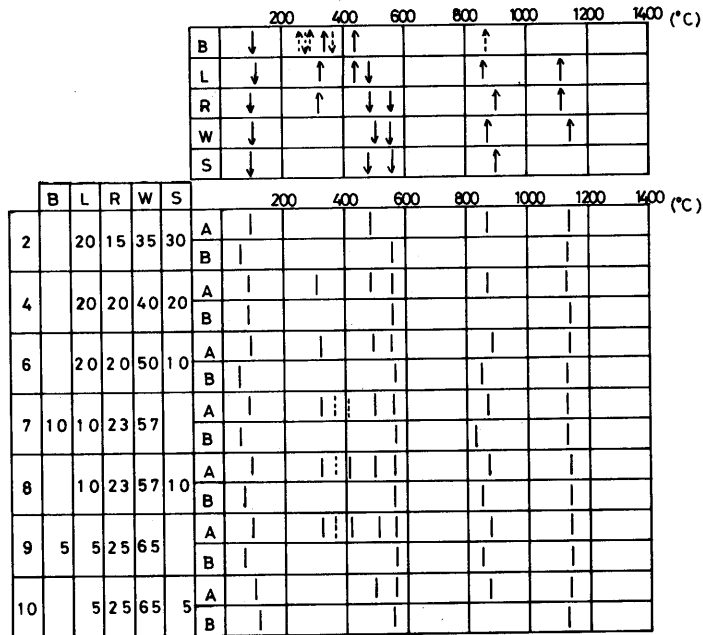


Fig. 4 Results of DTA for Raw materials
and Test plates
(see Table 1)

焼成前 (A) では、原料物質の混合比を反映して若干異なるパターンを示すが、焼成後 (B) では、殆んど同一のパターンを示し、試験板 No. 6, 7, 8, 9 は、500℃以上900℃以下で、試験板 No. 2, 4, 10 は、さらに900℃をこえる温度で、焼成されていると推定される。

また、熱重量測定の結果も同様の傾向を示し、焼成前 (A) の試料は、原料物質の混合比に対応して重量減少は15～22%の幅があるが、焼成後 (B) の試料では、500℃以上900℃以下で焼成された試験板については5%、900℃をこえて焼成された試験板については、1%とまとまった値を示している。

なお、上記の原料比の異なる試験板はいずれも焼成による土器製作が可能であったが、熱膨張率の大きいクリストバライトを顕著に含む粘土 (飯能市南部採取) の場合には、焼成による土器製作が不可能な例も存在する。

4.1.3 複製土器

実際に土器を製作する場合、加曽利貝塚博物館における試験板による実験結果より、縄文中期の厚手式土器としては、W : 50%, R : 20%, L : 20%, S : 10%, 縄文後期の薄手式土器としては、W : 50%, R : 20%, L : 20%, B : 10% (Table 1) の混合比が適当であると考えられている。本実験で用いた複製土器 No. 20, No. 21 は、それぞれ縄文中期、縄文後期の土器形式に近い混合比をもつものである。

これら複製土器およびその素地土の示差熱分析曲線を Fig. 5, 6 に示す。A は素地土 (焼成前)

Bは複製土器（焼成後）の場合を表わしている。

Fig. 5において、素地土(A)にみられる粘土鉱物の構造水の脱離を示す500℃付近の吸熱ピークは、複製土器(B)でもみられ、この土器は500℃をこえない温度で焼成されたと考えられる。ただし、この複製土器は器壁の厚さが1cmにもおよび、やや厚すぎた感のあるものであった。一方、縄文後期の土器の混合比をもつNo21複製土器の場合(Fig. 6)では、素地土(A)にみられる500℃付近の吸熱ピークは、複製土器(B)では認められない。このことよりNo21の複製土器は500℃以上で焼成されたと考えられ、さらに、900℃付近の粘土鉱物の結晶転移の発熱ピークがA、B共に認められることにより、この土器は900℃までは熱を受けていないと考えられる。

