

# 石神遺跡井戸SE800出土土器付着炭化物の残存脂質分析

村上夏希・森川 実・庄田慎矢

## I はじめに

日本古代の土器の使用法については、これまでさまざまな角度から研究がなされてきたが（小林・妹尾2022、加藤2008）、本稿では残存脂質分析（庄田・クレイグ2017）の方法を用いて土師器甕の付着炭化物を分析し、これらの土器がどのような対象物に用いられたのかを検討する。同分析による日本国内でのこれまでの研究事例は、縄文土器を中心とした先史時代の土器に圧倒的に偏重しており、文献史料に記された食材や調理方法との対比が可能となる歴史時代の分析事例は皆無に等しい。そこで本稿では、良好な付着物が観察された、奈良県高市郡明日香村石神遺跡から出土した7世紀代の土器に付着した炭化物を対象に分析をおこなった。その結果、付着物の由来に関する興味深い知見が新たに得られたので、ここに報告する。

石神遺跡は、乙巳の変の舞台となった甘樺丘の東側に位置し、言うまでもなく飛鳥時代の都のあり方を理解する上で最も重要な遺跡の一つである。明治35年に須弥山石や石人像が出土したことを契機として、『日本書紀』に見える齊明朝の蝦夷饗應記事との関係が注目されてきた。1981年以来、奈良文化財研究所が21次におよぶ発掘調査をおこなってきたが、中でも1984・1985年に実施した第4次調査（奈良国立文化財研究所1985）では井戸SE800から多量の土師器甕が出土しており、その一部には食物残滓と推定される炭化物が内面に高密度で付着している。この井戸は石神遺跡の南を限る東西塙SA600の北側約40mの位置にあり、そこを起点とする石組溝が北方へと延び、遺跡の中枢部を縦断している。同井戸の性格については現在も検討を進めているが、出土土器の用途や廃棄の状態が、この井戸の性格に関する議論の材料を提供することは間違いない。

## II 分析試料

分析対象とした試料は、井戸SE800の井戸枠内から出土した土師器甕9点の内面に付着した炭化物である。土器の分析試料番号について、石神遺跡を示すISGに3桁の個体識別番号を組み合わせ、ISG001-ISG009とした。SE800は第4次調査区の北端中央で検出した

石組をともなう井戸（図1）で、スギ材を組み合わせた井戸枠内から多量の土器が出土している。出土土器の年代は当初、飛鳥Ⅲとして報告された（奈良国立文化財研究所1985）が、その再検討をおこなった西口壽生は「井戸SE800は飛鳥Ⅰに始まり、飛鳥Ⅲで廃絶し、飛鳥Ⅳに壊されている」としている（西口1997：p.10）。井戸枠内埋土の層序は上位から灰褐砂（1層）、バラス層（2層）、礫混じり砂（3層）、含砂礫茶褐有機土および砂混じり灰褐粘質土（4層）と続き、井戸底には灰褐砂が堆積している。西口説では、1～3層は埋立土で、4層は「使用時の堆積土」にあたるというが、後者は井戸の廃絶直後から埋立土の投入までの間、空井戸の底に堆積した有機質土と解釈できる。分析試料のうち1点（ISG003）は4層、それ以外の試料は3層から出土し、埋立土の下部に包含されていたもので、一緒に出土した土師器食器は飛鳥Ⅱに属すると考えられる。現在も石神遺跡出土遺物の整理は進行中であり、井戸の埋没過程や時期についてはなお検討中である。

分析試料は9点あり、すべて球胴形をなす土師器甕の底部・胴部内面に付着していた炭化物である（図2-1・2-2）。土師器甕が煮炊具であったことから、その内面に付着した炭化物は煮炊き調理時に、胴部内面に焦げ付いた食物であったと考えられる。いまここで、試料を採取した土器の原状と、炭化物がどのように付着しているかを、試料番号ごとに詳しく述べておこう。

ISG001は底部から胴部下半にかけて、全体の約3分の1が残る。褐色を呈する内面<sup>1</sup>に、飯粒とみられる炭化物粒が付着しており、その一部を試料として採取している。ISG002は頸部から胴部中位までが残り、褐色を呈する内側面に炭化物が付着している。胴部外面には煤が付着し、被熱による剝離痕がある。ISG003は胴部径17.0cmで、底部から胴部下半までがほぼ完全に残る。胴部内面中位に焦げ付きの黒い帶があり、その部分に飯粒とみられる炭化物粒が点状に付着している。ISG004は胴部径16.5cmで、底部から胴部半

