

平成 22 年 6 月 7 日現在

研究種目：基盤研究（C）  
 研究期間：2007 ～ 2009  
 課題番号：19500875  
 研究課題名（和文）蓄積型自然放射線量とX線分析による古代ガラス・セラミックス材質の考古科学的研究  
 研究課題名（英文）Scientific research on ancient glass and ceramics material by accumulative natural doses of radiation and X-ray analysis  
 研究代表者  
 降幡 順子（FURIHATA JUNKO）  
 独立行政法人国立文化財機構奈良文化財研究所・都城発掘調査部・主任研究員  
 研究者番号：60372182

## 研究成果の概要（和文）：

古代ガラス・セラミックスの流通や伝播を知る一つの方法として、材質の時代的な変遷や加工方法に着目した。分析手法としては基本的に非破壊分析とし、蓄積型自然放射線量の測定（AR法）を取り入れた迅速かつ多量資料の分類、さらに遷移金属などの化学組成に着目して材質の時代的な変遷に関して調査をおこなった。2世紀～8世紀の遺跡出土ガラス・陶器資料約5280点の遺物の調査を実施し、材質の変遷、地域による流通の時期差などを明らかにすることができた。

## 研究成果の概要（英文）：

The investigation of the ancient glass and ceramics was executed by a nondestructive method of taking the measurement of accumulative natural doses of radiation (AR method). The analysis about 5280 specimen those are excavated from the site of the 2nd-8th century was examined. It is a purpose to clarify the transition of the substance and the difference of the generation of distribution by the region. The existence of potash glass slightly contained in a large amount of glass objects excavated from sites was clarified from a prompt analysis of the AR method. From the comparison of the transition metal that was the coloring material, the difference of the appearance was confirmed of region. The glass beads that used the chromatic material with few contents of manganese increased after the 4th century. From the research of three-colored ceramics, it was found that there are two types of white material, white glaze and base glaze.

## 交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2008年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2009年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：総合領域

科研費の分科・細目：文化財科学・文化財科学

キーワード：材質分析、蓄積型自然放射線量、イメージングプレート、鉛釉陶器、古代ガラス、

## 紺色ガラス、非破壊分析

### 1. 研究開始当初の背景

古代ガラスやセラミックスの釉薬の材質は、鉛ケイ酸塩とアルカリケイ酸塩に大きく分類することができる。陶磁器の釉薬もガラスの製作技法との関連などが議論されるように、原料や融解方法などについて同様な知識と技術を要するもので、ガラス同様に東西交流による技術伝播により発展してきたといえる。これらは、材料科学的には同じもので、その用途が異なるだけであり、釉薬は土器とともに発展し、他方ガラスは土器の胎土から遊離して独自の発展を遂げていった。また、着色材料としての遷移金属元素に着目すると、主に鉛ケイ酸塩では銅、アルカリケイ酸塩では、銅・鉄・コバルト・マンガンによって着色されているなど両者には、技術的にも材料科学的にも共通点が多い。また、古代日本におけるガラスや陶器（鉛釉等）の流通は、中国や韓国など大陸と密接に関わっている。それは、視点を変えるといずれの国にあっても陸上交易と海上交易により流通していたとも言えるため、アジア全体との関わりについての調査研究が必要である。

材質調査からは原材料を推定できるため、古代ガラスや鉛釉などの陶器の産地推定ができる可能性があり、交易・技術伝播を解明できる手がかりとなりうる。しかしこれらの出土遺物について、出土点数に対する分析数の割合が小さい場合などは、材質や製作技法などの差異を見落としてしまう可能性についての危惧もある。一遺跡から出土したガラス遺物についても、その出土量に関わらず数点から数十点の分析例により残りのガラス材質についても考察されている場合が多いため、重要な発見が見落とされている可能性がある。このように科学的な分析結果が、古代の遺物の流通について解明することの妨げとなってしまう恐れがある。

そこで、多くの遺物をできるだけ短時間にその材質を識別できる手法として、申請者らは、イメージングプレート(I.P)を用いた自然放射線量の検出による識別方法(AR法)を見出した。この手法を、従来不可能であった数千点の遺物に適用することによって、比較的短時間に遺物の識別をおこない、重要な遺物については、X線分析を用いた詳細な調査をすることにより、日本におけるガラスの流通・交易およびその生産地などを明らかにで