以上の結果より、No20の複製土器は500℃をこえない温度で、No21の複製土器は500℃以上900℃以下で焼成されたものと推定することができる。

以上のように素地土の原料物質の組成に違いがあっても、焼成後の示差熱分析曲線は、その焼成温度に対応して殆んど類似のパターンを示す。このため、焼成前の組成が不明な出土土器試料の場合でも、その温度推定は可能となろう。しかし、示差熱分析では、500℃以上900℃以下の範囲内において、細かく焼成温度を推定することは困難である。

さらに温度目盛を細分化するために、再加熱による鉱物の消長をX線回折により検討した例をFig. 7に示す。試料は、試験板No.8であり、Aは、焼成前の素地土、Bは焼成後の試験板を示す。2 θ , 26.6°の石英の強度を100として示してある。焼成前(A)では、石英、長石の他に8.8°, 20°付近に粘土鉱物が認められるが、500℃で粘土鉱物の消失、1300℃での長石の消失、ムライト、クリストバライトの生成がみられる。しかし、その中間温度においては顕著な変化は認められず、この場合は、余り有効な手段とはなり得ない。

4.1.4 縄文土器の焼成温度

実際の土器試料の例として、加曽利貝塚出土土器の示差熱分析の結果をFig. 8に示す。時代

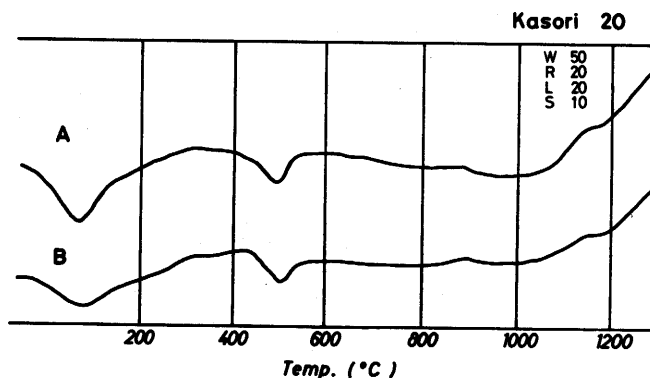


Fig. 5 DTA curves of Reproduced pottery (Kasori No. 20)

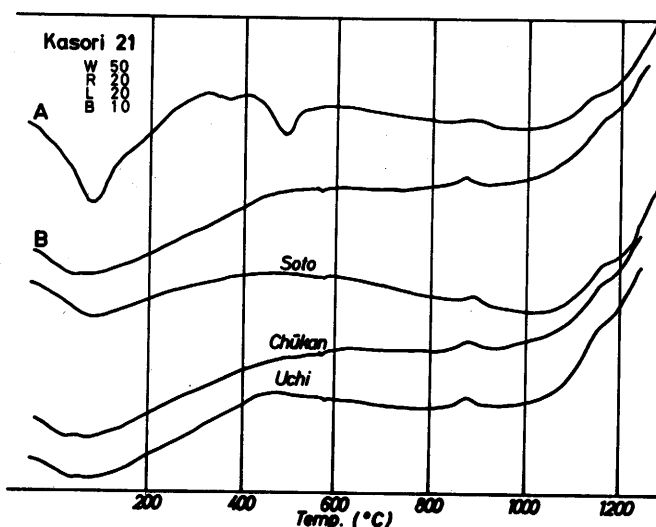


Fig. 6 DTA curves of Reproduced pottery (Kasori No. 21)