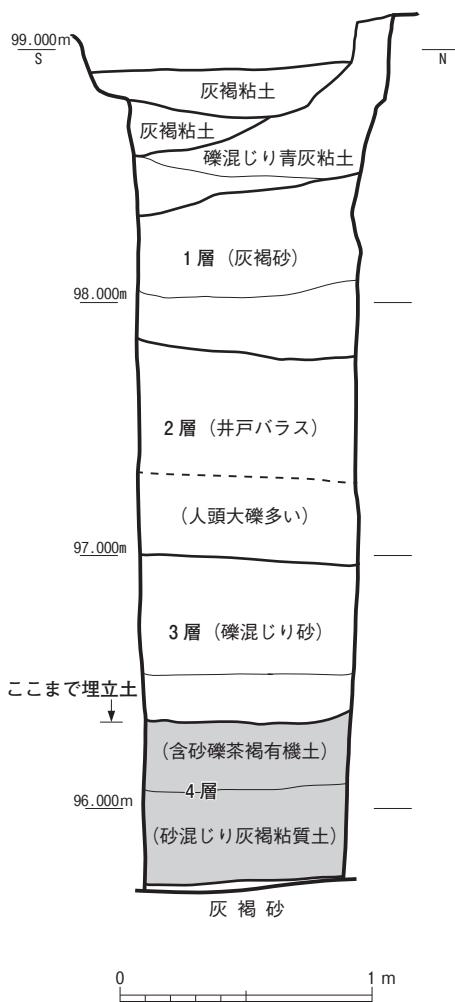


図1 SE800層序模式図（1:30）

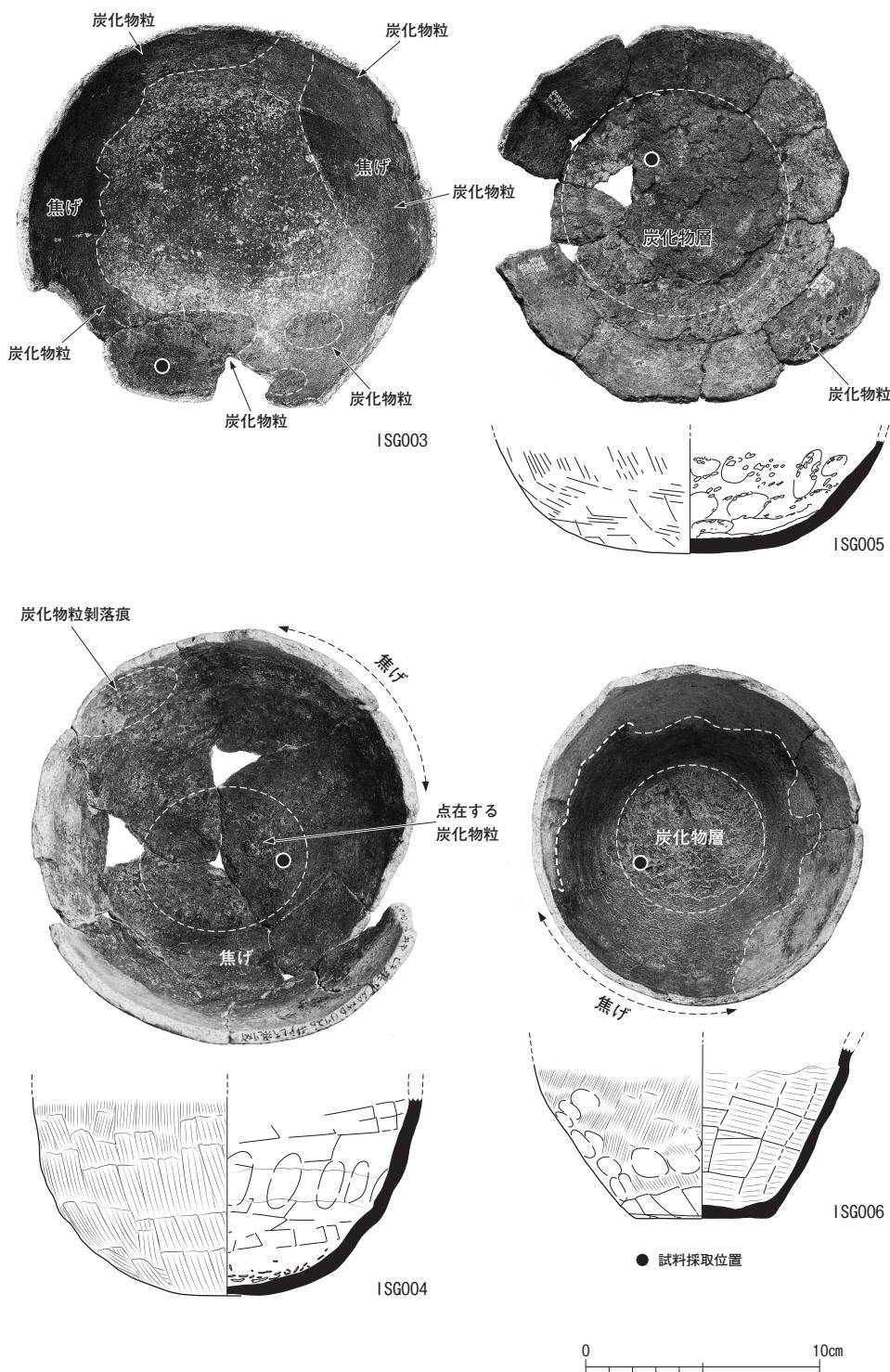


図2-1 分析対象土器と試料採取位置

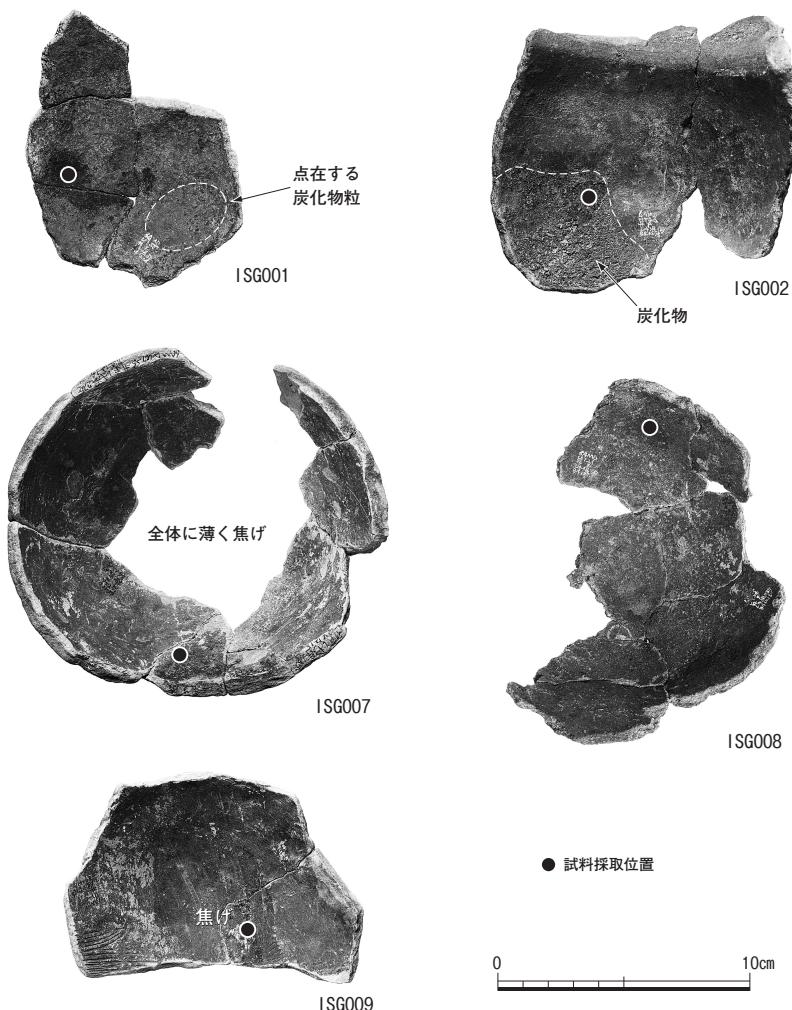


図2-2 分析対象土器と試料採取位置

ばまでが完存する。底部内面の中央は黒ずんでおり、飯粒とみられる炭化物粒が点状に付着している。また、胴部内面には素地が点状に露出した部分もあるが、これらは器壁に付着していた炭化物粒が剥落した痕跡とみられる。ISG005は底部から胴部下半が残る。底部中央には暗褐色を呈する炭化物が厚く付着しており、内底部の素地を層状に覆っている。SE800出土の土師器甕のなかでは、もっとも重度の焦げ付き例である。底部から胴部の内側面にも、飯粒とみられる炭化物粒が付着している。ISG006は胴部径13.5cmで、平底の底部から胴部半ばまでが完全に残る。底部内面の中央に厚い炭化物層が付着しており、胴部内側面の焦げへと連続している。ISG007は胴部径15.0cmで、胴部下半が残るもの底部中央を欠く。内面は褐色を呈し、その一部に黒ずんだ炭化物が薄く付着している。外面は被熱で荒れており、表面が円形に剥落している。ISG008は底部から胴部にかけての破

片数点からなる。内面は焦げ付きによって暗褐色を呈し、一部に炭化物が薄く層状に付着している。外面は煤で黒ずんでいる。ISG009は底部から胴部中位までの破片である。縦方向のヘラケズリで整えた内面には帯状の焦げ付きが認められる。外面には被熱で生じた円形の剥離痕が点在する。

井戸枠内から出土した土師器甕は底部のみを残すものも含めると、全部で200個体を超えている。そしてそのほとんどは外面に煤が付着し、内面が褐色ないしは暗褐色を呈しており、内容物が焦げ付いた例もある。つまりこれらは、出土層位にほぼ関係なく、使用した形跡がある土師器甕ばかりである。またこれらの出土層位が、井戸枠内下層の堆積層から、中・上層の埋立土にもおよんでいることから、使用後に廃棄物として、空井戸に投げ込まれた土師器甕を多く含んでいると考えられる。試料9点のうち、ISG003が4層（含砂礫茶褐有機土）出土であるほかは、すべて3層（礫混じり砂）からの出土である。3層は井戸廃絶後に投入された埋立土の下部にあたるので、出土した土師器甕は井戸が機能していた時期のものではない。

サンプリングについて、滅菌済みの医療用メスを用いて土器内面に付着した炭化物を採取した。採取した炭化物の分析試料番号について、筆者らの慣例に従い対象土器の試料番号に炭化物を示す「F」と内面からのサンプリングを示す「I」を組み合わせ、ISG001FI-ISG009FIとした。メスの刃は試料ごとに交換した。採取した炭化物は精製水、メタノール、ジクロロメタンで洗浄したメノウ乳鉢でりつぶし、均質化した。また、土器は水溶性アクリル樹脂によって含浸強化されていたため、分析結果への影響を調べる目的で、現在飛鳥・藤原地区考古第二研究室において使用している水溶性アクリル樹脂に含侵させたテストピースを準備し同様の方法でサンプリング・抽出して比較試料とした<sup>2</sup>。