きるものと考えている。着色材料は、陶磁器とも共通点が多く、また奈良時代から再び出現する鉛ガラスと、国内や中国の鉛釉陶器生産の関連など、両者を同時に調査研究することにより技術的・材料科学的にも共通点が多いガラスとセラミックスの、当時の産業・技術史的な観点から、伝播や流通などの解明に役立つものと考えている。

### 2. 研究の目的

古代ガラス・セラミックスの材質調査から、国内での流通・伝播の差異を明らかにし、当時の権力機構による分配の構造や、産業・技術史的な流れを解明することを目的とする。本研究ではAR法について、基礎的研究として放射線量の蓄積量を数量化することによって、測定条件が異なる測定である場合に、どこまで比較が可能であるか、また定量化が可能であるかどうかに向けた研究に取り組む。

さらに材質による識別をおこなった後、重要な遺物についてはX線分析を用いた精密な分析調査をおこなうことにより、当時の産業・技術史的な流れを明らかにする。着目したい元素としてマグネシウム、アルミニウム、コバルト、マンガン、鉄等が挙げられる。例えばマンガン含有量などからカリガラスの生産地は中国と考えられてきたが、マンガン含有量の少ないタイプについては南アジアで生産が行なわれていた可能性も考えられるため、これらの生産地問題を解明していく。鉛釉の着色材料についても同様な調査をおこない、当時の産業・技術史的な流れを明らかにする。

### 3. 研究の方法

考古資料の選定として、関東・中部・近畿・中国地方の60遺跡から出土しているガラス資料、唐三彩の窯跡および平城京出土の陶磁器資料約5280点の分析調査をおこなっている。

#### (1) 内部構造調査と顕微鏡観察による加工方法に関する調査

I.Pを用いた透過X線撮影(CR(コンピュータグラフィック))法により内部構造調査、画像解析、および鉛ケイ酸塩ガラスとアルカリケイ酸塩ガラスの検出を実施した。実体顕微鏡では、加工方法について大きく管切法、鋳

型法、その他に分類し、類似する特徴を有する資料を抽出し、それらの特徴を記載することとした。CR法での測定条件は、資料形状により異なるが、およそ管電圧 40-55kV、管電流 40-60  $\mu$ A、照射時間 40-60 秒である。

## (2) 材質に関する調査

I.P.を用いたAR法と、ED-XRF分析をおこなった。非破壊分析のため、風化層の影響を含んでいると考えられるが、100倍率の顕微鏡観察からできるだけ風化および付着物の影響が少ない部分を選び測定をおこなった。定量化にはガラス標準試料(アルカリケイ酸塩ガラス7点、鉛ケイ酸塩ガラス10点)を用いて検出元素を各酸化物にし、100wt%になるよう規格化しFP法により定量化した。

## (3) I.P.を用いた蓄積型自然放射線量の測定(AR法)

ガラスおよび粘土の標準試料を利用し、蓄積した自然放射線量を数値化するための実験をおこなった。AR法では日本標準岩石試料や標準ガラス試料を異なる条件で測定し、AR画像データやPSL値の比較検討をしていく。放射能強度に対するPSLの応答性が均一であることが、定量的解析を保証する上で重要である。出土遺物の場合、PSLの応答性に影響する要因としては、部分的劣化や土などの汚染、キズあるいは資料の反り(曲面)、ピクセル当たりの放射線到達量が少ない場合の統計的変動などが挙げられる。そこで出土遺物の場合のPSLの応答性に影響する要因について検討するため、まず標準試料等を用いて測定し、風化の影響については出土遺物を用いて測定をおこなった。

## 4. 研究成果

### (1) 内部構造調査と顕微鏡観察による加工方法

CR法を用いた内部構造調査では、ガラスでは表面の風化や色調の濃い資料など透過光による観察が困難な資料について適応し、内部の気泡、流理などが顕著な資料を分類することができた。さらに鋳型法、その他の資料で内孔部に顕著な凹凸を持つ資料を検出した。また陶磁器資料では内部に釉薬が内包されている資料があり、これらから製造過程での作業を推定できる可能性もある。加工方法は管切法と考えられる特徴を持つ資料が多いが、土口將軍塚古墳や四辻土壙墓などのガラス資料では、加工方法と化学組成の相関が見られる資料もある。