順に下から北貝塚出土の加曾利EⅠ式, 同EⅡ式, 南貝塚出土の堀之内Ⅰ式, 加曾利BⅡ式, 安行Ⅰ式と配列してある。

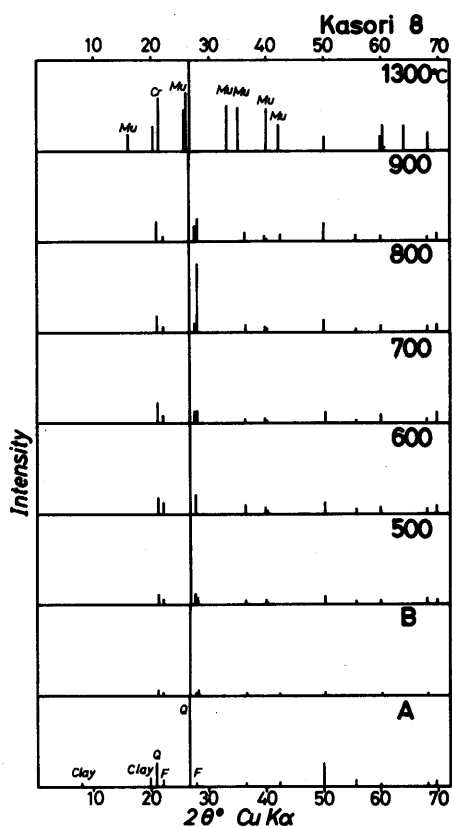


Fig. 7 X-ray diffraction patterns of Test plate (No. 8)
Target excitation: Cu-tube
40kV 20mA
Filter: Ni Slit: Divergence 0.5,
Receiving 0.3, Scatter 0.5

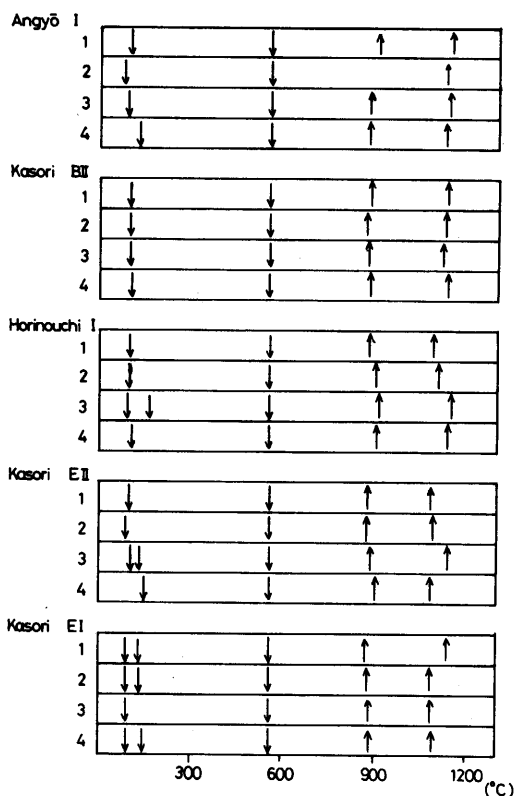


Fig. 8 Results of DTA for Jomon potteries

いずれも、試験板、複製土器での示差熱分析曲線と同様のパターンが得られた。安行Ⅰ式土器のNo.2を除いては、500℃～900℃の温度範囲で焼成されたものと推定される。またこれらの試料の熱重量減少は、12～15%である。一方、安行Ⅰ式No.2は、900℃の発熱ピークが認められないこと、熱重量減少が8%と低いことから900℃をこえて焼成されたものと推定される。また、この土器が900℃以上で焼成されていることから、他の土器も900℃に近い温度で焼成されている可能性はあるものと考えられる。なお、X線回折による鉱物の検討でも、焼成温度の細分化は明確にはならなかった。

主として熱分析にもとづく縄文土器の焼成温度は、本実験における試験板、複製土器、出土土器の検討では、粘土鉱物にもとづく吸熱あるいは発熱ピークの存否より下限として500℃は

こえているが、上限としては900℃近傍のピークは希には消失しているが、殆んどの試料の場合にはその存在が認められるので、900℃に近いが、それをこえない程度の温度であろうと推定することが可能である。