### III 分析方法

ガスクロマトグラフ質量分析計（GC-MS）による、残存脂質濃度の評価と生物指標を中心とした化合物の検出および同定をおこなった。本分析をおこなうため、粉末状の試料から脂質を抽出し、誘導体化した。試料が40mg以上得られた場合には酸抽出および溶媒抽出法を用い、40mg未満の場合は酸抽出のみをおこなった。

**酸抽出** 既存のプロトコル（Creig et al. 2013）に従った。はじめに試料 $20\text{mg} \pm 5\%$ と内部標準テトラトリアコンタンC34（ $1\text{ }\mu\text{g }\mu\text{L}^{-1}$ ） $10\mu\text{L}$ が入った試験管を準備した。試験管に $4\text{ mL}$ のメタノールを加えたのち、超音波洗浄機を用いて15分、 $25^\circ\text{C}$ で攪拌した。攪拌後、濃硫酸 $800\mu\text{L}$ 加え、4時間、 $70^\circ\text{C}$ で加温した。室温まで冷却した試験管を遠心分離にかけ（4000rpm 5分間）、上澄みを取り出した。取り出した溶液にさらに $2\text{ mL}$ のヘキサンを加え

ボルテックスで攪拌した後に静置分離した。この溶液から脂質を含むヘキサン抽出液のみを回収した。ヘキサン抽出液を回収する作業は合計3回繰り返した。得られた抽出液は窒素ガスによって乾固した。乾固した抽出物にヘキサンを加え（1回目：90 $\mu$ L、2回目：50 $\mu$ L）、内部標準ヘキサトリアコントンC36（1 $\mu$ g  $\mu$ L<sup>-1</sup>）10 $\mu$ Lが入ったGCバイアルへ移した。なお、実験過程での汚染の有無を検討するため、1点のブランク・コントロール試料を挿入した。

**溶媒抽出** 既存のプロトコル (Evershed et al. 1990) に従った。はじめに試料20mg  $\pm$  5%と内部標準ヘキサトリアコントンC34（1 $\mu$ g  $\mu$ L<sup>-1</sup>）10 $\mu$ Lを入れた試験管を準備した。試験管に5mLのジクロロメタン・メタノール混合溶液 (DCM: MeOH, 2:1 V/V) を加えたのち、超音波洗浄機を用いて15分間、25°Cで攪拌した。攪拌後、遠心分離にかけ(4000rpm15分間)、脂質を含む抽出液（上澄み）を回収した。抽出液を回収する作業は3回繰り返した。得られた抽出液は窒素ガスによって乾固した。乾固した抽出物にヘキサンを加え（1回目：90 $\mu$ L、2回目：50 $\mu$ L）、内部標準ヘキサトリアコントンC36（1 $\mu$ g  $\mu$ L<sup>-1</sup>）10 $\mu$ Lが入ったGCバイアルへ移した。なお、実験過程での汚染の有無を検討するため、1点のブランク・コントロール試料を挿入した。