### (2) 材質に関する調査

AR法により修飾(中間)酸化物で分類した資料について、非破壊分析的な手法として蛍光X線分析法にて調査をおこなった。特にマグネシウム、アルミニウム、マンガン、コバルト、鉄、銅などに着目し、紺色ガラスの色料と鉛釉陶器や染付の青料についても比較検討をおこない、あわせて時代的・地域的な変遷を検討した。

各時期の着色料について、マンガン・鉄をコバルトで規格化したグラフを図1に示す。今回の調査資料では、弥生時代後期に出現する紺色ソーダ石灰ガラスはすべて酸化マンガ含有量の多いタイプで、その分布はカリガラスと類似する傾向がある。次の段階では酸化マンガ含有量の多いものと、酸化マンガ含有量の少ないソーダ石灰ガラスの両方が確認され、丹後半島出土資料では古墳時代前期に、瀬戸内海沿岸・本州中部の資料では古墳時代中期に両方が確認できるなど地域差が認められた。またマグネシウム含有量の差異が認められる。古墳時代後期ではほとんどが酸化マンガ含有量の少なく、マグネシウム含有量が多いソーダ石灰ガラスであった。これら2種類の紺色ソーダ石灰ガラスでは、酸化アルミニウム含有量にも差異が認められ、弥生時代後期に確認された酸化マンガ含有量の多い資料は、酸化マグネシウム含有量は少ないという特徴を示し、淡青色ソーダ石灰ガラス(酸化アルミニウム含有量が

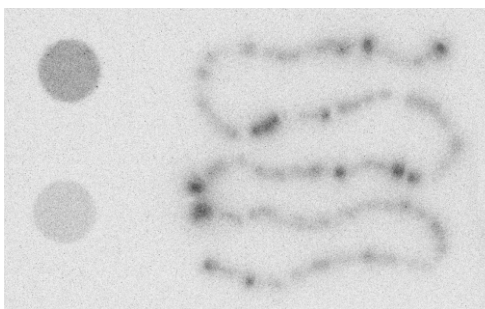
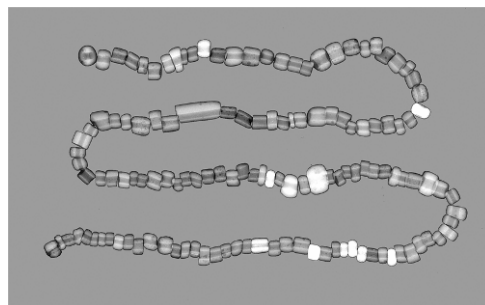


写真1: CR法・AR法の一例  
上: CR画像(密度が高いほど白い)  
下: AR画像(カリウム含有量が多いほど黒い)

多く酸化カルシウム含有量の少ない) 資料と比較すると、酸化アルミニウム含有量も少ない傾向を示している。また、高アルミナのソーダ石灰ガラスではコバルトをほとんど含まないマンガンと銅を含む資料が認められ、それらは古墳時代後期に顕著に認められる(図 2)。カリガラスの青料についての時期差は検出できなかったが、弥生時代の資料に Fe 含有量が若干多い資料が検出できたため今後注意して分析資料数を増やし検討していきたいと考えている。

陶器資料については、7~8世紀にかけての唐三彩窯跡の資料(生産地遺跡)と平城京(消費地遺跡)での材質・焼成温度の差異、国内におけるそれらの変遷について調査し、さらに青料についての差異などを比較検討した。青料については、近世の青花・染付資料の分析値についてもあわせて検討をおこなった。釉薬部の微量元素として砒素、亜鉛などが生産地遺跡と消費地遺跡では異なる傾向を示し、焼成温度や基礎釉と白釉の差異などが明らかになった。青料については、マンガン含有量が少ないことなどは、古墳時代に流通する紺色ガラスと類似するが、鉄、コバルト、マンガンの相対的な比較では分布領域が異なる。このため青料については、さらなる検討が必要であると考えられる。