上限の温度に関しては、土器焼成実験において熱電対高温計などによる温度の直接測定²⁶⁻²⁸⁾でも700°~900℃に達することが認められており、また釉の融解²⁵⁾にもとづく推定でも800°~950℃の値が得られている。このように上限としては、900℃近くにまで達することは認められるが、焼成実験よりみても、その温度は焼成する土器の大きさ、厚さ、同時に焼く土器の数、燃料(まき)の量、時間、風向などに大きく影響されることは明らかである。つまり、窯を用いない野天での土器焼成時の温度は、各々の場合に相当の幅をもつことになり、個々の土器について精密な温度を求めることは余り意味をもたないことになろう。結局、窯を用いない場合の土器焼成の温度は上限が900℃に近いということのみであり、事実、焼成温度が500℃にも達していない例^{22, 30, 31)}が最近見出されている。焼成温度の相違は、時代的にみて技術的にあるレベルにまで達しなかった場合と、同時代にあっても焼成時の条件の差にもとづく場合も認められるであろうし、考古学的な検討、考察が必要とされるゆえんである。

実際の出土縄文土器には、その断面が外および内側は赤褐色で、中間部が灰黒色を呈する層状構造(いわゆるサンドイッチ構造)を示すことはしばしば観察されているところであり、この色相の変化は焼成時の雰囲気によって帰せられている。

複製土器No.21の場合、その層構造が顕著に認められる部位について、黒色中心部(uchi)、赤褐色外側部(soto)、その中間部(chukan)と分取した試料について熱分析を行った。その結果をFig. 6に示す。ほぼ同一のパターンを示し、層状構造各部分について温度差はないと推定される。また蛍光X線分析による主成分化学組成をFig. 9に示す(ピーク高表示)。他の部位として底部(soko)、ならびに焼成前の原料(genryō)も一緒に示してある。主成分化学組成は各部分で大体同一と認められ、X線回折による鉱物組成も各部分同一であることにより、土器断面の色相の変化は、温度、鉱物、鉄存在量に依存するものでなく、空気の流通にもとづく鉄(Ⅱ)、鉄(Ⅲ)の存在比の変化⁹⁾にもとづくものと考えられる。なお、Fig. 9より縄文土器焼成の温度では主成分元素(Fe, Ti, K, Sr, Ca)の焼成にもとづく変動はないものと認められる。

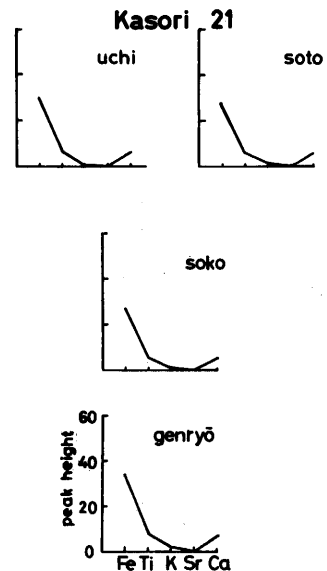


Fig. 9 Elemental abundance patterns of Reproduced potteries (Kasori No. 21)

4.2 化学組成

土器の化学組成よりその産地(原料採取地)を追究する場合、現存する粘土類の組成との対比が前提となるが、土器製作のさいに素地土が諸種原料の混合物であった場合、一般的に出土試料と現産地との関係は多くの検討すべき問題を含むことになる。しかし混和物が特殊な物質やある特定元素を含有するときには、逆にそのものが産地推定の指標となり得る場合も存在する。