溶媒抽出の試料は、GC-MS測定の直前にBSTFA+TMCS, 99:1 (N, O-bis(trimethylsilyl)trifluoacetamide with 1% trimethyl-chlorosilane) によりトリメチルシリル化し、分析に供した。

**GC-MS測定** 得られた抽出液についてGC-MSによる測定をおこなった。GC-MS分析に用いた分析装置は島津製作所製ガスクロマトグラフ質量分析計 (GCMS-QP2010Ultra) である。スプリットレス注入法により、1 $\mu$ Lの試料を注入口温度300°Cで導入した。カラムはフロンティアラボ社製Ultra ALLOY-5 (30m  $\times$  0.25mm, 膜厚0.25 $\mu$ m) を用い、酸抽出試料と溶媒抽出試料を対象に、Scanモードによる分析をおこなった。分析条件について、カラム温度は50°Cで2分間保持したのち、10°C/minで325°Cまで昇温し12分間保持した。*m/z*50から800までのスペクトルを獲得し、測定時間は41.5分である。イオン源温度は230°C、イオン化法はEIモード、イオン化電圧は70eV、キャリアーガスはヘリウム (3.00mL/min) を用いた。

次に、キビの生物指標であるミリアシン (Heron et al. 2016, 庄田ほか2021a) の検出を目的とし、酸抽出試料と溶媒抽出試料を対象に同カラムを用い、SIMモードによる分析をおこなった。分析条件について、カラム温度は50°Cで1分間保持したのち、280°Cまで20°C/min、325°Cまで5°C/minで昇温し、8.5分間保持した。モニタリングイオンは、*m/z*189、204、231、425、440を選択した。測定時間は30分である。イオン源温度は230°Cで、イオン化法はEIモード、イオン化電圧は70eV、キャリアーガスはヘリウム (3.00mL/min) を用いた。

また、 $\omega$ -アルキルフェニルアルカン酸 (APAA) やイソプレノイド脂肪酸などの特定

の化合物をより高感度で分析することを目的とし、酸抽出試料を対象に、Agilent社製のDB-23 (60m×0.25mm, 膜厚0.25μm) を用い、SIMモードによる分析をおこなった。分析条件について、カラム温度は50°Cで2分間保持したのち、100°Cまで10°C/min、140°Cまで4°C/min、160°Cまで0.5°C/min、250°Cまで20°C/minで昇温し、11.5分間保持した。モニタリングイオンは、トリメチルデカン酸の検出を目的とした $m/z$ 74、87、213、270、ブリスタン酸の検出を目的とした $m/z$ 74、88、101、312、フィタン酸の検出を目的とした $m/z$ 74、101、171、326、炭素数16から22のAPAAの検出を目的とした $m/z$ 74、105、262、290、318、346を選択した。測定時間は73分である。イオン源温度は230°Cで、イオン化法はEIモード、イオン化電圧は70eV、キャリアーガスはヘリウム (2.00mL/min) を用いた。

## IV 分析結果

GC-MS分析によって得られたスペクトルの例を図3～5に示す。各測定法および抽出法により同定された化合物は表1の通りである。酸抽出試料について、直鎖飽和脂肪酸（炭素数8から34まで）及び不飽和脂肪酸（炭素数18）のほか、APAA（炭素数18）、分枝脂肪酸（炭素数15から17まで）、ジカルボン酸（炭素数4から13まで）、アルカン（炭素数25から35まで）、フィタン酸がScanモードで検出された。一方、水溶性アクリル樹脂の影響を調べるために比較として加えたテストピース試料からは内部標準以外のピークが認められなかつた（図4）。そのため、分析試料から検出された化合物の多くは炭化物由来であると言える。

ピークの全体的な特徴としてパルミチン酸（C<sub>16:0</sub>）がステアリン酸（C<sub>18:0</sub>）と比較して高い傾向にあった。Dunneらによる研究によれば、パルミチン酸／ステアリン酸比（P/S比）が4以上の高い値を示すことは、現生サンプル、考古遺物共に動物性脂質では見られず、植物である可能性が高いと報告されている（Dunne et al. 2016）。本分析試料についてパルミチン酸、ステアリン酸のピーク面積からP/S比を算出したところ、ISG004FIおよびISG006FIは4以上の値が得られた。

溶媒抽出は9点中3点のみ実施したが、コレステロール、 $\beta$ -シットステロール、カンペステロール、スティグマステロールがScanモードで検出された。 $\beta$ -シットステロール、カンペステロール、スティグマステロールは植物に含まれる特徴的な化合物である。

SIMモードによる分析について、酸抽出・溶媒抽出試料ともにミリアシンは検出されなかつた。

APAAは全試料に共通して炭素数18のAPAA (APAA-C18) が検出された（図6）。水生生物に特徴的みられる炭素数20および22のAPAAについては検出されなかつた。APAA-C18の異性体についてはn = 4とn = 1の異性体の比率（E/H比）が、動物、植

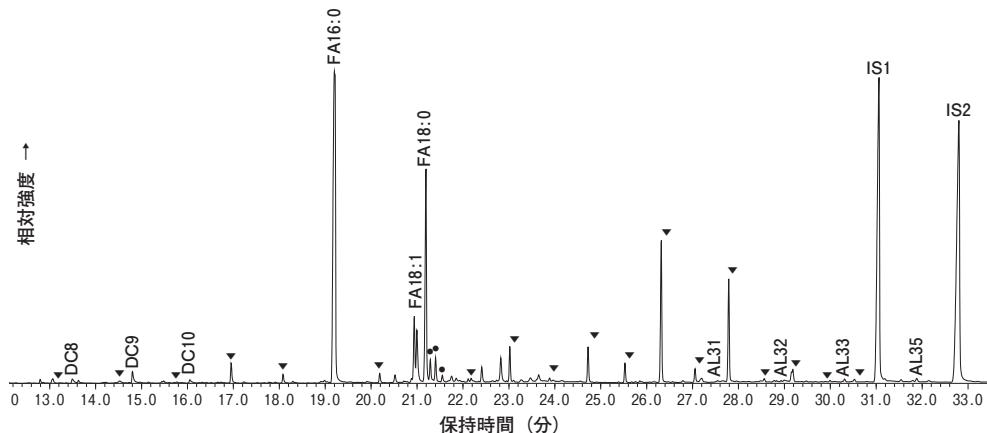


図3 酸抽出により得られた脂質の部分クロマトグラム (ISG002FI)

