

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 20 日現在

機関番号：84604

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22500980

研究課題名（和文） 古代ガラス・釉薬の物性から探る製作技法に関する科学研究

研究課題名（英文） Scientific study about the production technique to investigate from the physical properties of the ancient glass and glaze

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）：

鉛ガラスおよび鉛釉陶器の原材料に関して、時期的・地域的な相違に関して検討した。特に7世紀に出土する鉛釉陶器や奈良三彩が出現する8世紀の出土資料に着目して分析調査をおこない、それらの科学的特徴を明確にした。7世紀には複数地域の鉛原料の使用が認められたが、その中で飛鳥池遺跡出土資料から国産鉛原料を使用した鉛釉陶器の存在を明らかにし、7世紀後半には鉛釉陶器の国内生産が行われていたことを確認した。また8世紀の奈良三彩・緑釉陶器の中から、鉛同位体比が今まで奈良時代の集中領域と言われていた領域以外に存在する資料を新たに見出した。さらに緑釉の原料である緑色顔料は、少なくとも2種類存在することを明らかにすることができた。

研究成果の概要（英文）：

The raw materials of the lead-glass and lead-glazed ceramics were examined the difference about age and productive region. It paid attention to the two type of lead-glazed ceramics; (1)Excavated in the 7th century site, (2)Japanese tri-colored ware which appeared in the 8th century. These shards were analyzed to clarify the chemical characteristics. Though the use of the lead raw material in two or more regions was admitted in the 7th century, the existence of glaze using a domestic lead raw material was clarified in Asukaike site. So it was confirmed that domestic production had been done in the latter half of the 7th century. Moreover, the shards that existed besides the area where the lead isotope had been called 'concentrated area of the Nara era' up to now was newly found from the Japanese lead-glaze among the 8th century shards. In addition, the green pigment that was the raw material of the green glaze was able to clarify existence by at least two types.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2011年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2012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：製作技法・原材料・鉛同位体比分析・鉛釉陶器

1. 研究開始当初の背景

申請者は、これまで古代ガラス・釉薬の研究を継続しており、以下のような成果と得るとともに、本研究を申請する動機となる点も明らかになってきた。

(1) 古代から中世に出現しているガラス材質について明らかにし、さらにそれぞれのガラスの出現時期、衰退時期について時代的な変遷を明らかにした。

(2) ガラスの化学組成から流通経路の推定をおこない、特に中国系、西アジア系、東南アジア（インドパシフィック）系などの存在を明らかにした。

(3) 鉛釉陶器の中国および日本での製作技術の差異および中国でみられた蠟抜き法に関して製作技法が明らかになってきた。

(4) 顕微鏡観察から、施釉方法やガラスの加工方法が推定され、さらに最近ではデジタルラジオグラフィを導入することにより、詳細な加工方法が明らかになってきた。

これら研究成果から、加工方法とガラスの材質調査をおこなうことにより産地が推定できる可能性がでてきた。また、ガラス・釉薬の製造・加工方法については推定の域を得ず、物性に関する研究の必要性が明らかになった。

ガラス・釉薬の加工方法に関しては、様々な説があり、古代ガラスの物性については、アメリカ・コーニングで実施された実験用ガラス試料によるものが唯一である。

古代ガラス・釉薬には気泡、融液中の溶け残り粒子や結晶の析出、脈理スジなど加工痕跡が残存している遺物がある。これらは融解時または加工時の履歴の一部でもあり、遺物の化学組成、粘度を含む諸物性、温度などに密接に関連がある。そこで本研究では、加工方法と粘度などの物性を明確にし、古代ガラス・釉薬の製作技術的な発展を考える上で重要な知見を得ることにより、日本における国産の鉛釉・鉛ガラス誕生に向けた製作技術や原材料の流通を明らかにすることを目的としている。

2. 研究の目的

古代ガラス・釉薬の材質に関する研究はおこなわれているが、ガラス・釉薬の物性については、一般的に多成分系でできているため測定は難しく、物性に関する研究は初等的な段階にとどまっているのが現状である。ガラス・釉薬など高温の融液を加工・利用する際には、その化学組成と作業時の温度により、粘度や体積膨張率、表面調力などの物性が異なる。加工方法を検討する場合、さまざまな条件を考慮する必要があ

るが、本申請では特に「粘度」という物性に着目して古代ガラス・釉薬の加工方法を解明していく。弥生時代に流通していた鉛ガラスは、その後古墳時代に一旦途絶え、アルカリガラスが主流となる。しかし7世紀には鉛釉が出現し、飛鳥池工房遺跡では鉛ガラスの生産が開始されていく。このような変遷の中で、ガラスの加工方法および物性と、ガラスの種類や時代による差異を明確にし、ガラス・釉薬の初期国産段階の製造・加工方法に関する技術を明らかにする。