素地土に諸種物質が混合した例として、土器復原実験のさいの原料5種と各試験板について

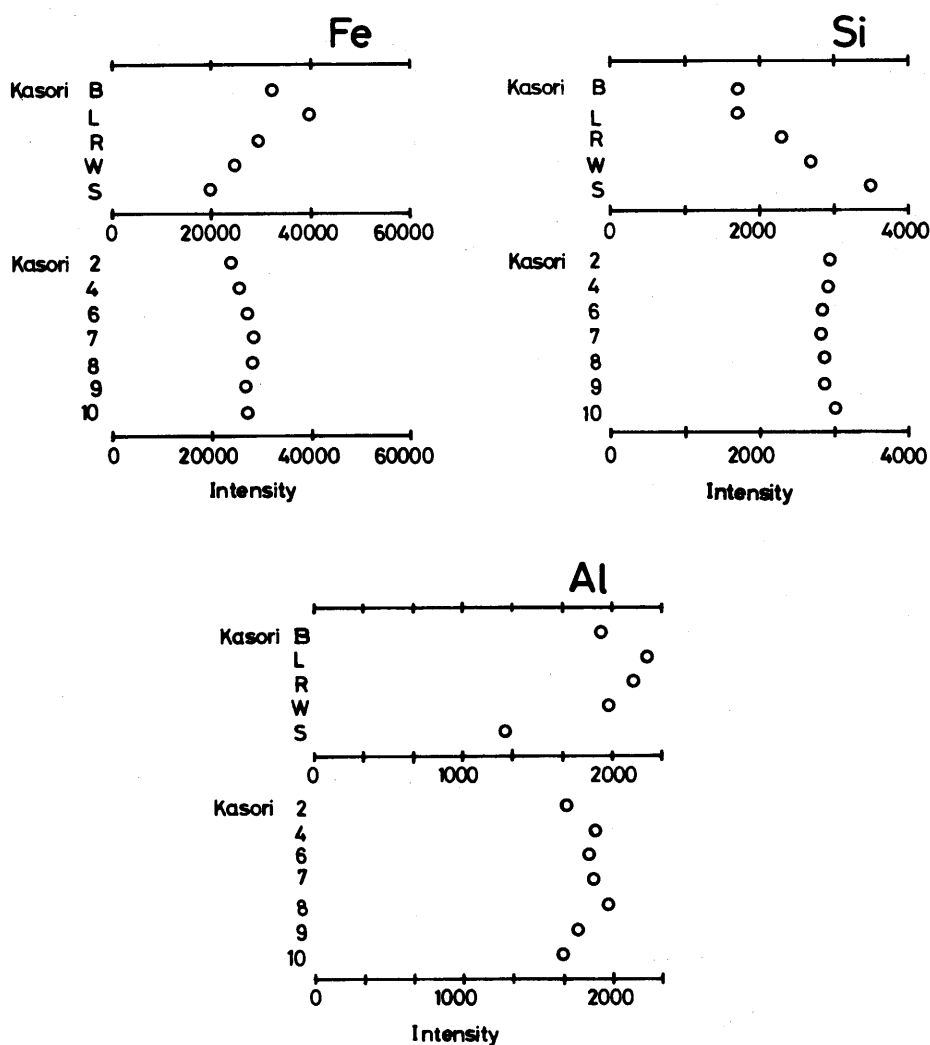


Fig. 10 Distribution of Fe, Si and Al in Raw materials and Test plates.

蛍光X線分析により主成分元素存在量を求めた結果がFig. 10, 11である（存在量は便宜的に計測値表示）。各種原料物質中の元素存在量は、かなりの相違を示し、また試験板も原料物質の混合比を反映して、その存在量に差が認められる。しかしほとんどの元素について、混合率の高い青白色粘土（W）の存在量に近い、比較的近い組成範囲を示している。したがって混合比が極端に変化しない限り、出土試料の化学組成にもとづく産地同定の可能性は認められるであろう。なおFig. 10, 11における元素存在量のばらつきの原因としては、原料物質各種の不均一性、混合比のやや不確定なことなどが考えられる。

