

氏名	辻 広美
授与した学位	博士
専攻分野の名称	学術
学位授与番号	博甲第4770号
学位授与の日付	平成25年 3月25日
学位授与の要件	自然科学研究科 機能分子化学専攻 (学位規則第5条第1項該当)
学位論文の題目	古代遺跡出土ベンガラのも材料科学的研究
論文審査委員	教授 高田 潤 教授 後藤 邦彰 准教授 藤井 達生

### 学位論文内容の要旨

ベンガラは人類が最初に使った無機顔料の一つである。旧石器時代の遺跡をはじめとして、世界各地の遺跡から出土している。日本でも多くの遺跡からベンガラが出土しているが、その研究は顔料の分類やベンガラが使用された遺物の意匠についての考古学的研究に終始しており、古代ベンガラ自身について、もしくはベンガラを作製した当時の技術に対する研究はほとんどなされていないのが現状である。

そこで本研究は遺跡から出土したベンガラについて、材料科学的にその特徴を明らかにし、古代におけるベンガラの作製技術を探るために、熊本県下扇原遺跡出土ベンガラおよび奈良県室宮山古墳外堤住居址出土ベンガラ試料について、色測定、蛍光 X 線分析、XRD 分析、SEM 観察に加え、TEM 観察、比表面積測定、磁気特性評価等の古代ベンガラに対して現在まで日本では行われてこなかった分析法も用いて詳細に分析検討した。結果、古代ベンガラ試料は高純度の $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>であることを見出し、現代の工業ベンガラ、吹屋ベンガラ、合成 $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>と比較することによって色彩や粒子サイズ、磁気特性について古代ベンガラ試料の特徴を明確化できた。また、古代ベンガラの原料となりえる天然の赤鉄鉱、天然含水水酸化鉄を用いてベンガラを作製し、古代ベンガラと比較することによって古代ベンガラの原料および作製プロセス、色彩の向上を狙って水簸処理を行っていた可能性を示した。さらに、近年古代ベンガラの SEM 観察が行われるようになって初めてその存在が知られるようになったパイプ状ベンガラ試料の一つ、鹿児島県関山遺跡の古代ベンガラ試料について、成分や微細構造を解析し、鉄酸化細菌が作る酸化鉄 (BIOX) と比較することによって、その特徴を明らかにした。

## 論文審査結果の要旨

本論文は、縄文時代から古墳時代までの3ヶ所の古代遺跡から出土した貴重な赤色酸化鉄ベンガラ粉末について、構成相、構成元素とその分布、粒子径、色調、格子定数、磁気特性などを調査して材料科学的に詳細に検討した結果、従来不明であった特徴を明らかにするとともに、種々の鉱物を加熱処理あるいは水簸処理実験を行って当時の原料や作製方法を初めて推定したものである。

主な結果を要約すると次の通りである。

- (1) 弥生時代後期中葉（紀元2～3世紀）の熊本県下扇原遺跡の住居跡から出土したベンガラサンプルBは、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ を93.0%と高純度に含有し、 $\text{SiO}_2$ （3.8%）や $\text{Al}_2\text{O}_3$ （1.8%）成分が少なく、古代のベンガラとしては極めて純度が高い。色調は古代ベンガラとしては美しく、現代の工業ベンガラや合成ベンガラより少し明度が低い。1次粒子はナノサイズで微細であるが凝集しており、これが色調に影響していると考えられる。
- (2) 古墳時代前期（紀元4～5世紀）の奈良県宮室山古墳住居址から出土した壺に入っていたベンガラサンプルは、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ を92.3%と高純度に含有し、 $\text{SiO}_2$ （4.3%）や $\text{Al}_2\text{O}_3$ （2.1%）成分が少なく、下扇原遺跡出土ベンガラと同様、古代のベンガラとしては極めて純度が高い。色相は下扇原ベンガラよりもわずかに劣るが、古代ベンガラとしては美しく、現代の工業ベンガラや合成ベンガラより少し明度は低いが、下扇原ベンガラよりも高いのが特徴であることを見出した。
- (3) 赤鉄鉱および2種類の水酸化鉄（鬼板とリモナイト）加熱材を比較試料として選び、色調、粒子径、粒子形態、非晶質相、磁気特性などを調査し検討した結果、加熱後水簸することによって古代ベンガラにほぼ等しくなったことから、古代ベンガラの原料は鬼板を加熱後水簸して作製した可能性が高いことを見出した。
- (4) 縄文時代早期の鹿児島県関山遺跡から出土した古代ベンガについては、水簸処理によって砂などの不純物を除去したサンプルについて種々検討した。その結果、パイプ形状をしており、AlおよびSiを少量含有する。微生物由来酸化鉄の900℃加熱材を比較試料として微細構造や磁気特性の測定結果から、両者は多くの共通した特徴を有していることを見出した。

同氏の成果は、発表論文1編、口頭発表3件（国際会議での発表1件を含む）である。

以上の様に、同氏の研究はこれまで詳細が不明であった3種類の古代ベンガラの特徴解明と原料や作製方法の推定について材料科学的なアプローチから迫る挑戦的研究であって、その成果は学術上極めて優れているのみならず、今後のナノ材料の開発へ大きな指針を提示するものであることから高く評価できる。

よって、本論文は学位（博士）論文として十分に値する。