調査対象資料としては、製品として流通していた完成品であるガラス・施釉陶器とともに、工房遺跡などから出土するルツボ残存物、鋳型、未製品など、製品以外の出土遺物を対象とし、それらの加工方法と物性調査を実施し、その化学組成や作業範囲温度などの製作技術を検討していく。遺物の加工法については、顕微鏡観察によるほか、イメージングプレート（IP）を用いた高精細 X 線透過撮影（コンピュータラジオグラフィ法：CR法）を実施し内部の構造を明らかにする。遺物の化学組成に関しては蛍光 X 線分析にておこない、さらに微量元素分析・鉛同位体比などもおこない、産地推定に有用なデータを獲得することにより、多方面から鉛ガラス・鉛釉陶器の化学的特徴を捉えていく。

鉛ガラス・鉛釉の出現には中国・朝鮮半島の影響が考えられている。当時の産業・技術史的な視点からガラスや釉薬の製作技術がどのように伝播するのかなど、地域的、時代的な関連について解明していく。

3. 研究の方法

本研究の目的を達成させるため、まず工房遺跡出土品（製品・未成品）に対して加工方法に関する観察調査、材質・物性調査を実施する。調査手法は透過光による顕微鏡観察および高精細画像の獲得が可能である IP を用いた透過 X 線撮影（CR法）、粘度などの物性調査には、主なガラス組成について軟化点、徐冷点、流動温度、作業温度範囲を測定する。一部の実験については、参考（標準）試料を製作することにより、実験に要するサンプル量に関わる問題を回避し、不足データを補う。さらに比較検討の対象として、弥生・奈良時代の鉛ガラスや古墳時代のアルカリガラス、東アジア地域のガラス・釉薬資料に対しても分析調査をおこない、当時の加工方法・製作技術とその変遷を解明していく。

4. 研究成果

(1) 飛鳥・藤原地域から出土した所属時期が7世紀の鉛釉陶器の鉛原料は、中国華南領

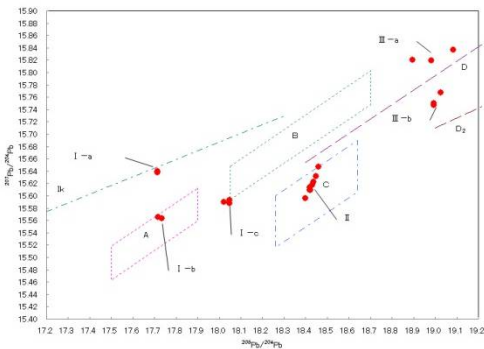
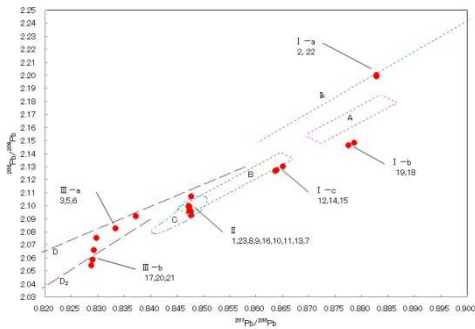


図1 飛鳥・藤原地域出土鉛釉陶器の鉛同位体比分析結果
(上: a式図、下: b式図)

域、朝鮮半島領域、百済地域、遼東半島と考えられる範囲に分布する鉛同位体比の値を示した。このため当該時期には同一地域の鉛原料ではなく複数の鉛原料産地の製品が認められるといえ、当時の活発な交流が窺える結果となった。また焼成温度が唐三彩ほど高温ではない資料に割合が多いことがわかった。

(2) 飛鳥池遺跡出土の鉛釉陶器の鉛同位体比分析結果から、国内産の鉛原料が使用されている資料が含まれていることがわかった。このことから飛鳥池遺跡では国内産原材料を用いた鉛釉陶器の生産がおこなわれていたことが確認できた。さらに、飛鳥池遺跡からは、朝鮮半島産および百済地域の範囲の分布する鉛同位体比の結果も得られた。このことから飛鳥池遺跡の鉛釉陶器の生産には朝鮮半島の影響が原材料の調査からも矛盾しない結果となった。

(3) 8世紀の国内産の鉛ガラス・鉛釉の分析調査から、青銅製品に多くみられる奈良時代の鉛といわれる長登鉾山・蔵目喜鉾山周辺と考えられている鉛同位体比分析値の範囲以外の値を示す資料の存在を明らかとした。このため、この時期に短期間の操業もしくは未知の鉾山があった可能性が考えられる。

(4) 緑釉に用いられる緑色顔料は、銅を主成分とする顔料であるといえる。この緑釉の調査から、亜鉛を含む銅が主成分の顔料と、亜鉛を含まない銅が主成分の顔料があることがわかった。7世紀から11世紀の緑釉および河南省の複数の窯後出土資料でも確認