FA<sub>x:y</sub>は、炭素数x、二重結合の数yの脂肪酸を示す。▼：その他の飽和脂肪酸、●： $\omega$ -アルキルフェニルアルカン酸、DC： $\alpha, \omega$ -ジカルボキシル酸、AL：アルカン、IS1：内部標準として用いたテトラトリアコンタンC34、IS2：内部標準として用いたヘキサトリアコンタンC36

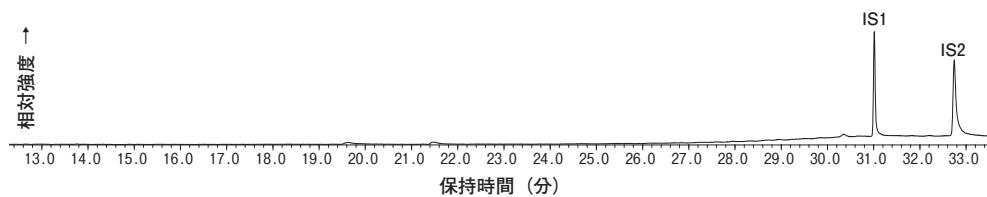


図4 酸抽出により得られたテストピース試料の部分クロマトグラム

IS1：内部標準として用いたテトラトリアコンタンC34、IS2：内部標準として用いたヘキサトリアコンタンC36

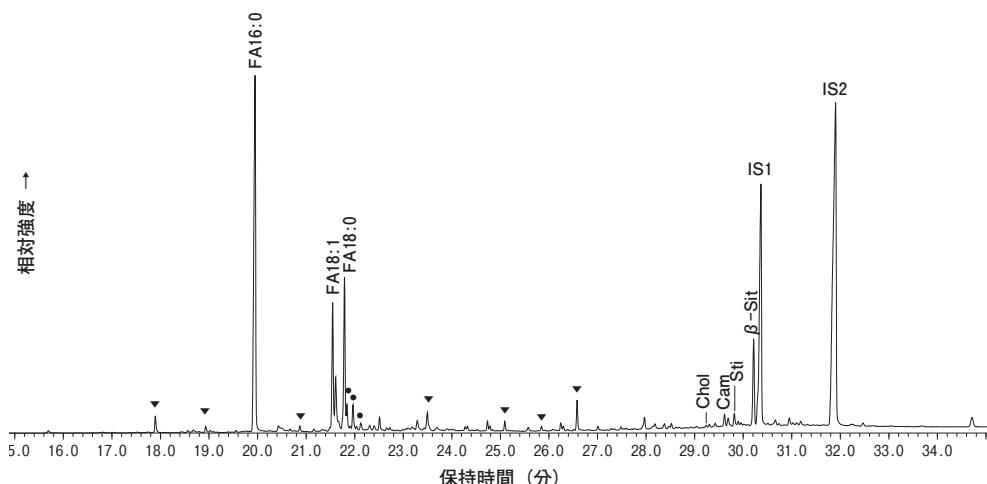


図5 溶媒抽出により得られた脂質の部分クロマトグラム (ISG002FI)

FA<sub>x:y</sub>は、炭素数x、二重結合の数yの脂肪酸を示す。▼：その他の飽和脂肪酸、●： $\omega$ -アルキルフェニルアルカン酸、 $\beta$ -Sit： $\beta$ -シットステロール、Sti：ステイグマステロール。Cam：カンペステロール、Chol：コレステロール、IS1：内部標準として用いたテトラトリアコンタンC34、IS2：内部標準として用いたヘキサトリアコンタンC36

表1 石神遺跡SE800出土土器付着炭化物の残存脂質分析の結果

試料ID	AE秤量 (mg)	TLE秤量 (ng)	濃度 ( $\mu\text{g g}^{-1}$ )	酸抽出による主な検出化合物	溶媒抽出による 他の検出化合物	E/H比 S/P比
ISG001FI	16.0	n/a	1255	FA (C <sub>9</sub> :0-32:0, C <sub>18</sub> :1, C <sub>17</sub> br), DC (C <sub>8-11</sub> ), APAA (C <sub>18</sub> ), AL (C <sub>27-35</sub> )	n/a	5.9 3.9
ISG002FI	19.7	19.9	1497	FA (C <sub>9</sub> :0-34:0, C <sub>18</sub> :1, C <sub>15</sub> br-17br), DC (C <sub>4-11</sub> ), APAA (C <sub>18</sub> ), AL (C <sub>29-35</sub> )	$\beta$ -Sit, Stig, Cam, Chol	6.9 3.0
ISG003FI	20.0	n/a	1450	FA (C <sub>8</sub> :0-34:0, C <sub>18</sub> :1, C <sub>15</sub> br-17br), DC (C <sub>8-10</sub> ), APAA (C <sub>18</sub> ), AL (C <sub>27-35</sub> )	n/a	5.0 3.1
ISG004FI	20.3	n/a	1226	FA (C <sub>9</sub> :0-32:0, C <sub>18</sub> :1), DC (C <sub>4-10</sub> ), APAA (C <sub>18</sub> ), AL (C <sub>27-35</sub> )	n/a	5.5 4.9
ISG005FI	20.1	20.1	1898	FA (C <sub>9</sub> :0-34:0, C <sub>18</sub> :1, C <sub>15</sub> br), DC (C <sub>4-11</sub> ), APAA (C <sub>18</sub> ), AL (C <sub>27-35</sub> )	$\beta$ -Sit, Stig, Cam, Chol	5.3 3.6
ISG006FI	19.7	n/a	979	FA (C <sub>9</sub> :0-32:0, C <sub>18</sub> :1), DC (C <sub>8-11</sub> ), APAA (C <sub>18</sub> ), AL (C <sub>25-35</sub> )	n/a	4.9 4.0
ISG007FI	20.3	n/a	740	FA (C <sub>8</sub> :0-34:0, C <sub>18</sub> :1, C <sub>15</sub> br-17br), DC (C <sub>4-11</sub> ), APAA (C <sub>18</sub> ), Phy, AL (C <sub>27-35</sub> )	n/a	5.7 2.5
ISG008FI	20.2	15.4	406	FA (C <sub>9</sub> :0-34:0, C <sub>18</sub> :1, C <sub>15</sub> br-17br), DC (C <sub>7-13</sub> ), APAA (C <sub>18</sub> ), Phy, AL (C <sub>26-35</sub> )	$\beta$ -Sit, Chol	— 3.0
ISG009FI	15.2	n/a	311	FA (C <sub>12</sub> :0-32:0, C <sub>18</sub> :1, C <sub>15</sub> br-17br), DC (C <sub>4-10</sub> ), APAA (C <sub>18</sub> ), Phy, AL (C <sub>25-35</sub> )	n/a	4.8 2.4