分析はすべて非破壊分析であるため、風化などの影響で、資料によっては値にばらつきが認められるものの、非破壊分析ではあるが、分析点数が多いため、個々の差異とともに、全体の傾向を掴むことが可能であった。材質調査を実施した調査研究資料約5280点について、化学組成および色調、形状などの観察・分析結果を基にして資料データの蓄積を進め、焼成温度などの差異、白色釉薬の使い分けの可能性、加工方法の特徴、材質の変遷などに関する知見を得ることができたと考えている。

### (3) I.P を用いた蓄積型自然放射線量の測定 (AR 法)

検討事項として次の3点に着目し測定を実施した。IP に接している試料面積、IP と試料間の距離、測定時間である。

AR 法を用いた新しい比較検討法については、PSL の応答性に影響する要因については、標準試料を用いた実験から要因の一部については軽減できる可能性があり、出土資料に関しては X 線分析結果とのクロスチェックをおこなうなど、本手法の精度を高めていくことにより、利用の可能性はあるといえる。さ

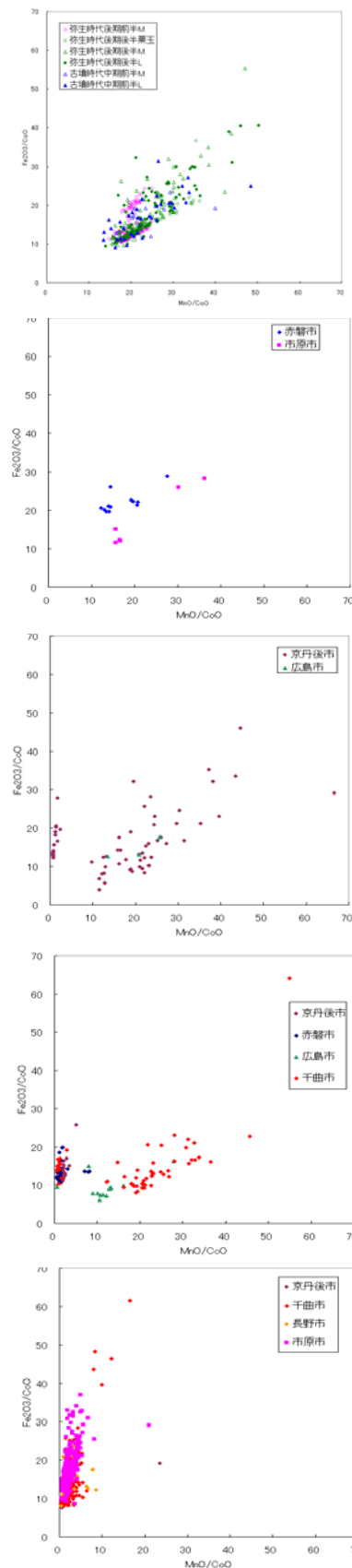


図 1 ; MnO/CoO-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/CoO の分布  
上からカリガラス、ソーダ石灰ガラスの各時期  
(弥生時代後期、古墳時代前期、中期、後期)

らに PSL 値の変動が許容される範囲にあるかどうかを検証するために、風化した出土遺物を資料として用いて X 線分析結果とのクロスチェックをおこなった。非破壊 X 線分析では、表面風化層の影響で検出できない中間酸化物の差異が AR 法により検出できているが、PSL 値の変動は資料による差異が大きく、資料形状含めて測定条件など考慮すべき点などの検証を引き続きおこなう必要がある。

AR 法では放射線量を数量化しカリウム含有量の定量化を目指したが、標準資料による実験では測定条件ごとに可能ではあったものの、非破壊分析による考古資料の場合では、形状および表面付着土壌などによる影響が大きく、資料が IP と接する面積については、ある程度の規格化が必要となるなどの課題が残った。しかし AR 法を用いた迅速なアルカリガラスに関する分類については、1 遺跡から出土したガラス約 1557 点中に 12 点のみ含まれていたカリガラスの存在を明らかにすることができたことなど従来と同様に有意義な成果を得ることができた。