本研究は昭和52年度特定研究「古文化財」年次報告の一部である（1978年2月講演）。

本研究にあたり、御討論および御助言を賜った埼玉大学・成瀬正和氏、東京芸術大学・本田光子氏に深く感謝いたします。

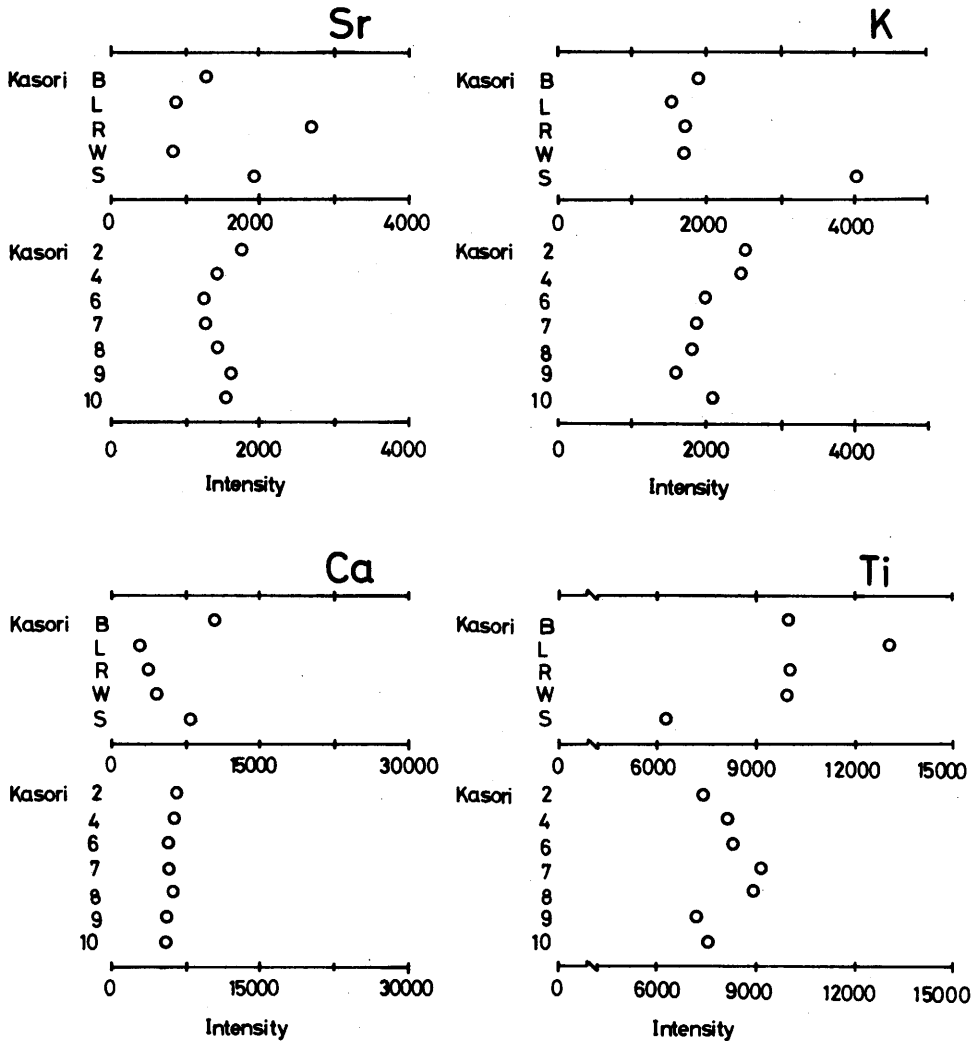


Fig. 11 Distribution of Sr, K, Ca and Ti in Raw materials and Test plates.

文 献

- 1) 磯松嶺造：赤峰紅山後，東亜考古学会編，123,1938。
- 2) 大高 興：北奥古代文化，No.6，28，
- 3) 近藤清治・河島千尋・棚橋寿一：大日本窯業協会雑誌，43集，No.512,481,1935；43集，No.513，561,1935；43集，No.514,641,1935。
- 4) 江藤盛治：人類学雑誌，71(1)，23，1963。
- 5) 梅田甲子郎：奈良教育大学紀要，15，1957；16，1958。
- 6) 田窪 宏・梅田甲子郎：考古学と自然科学，No.2，28，1969。
- 7) 山田 忍・近堂祐弘：科学，28(11)，581,1958。
- 8) 竹山尚賢：新郷土，25(10)，24，1972；25(11)，20，1972；25(12)，39，1972；26(1)，38，1973；26(2)，38，1973。