FA : 脂肪酸。C<sub>x:y</sub>は、炭素数x、二重結合の数yを示す。br : 分枝脂肪酸、DC : ジカルボン酸、APAA :  $\omega$ -アルキルフェニルアルカン酸、Phy : フィタン酸、AL : アルカン、 $\beta$ -Sit :  $\beta$ -シトステロール、Sti : ステイグマステロール、Cam : カンペステロール、Chol : コレスステロール

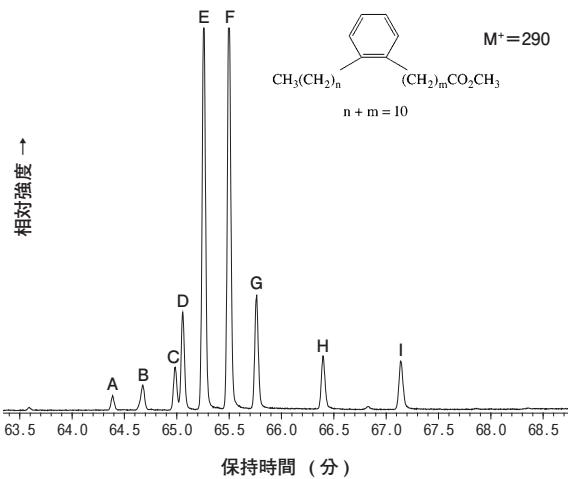


図6  $m/z 290$ による抽出イオンクロマトグラムおよび $\omega$ -アルキルフェニルアルカン酸の構造式 (ISG002FI)

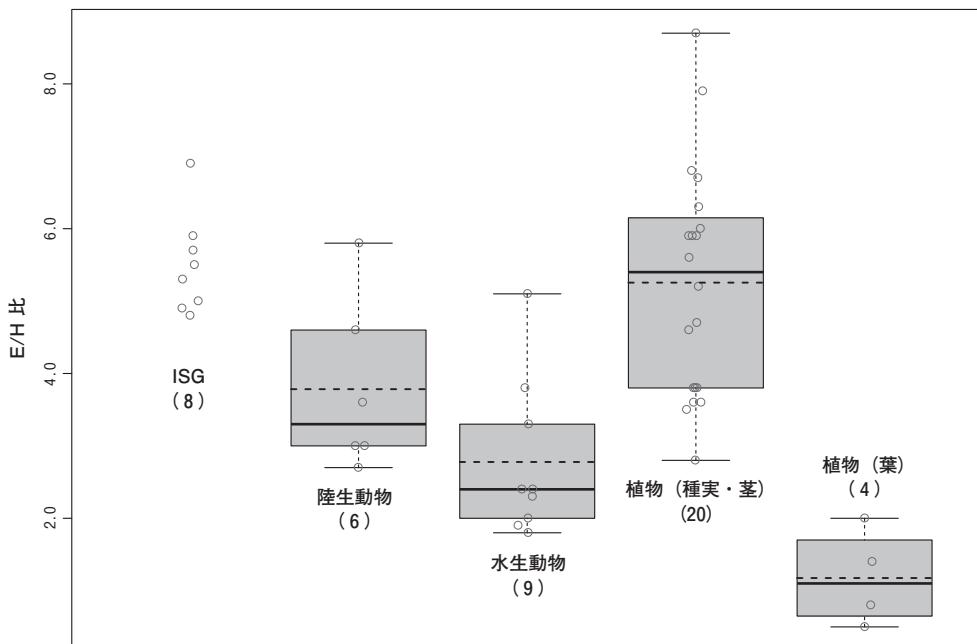


図7 箱ひげ図による炭素数18の $\omega$ -アルキルフェニルアルカン酸 (APAA) E/H比の現生標本 (参照データはBondetti et al. 2020、庄田ほか2021b)との比較 (横線実線は中央値、横線点線は平均値をあらわす)

物の葉、植物の種実・茎で有意に異なることが報告されている (Bondetti et al. 2020)。庄田らはBondettiらの結果について動物を水生と陸生にわけ、より細かな分類群を提示している (庄田ほか 2021b)。そこでE/H比が算出できた試料8点について、庄田らの論文で提示された現生標本分類と比較した。その結果、ISG001FI、ISG002FIは植物（種実・茎）の中央50%に、ISG004FI、ISG005FI、ISG007FIは植物（種実・茎）の中央50%と陸生動物の上位25%に、ISG003FI、ISG006FI、ISG009FIは植物（種実・茎）の中央50%と陸生・