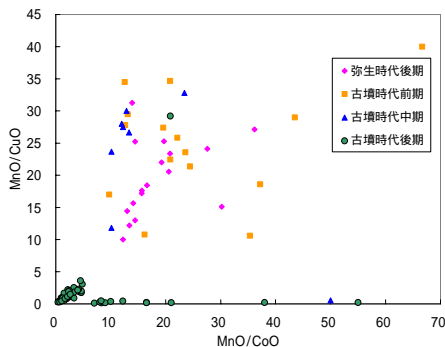


図 2: ソーダ石灰ガラスの各時期における CuO の含有量

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 7 件)

降幡順子、真弓鑓子塚古墳出土ガラス玉の分析、真弓鑓子塚古墳発掘調査報告書 7、査読無、2010、pp.84 - 95

降幡順子、他 7 名、1 番目、弥生・古墳時代出土紺色ガラス小玉の着色材の分析調査、日本文化財科学会第 26 回大会研究発表要旨集、査読無、2009、pp.214 - 215

降幡順子、まぼろしの唐代精華、黄冶唐三彩窯の考古新発見展図録、章唐三彩の理化学分析、査読無、2008、pp.50-51

降幡順子、肥塚隆保、白水瓢塚古墳出土ガラス小玉・連玉の分析調査、白水瓢塚古墳発掘調査報告書、査読無、2008、

pp.115-119

降幡順子・神野恵・今井晃樹・肥塚隆保、平城宮跡出土三彩・緑釉陶器と緑釉瓦の自然科学的分析、日本文化財科学会第 25 回大会研究発表要旨集、査読無、2008、pp. 228-229

降幡順子、肥塚隆保、中村大介、兵庫津遺跡出土青花(染付)磁器の自然科学的調査、文化財保存修復学会第 29 回大会研究発表要旨集、査読無、2007、pp.310-311

降幡順子・巽淳一郎、非損傷分析法測試黄冶窯唐三彩之特性、華夏考古(Huaxia Archaeology Huaxia Kaogu)、査読有、2007、pp.142 - 152

[学会発表](計 6 件)

降幡順子、弥生・古墳時代出土紺色ガラス小玉の着色材の分析調査、日本文化財科学会、2009.7.11 - 12、名古屋大学

降幡順子、X 線による文化財の調査、第 5 回 X 線・遠赤外線・マイクロ波産業応用重点研究分科会、関西文化学術研究都市推進機構新産業創出交流センター、2009.8.6

降幡順子、平城宮跡出土三彩・緑釉陶器と緑釉瓦の自然科学的分析、日本文化財科学会、2008.6.14 - 15、鹿児島国際大学 Junko Furihata、Two Radiographic Techniques for the Nondestructive Study of Glass Beads、Society for East Asia Archaeology (SEAA) 4<sup>th</sup> Worldwide conference、2008.6.3 - 5、中国社会科学院考古研究所(北京)

降幡順子、Technical Examination of some glass beads excavated in Japan、International Symposium on Conservation of Cultural Heritage in East Asia、2007.10.31 - 11.2、ソウル歴史博物館(ソウル)

Junko Furihata、Characteristics of tri-colored earthenware from the Huangye kiln site and the Heijo Capital site determined by non-destructive analysis、Fourth Forbes Symposium on Scientific Research in the Field of Asian Art、2007.9.27 - 29、Freer Gallery of Art (Washington D.C.)

[図書](計 2 件)

Junko Furihata、Junichiro Tastumi、Archetype publications、Scientific Research on Historic Asian Ceramics、2009、p.234(pp.133 - 140)

肥塚隆保、朝倉書店、ガラスの百科事典、  
2007、p.668(pp.40 - 45)

## 6 . 研究組織

### (1)研究代表者

降幡 順子 (FURIHATA JUNKO)  
独立行政法人国立文化財機構奈良文化財  
研究所・都城発掘調査部・主任研究員  
研究者番号：60372182

### (2)研究分担者

肥塚 隆保 (KOEZUKA TAKAYASU)  
独立行政法人国立文化財機構奈良文化財  
研究所・副所長  
研究者番号：10099955  
(H19-H20：研究分担者)

高妻 洋成 (KOHDZUMA YOHSEI)  
独立行政法人国立文化財機構奈良文化財  
研究所・埋蔵文化財センター・保存修復科  
学研究室長  
研究者番号：80234699  
(H19-H20：研究分担者)