- 9) 大沢真澄・幸田恵美子・奥井雅子・二宮修治：東京学芸大学紀要，4部門，30集，151,1978。
- 10) M. S. Tite: Methods of Physical Examination in Archaeology, Seminar Press, London & New York, 323,1972。
- 11) W. D. Kingery : Archaeometry, 16, 109, 1974。
- 12) F. R. Matson : Science in Archaeology, D. Brothwell, E. Higgs Eds., 2nd Ed., Thames & Hudson, London, 592, 1969。
- 13) F. R. Matson : Archaeological Chemistry, C. W. Beck Ed., Am. Chem. Soc., 34,1974。
- 14) 市川米太・原村亮一郎・長友恒人・三尾野重義：昭和53年度特定研究「古文化財」年次報告書，1，1979。
- 15) 富永 健：化学の領域，31，869,1977。
- 16) 富永 健：原子力工業，24(4)，60，1978。
- 17) T. Tominaga. M. Takeda・H. Mabuchi・Y. Emoto : Radiochem. Radioanal. Lett., 28, 221, 1977。
- 18) 竹田満洲雄・馬淵久夫・江本義理・富永 健：分析化学，26，52，1977。
- 19) T. Tominaga・M. Takeda・H. Mabuchi・Y. Emoto : Archaeometry, 20, 135, 1978。
- 20) 富永 健・竹田満洲雄：昭和53年度特定研究「古文化財」年次報告書，325，1979。
- 21) 前田 豊・酒井 宏：考古学と自然科学，No.10，31，1977。
- 22) 前田 豊・酒井 宏・小野山 節・吉田恵二・東村武信・藁科哲男・相馬純吉：昭和53年度特定研究「古文化財」年次報告書，325，1979。
- 23) M. Osawa・H. Kasuya : Proc. XIV Intern. Cong. Hist. Sci., No.3，331，1975。
- 24) 三辻利一・平賀章三・北 定男・中川良美：奈良教育大学古文化財教育研究報告，No.5，49，1976。
- 25) 新井司郎：縄文土器の技術，中央公論美術出版，1973。
- 26) 東京芸術大学美術学部小口八郎教授，本田光子氏による実験
- 27) 藤原 学・森岡秀人：河内長野大師山遺跡発掘報告書，関西大学文学部考古学研究，5，212，1977。
- 28) A. O. Shepard : Ceramics for the Archaeologist, Carnegie Inst. Wash., Publ. 609, 1965。
- 29) 千葉市加曽利貝塚博物館：縄文土器のつくり方
- 30) 笹嶋貞雄・西村進・広岡公夫・石坂恭一・鳥居雅之・池田隆：昭和53年度特定研究「古文化財」年次報告書，15，1979。
- 31) 示差熱分析による石岡市東大橋・原遺跡出土の縄文中期土器（著者ら）

Basic Studies on Making of Jomon Potteries

Shuji NINOMIYA, Kumiko KONDO, Junichi TANAKA, Masumi OSAWA,
Kazutami GOTO, and Masaru SHOJI

Abstract

Experimental approaches for making Jomon potteries were carried out by firing test plates and reproduced potteries from thermal, chemical and mineralogical points of view.

Test plates and reproduced potteries of Jomon type made from raw materials such as surface soil, loam, clayey materials and sand, with different ratios, were fired in open field. Thermal process occurred through firing stage was examined by differential thermal analysis, thermogravimetry and X-ray diffraction. Fluorescent X-ray analysis was also used for tracing the change in chemical composition from raw materials to products.

Some of Jomon potteries enearthed from Kasori shell mound were also analyzed in the same way. Firing temperatures of Jomon potteries fired in open field were estimated not exceed over 900°C, in general.