**表2** 炭素数18の $\omega$ -アルキルフェニルアルカン (APAA) E/H比  
Zスコア絶対値の比較 (参照データはBondetti et al. 2020、庄田ほか2021b)

試料ID	陸生 動物	水生 動物	植物 (種実・茎)	植物 (葉)
ISG001FI	1.9	3.1	0.4	8.3
ISG002FI	2.8	4.0	1.1	10.1
ISG003FI	1.1	2.2	0.2	6.8
ISG004FI	1.5	2.7	0.2	7.6
ISG005FI	1.4	2.5	0.0	7.3
ISG006FI	1.0	2.1	0.2	6.6
ISG007FI	1.7	2.9	0.3	7.9
ISG009FI	0.9	1.9	0.3	6.3

値が0に近い方が各現生標本の平均値に近いことをあらわす

**表3** 炭素数18の $\omega$ -アルキルフェニルアルカン (APAA) E/H比  
U検定 (参照データはBondetti et al. 2020、庄田ほか2021b)

マンホイットニーのU検定	p 値
陸生生物	0.020
水生生物	0.001
植物 (種実・茎)	0.611
植物 (葉)	0.007

水生動物の上位25%に対応した (図7)。

各分析試料がどの分類群により近いかを検討するため、各現生標本分類の平均値と標準偏差から分析試料についてZスコアの絶対値を算出した。Zスコアとは、平均値が0、標準偏差が1になるように変換した得点である。値が0に近いほど各現生標本分類の平均値に近い値であることを示す。Zスコアは正規分布を前提とする。正規性を評価するため、データ数が少ない場合に有効とされるシャピロ・ウイルク検定をおこなったところ、各現生標本分類のすべてのデータセットで  $p \geq 0.05$  となり、正規分布であることを否定しないという結果が得られた。そこで、各現生標本分類のデータセットが正規性を持つと仮定し、Zスコアを用いて土器から得られたデータがどの現生標本分類の分布の平均値に近いか評価した。その結果、植物 (種実・茎) に近い値であることが示された (表2)。

ノンパラメトリックな検定手法からも評価するため、マンホイットニーのU検定 (Mann-Whitney test / Wilcoxon rank sum test) を用いた。マンホイットニーのU検定は2群の分布したデータ間に統計的な有意差があるのか調べる解析法であり、特に特定の母集団がもう一方よりも大きな値を持つ傾向にあるときに、2つの母集団が同じであるという帰無仮説に基づいておこなわれる。分析試料をひとつの群と仮定し、各現生標本分類の群に対し有意な差があるのか検討した。その結果、有意水準5%とした場合、陸生動物、水生動物、植物 (葉) の帰無仮説は棄却された。一方、植物 (種実・茎) の帰無仮説は採択

された。これにより、本分析試料群が植物（種実・茎）と類似した集団であることを否定しないという結果が得られた（表3）。

イソプレノイド脂肪酸のひとつであるフィタン酸にはR体とS体が存在し、その比率(SRR比)は水生生物と反芻動物において異なる傾向を示すことが報告されている(Lucquin et al. 2016)。SRR比のみで水生生物か反芻動物かを判断することは難しいが、炭素数20以上のAPAAやイソプレノイド脂肪酸である4,8,12-トリメチルトリデカン酸(4,8,12-TMTD)など他のバイオマーカーと組み合わせることで、その由来について検討することが可能となる。本研究においても、ISG007FI、ISG008FI、ISG009FIについてフィタン酸のピークが認められたが、検出強度が低くSRR比を求めることはできなかった。

## V 考 察

GC-MS分析によって同定された化合物のうち、APAAは加熱による多価不飽和脂肪酸の変成によって生じる、自然界にはみられない化合物である(Hansel et al. 2004, Evershed et al. 2008)。その由来が水生生物であるかどうかは、炭素数20および22のAPAAの存在や、炭素数20と炭素数18のAPAAの比率が指標となる。しかし今回のように炭素数18のAPAAだけが検出された場合、炭素数20以上のAPAAが含まれないので、単に残存濃度が低く検出されなかったのかは判断できない。そこで炭素数18のAPAAの異性体比を算出し、既往の研究(庄田ほか2021、Bondetti et al. 2020)で示された参照データと比較したところ、ISG001FI、ISG002FIは植物（種実・茎）の中央50%に、それ以外の試料についても植物（種実・茎）の中央50%と動物の上位25%に対応した(図7)。植物（種実・茎）のE/H比は他の現生標本と比較し高いことが特徴であるが、E/H比が低い他の食材との混合によって値が低くなることが予想される。換言すれば、ISG001FI、ISG002FIについては動物あるいは植物（葉）の可能性は低いといえる。各検定法による検討も分析試料が植物（種実・茎）であることを否定しない。また、分析点数が3点のみではあるが、溶媒抽出試料についてもすべての試料から、 $\beta$ -シットステロール、カンペステロール、ステイグマステロールからなる一連の植物ステロールが検出されている。以上のように複数の検討を組み合わせた結果、分析対象とした付着炭化物はいずれも植物（種実・茎）である可能性が高いと思われる。さらに、APAAは加熱によって生成される化合物である。分析に供した土師器甕には外面に煤が付着しており、一部資料には被熱による外面剥離痕も認められることから、土器による加熱調理が想定されていた。本結果も加熱調理を支持する内容といえる。

植物（種実・茎）のさらなる種の同定や、別の食材との組み合わせの可能性、あるいは、この土器が植物の煮炊きに特化した調理器具であったのか、それ以外の食材調理にも利用

されていたのかなど、本研究の結果をふまえてさらに検討すべき課題は多々ある。これらについては、今後、個別脂肪酸安定同位体比分析を用いたC<sub>3</sub>植物とC<sub>4</sub>植物の識別など、他の考古生化学的手法と組み合わせて検討していきたい。

本分析事例では、分析試料のすべてについて植物質資源の強い寄与が確認された。実は、日本における残存脂質分析においてこのように植物の寄与を強く示す分析事例は多くない。それは、日本の残存脂質分析が縄文時代など先史時代を中心にデータが蓄積されており、かつ先史時代の土器利用が海産物などの水産資源に偏っているためである（庄田・Craig 2017, Lucquin et al. 2018）。日本の事例とは対照的に、中国の新石器時代の田螺山遺跡出土土器および付着物の分析事例ではデンプン質食材の調理・加工対象を示す化合物や個別脂肪酸の安定同位体比が確認されているが、本研究事例のように全ての試料に強い植物の寄与が認められるのではなく、一部にとどまっている（Shoda et al. 2018）。以上のことから、石神遺跡井戸SE800出土土器の使われ方は、これまで分析してきた土器とは異なる新たなパターンを示している可能性がある。他の器種やサイズの異なる土器を分析することで、土器使用のパターンについてさらなる知見が得られるであろう。