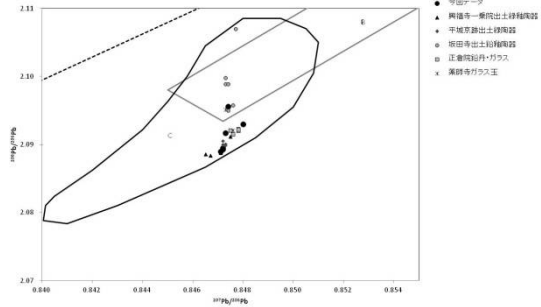


図2 奈良時代資料でみられた鉛同位体比値

できたことから地域、時代を超えて流通している顔料であるといえる。また絵画資料の緑色顔料としても国内では奈良時代と考えられる部分からも検出しているため、緑色顔料と同じもしくは類似する緑色顔料が緑釉にも使用されていたといえることがわかった。

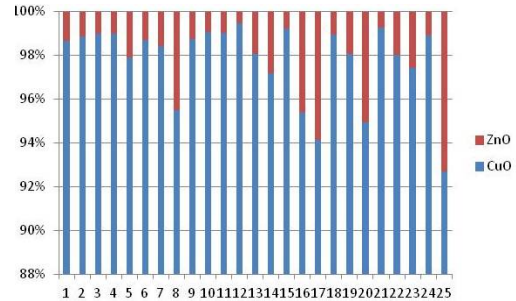


図4 緑釉から検出される亜鉛(春日北窯跡出土緑釉の例)

(5) 中国河南省窯跡出土資料の調査から、焼成温度は約1100度以上の資料で占められていることがわかった。このことから二度焼きであることが確認できた。また鉛原料に関する調査では、鉛同位体比の値が、黄冶窯出土資料の集中範囲を示す資料を、藤原京・平城京出土資料に認めることができ、これらの資料が黄冶窯の製品である可能性を示唆することができた。

(6) 8世紀前半は、奈良三彩の生産が開始される時期である。このため、所属時期が初現期にあたる資料の国内産原料の使用を明確にし、さらにその資料の科学的特徴を示すことが重要である。そこで、奈良三彩の初現期と推定されている資料の分析調査をおこなった。これらの胎土分析、釉薬の鉛同位体比分析結果から、現在最も古い時期に相当する奈良三彩を確認するに至り、その特徴も示すことができた。

(7) 鉛ガラスの化学組成のうち、PbO含有量を40%、55%、60%、65%、70%と変化させ、ガラス転移温度を測定した。古代には30-40%前後の組成と60-70%前後の組成の2種類があるといわれているため、これらの化学組成の資料を作成した。40%PbOと70%PbOを比較すると、ガラス転移温度は456℃と

560°Cとなり、約100°C異なることがわかった。また屈伏点は、40%PbOと70%PbOではそれぞれ488°Cと652°Cであった。

(8) 胎土のマトリックス部の微量の胎土分析から、化学組成による差異を検出することが可能であることがわかった。今回は特に鉄含有量とアルミナ含有量に着目した。鉄含有量は、奈良三彩で灰白色を呈している資料よりも唐三彩資料の鉄含有量は少ないことがわかった。また7世紀の朝鮮半島産の鉛原料が使用された鉛釉陶器の鉄含有量は、4～6%程度と高い値を示していることがわかった。

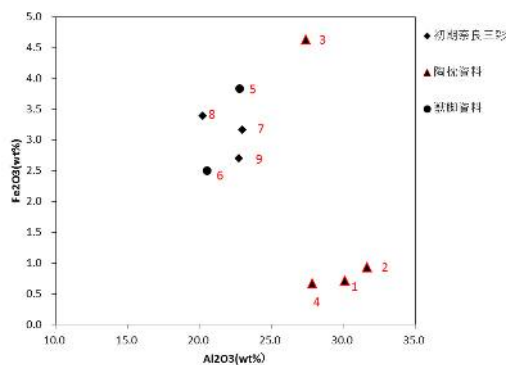


図5 胎土の化学組成

(9) 中世に新たに出現するカリウム鉛ガラス資料について、博多遺跡から出土した埴埴付着ガラス質に関して調査をおこなった。新たに設定された埴埴形式にしたがって分類が行われた埴埴資料に対して鉛同位体比分析を実施し、その付着物であるカリウム鉛ガラスの鉛原料の産地推定をおこなった。今回の測定から、所属時期に対応して、11世紀から12世紀前半までは、朝鮮半島産・対州鉾山産、およびそれらが混合された可能性を含む、複数の産地の鉛が使用されていたのに対し、12世紀後半以降はむしろ日本産の鉛のほうが多く、対州鉾山産の原料のみによる生産へと収斂していることがいえる。さらに12世紀以降には日本産の鉛原料のほうが多いことから、一次生産関連遺物は検出されていないものの、国内においてカリウム鉛ガラスの一次生産がおこなわれていた可能性が高いと考えられる。