また、本稿で分析対象とした土師器甕は、把手の無い甕Aや把手のつく甕B（奈良国立文化財研究所1976）などに該当するものであり、甕Aは炉で、甕Bはカマドにかけて使用されたものと解釈されている（加藤2008）。当時の炊事形態が蒸す調理であったのか炊く調理であったのかについては議論が続いているが、調理方式の議論の材料に対象となる食材を加えることで、飛鳥時代における調理行動についての新たな展開が期待できるであろう<sup>3</sup>。

## 註

- 1 SE800出土の土師器甕の場合、胴部内面が暗褐色を呈するものが多く、胎土の色調よりも黒ずんでいる。その褐色は煮炊きに起因するコゲの一種かと思われるが、成因はわからない。
- 2 水溶性アクリル樹脂による含浸強化は1980年代に実施された。当時使用した製品の製造元などに関する記録は残っていないが、現在、奈文研で使用しているバインダー17（三恒商事株式会社製）の類似品であると思われる。
- 3 本稿はJSPS科研費若手研究（22K13241）「考古生化学から探る古代日本の土器利用（代表：村上夏希）」、基盤研究A（21H04370）「東北アジアの農耕化過程における食と調理の変化への考古生化学的アプローチ（代表：庄田慎矢）」および基盤研究A（20H00033）「東ユーラシア東辺における古代食の多角的視点による解明とその栄養価からみた疾病（代表：三舟隆之）」の成果の一部である。

## 参考文献

- 加藤雅士 2008 「把手つけたはなし—使用痕跡からみた7世紀後半、飛鳥・藤原の煮炊具—」『吾々の考古学』 pp.437-451
- 小林正史・妹尾裕介 2022 「スコゲからみた宮都の小鍋の使い方」『石川考古学研究会会誌』65 pp.37-53

- 庄田慎矢・オリヴァー＝クレイグ 2017 「土器残存脂質分析の成果と日本考古学への応用可能性」『日本考古学』43 pp.79-89
- 庄田慎矢・Edward Standall・村上夏希 2021a 「キビの起源と拡散をめぐる考古生化学的探求」『雑穀研究』36 pp. 1-8
- 庄田慎矢・新里貴之・鈴木美穂・高宮広土・タルボット＝ヘレン・クレイグ＝オリヴァー 2021b 「土器残存脂質による貝塚文化北限地域における動植物資源利用の復元」『文化財科学』83 pp.55-76
- 奈良国立文化財研究所 1976 『平城宮発掘調査報告VII 内裏北外郭の調査』
- 奈良国立文化財研究所 1985 「石神遺跡第4次調査」『飛鳥・藤原宮発掘調査概報15』 pp.55-68
- 西口壽生 1997 「石神遺跡 SE800 出土土器の再検討」『奈良国立文化財研究所年報1997-1』 pp.10-11
- Bondetti, M., Scott, E., Courel, B., Lucquin, A., Shoda, S., Lundy, J., Labra-Odde, C., Drieu, L., & Craig, O. E. 2021. Investigating the formation and diagnostic value of  $\omega$ -(o-alkylphenyl) alkanoic acids in ancient pottery. *Archaeometry*, 63(3), 594-608.
- Craig, O. E., Saul, H., Lucquin, A., Nishida, Y., Taché, K., Clarke, L., Thompson, A., Altoft, D. T., Uchiyama, J., Ajimoto, M., Gibbs, K., Isaksson, S., Heron, C. P., & Jordan, P. 2013. Earliest evidence for the use of pottery. *Nature*, 496(7445), 351-354.
- Dunne, J., Mercuri, A. M., Evershed, R. P., Bruni, S., & Di Lernia, S. 2016. Earliest direct evidence of plant processing in prehistoric Saharan pottery. *Nature Plants*, 3, 1-6.
- Evershed, R. P., Copley, M. S., Dickson, L., & Hansel, F. A. 2008. Experimental Evidence For The Processing Of Marine Animal Products And Other Commodities Containing Polyunsaturated Fatty Acids In Pottery Vessels. *Archaeometry*, 50(1), 101-113.
- Evershed, R. P., Heron, C., & John Goad, L. 1990. Analysis of organic residues of archaeological origin by high-temperature gas chromatography and gas chromatography-mass spectrometry. *The Analyst*, 115(10), 1339-1342.
- Hansel, F. A., Copley, M. S., Madureira, L. A. S., & Evershed, R. P. 2004. Thermally produced  $\omega$ -(o-alkylphenyl) alkanoic acids provide evidence for the processing of marine products in archaeological pottery vessels. *Tetrahedron Letters*, 45(14), 2999-3002.
- Heron, C., Shoda, S., Breu Barcons, A., Czebreszuk, J., Eley, Y., Gorton, M., Kirleis, W., Kneisel, J., Lucquin, A., Müller, J., Nishida, Y., Son, J.-H., & Craig, O. E. 2016. First molecular and isotopic evidence of millet processing in prehistoric pottery vessels. *Scientific Reports*, 6, 1-9.
- Lucquin, A., Robson, H. K., Eley, Y., Shoda, S., Veltcheva, D., Gibbs, K., Heron, C., P., Isaksson, S., Nishida, Y., Taniguchi, Y., Nakajima, S., Kobayashi, K., Jordan, P., Kaner, S., & Craig, O. E. 2018. The impact of environmental change on the use of early pottery by East Asian hunter-gatherers. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 115(31), 7931-7936.
- Shoda, S., Lucquin, A., Sou, C. I., Nishida, Y., Sun, G., Kitano, H., Son, J.-H., Nakamura, S., & Craig, O. E. 2018. Molecular and isotopic evidence for the processing of starchy plants in Early Neolithic pottery from China. *Scientific Reports*, 8(1), 1-9.

## 挿図出典

いずれも筆者作成