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14件)

- ① 降幡順子、玉田芳英、齋藤努、飛鳥・藤原京出土鉛釉陶器に対する化学分析、東洋陶磁 vol. 41、査読あり、2012、pp19-34
- ② 降幡順子、神野恵、奈良三彩の技術的・

化学的特徴に関する研究ノート(1) — 平城宮土器Ⅱの奈良三彩 —、河南省鞏義市白河窯跡の発掘調査概報、奈良文化財研究所研究報告第11冊、査読無、2013、pp. 107-112

- ③ 降幡順子、脇谷草一郎、高妻洋成、携帯型蛍光X線分析装置を用いた甗の分析調査、朝陽地区隋唐墓の整理と研究、奈良文化財研究所学報第91冊、査読無、2013、pp. 225-328
- ④ 降幡順子、5世紀から7世紀における金・銀・金銅製品の自然科学的調査、三国時代 国家の成長と物質文化Ⅰ』、韓国学中央研究院、査読無、2013、pp. 233-244
- ⑤ 降幡順子、青谷上寺地遺跡第1次調査出土のガラス資料の調査、青谷上寺地遺跡出土品調査研究報告9 玉・玉作関連資料、鳥取県埋蔵文化財センター、査読無、2013、pp159-171
- ⑥ 降幡順子、松原10号墳から出土した青銅製勾玉およびガラス玉の調査、松原10号墳発掘調査報告書、鳥取市埋蔵文化財センター、査読無、2013、pp. 27-34
- ⑦ 降幡順子、春日北遺跡出土緑釉陶器の自然科学的分析、春日北遺跡—甲賀市水口町春日』、滋賀県教育委員会・滋賀県文化財保護協会、査読無、2012、pp130-136
- ⑧ 降幡順子、松原1号墳墓出土のガラス製管玉・勾玉・小玉について、松原1号墳墓発掘調査報告書、鳥取市教育委員会、査読無、2012、pp59-67
- ⑨ 降幡順子、大島御嶽山遺跡出土緑釉陶器の自然科学的分析、大島御嶽山遺跡発掘調査報告書』、宗像市教育委員会、査読無、2012、pp70-78
- ⑩ 降幡順子、大谷3号窯出土緑釉陶器の自然科学的分析調査、篠窯跡群大谷3号窯の研究、査読無、2012、pp281-292
- ⑪ 木村理恵、降幡順子、坂田寺SK160出土地鎮具、奈良文化財研究所紀要2011』、査読無、2011、pp137-140
- ⑫ 巽淳一郎、西口壽生、神野恵、降幡順子、古代日本・中国鉛釉陶器の釉薬の鉛同位体比測定、華夏考古2011-2号、河南省文物考古研究所、査読無、2011、pp148-152
- ⑬ 降幡順子、山城国府跡出土銅インゴットの自然科学的分析、大山崎町文化情報2009』、京都府大山崎町教育委員会、査読無、2011、pp28-33
- ⑭ 降幡順子、巽淳一郎、非破壊分析からみた黄冶窯三彩の特質、河南省鞏義市黄冶窯跡の発掘調査概報、奈良文化財研究所研究報告第2冊、査読無、2010、pp35-48

[学会発表] (計3件)

- ① 降幡順子、神野恵、玉田芳英、齋藤努、8世紀における都城・寺院跡出土鉛釉陶器

の化学分析からみた特徴、日本文化財科学会第 29 回大会、2012. 6. 23-24、京都大学

- ② 降幡順子、林亨、池田善文、小泉武寛、松村恵司、山城国府跡出土銅インゴットの自然科学的研究、日本文化財科学会第 28 回大会、2011. 6. 11-12、筑波大学
- ③ 降幡順子、加藤真二、相原嘉之、七宝亀甲型金具の材質・構造調査、日本文化財科学会第 27 回大会、2010. 6. 26-27、関西大学

[図書] (計 4 件)

- ① 降幡順子、牽牛子塚古墳出土ガラス玉の分析、牽牛子塚古墳発掘調査報告書 明日香村文化財調査報告書第 10 集、2013、pp. 183-191
- ② 降幡順子、牽牛子塚古墳出土七宝飾金具の分析、牽牛子塚古墳発掘調査報告書、明日香村文化財調査報告書第 10 集、2013、pp. 192-200
- ③ 降幡順子、藤原京・平城京出土鉛釉陶器の化学分析からみた特徴、奈良文化財研究所学報第 92 冊文化財論叢Ⅳ、2012、pp. 1385-1394
- ④ 降幡順子、青いガラス玉のつくりかた、弥生人の彩エンス、出雲弥生の森博物館、p32-33、2010. 7. 17

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・埋蔵文化財センター・客員研究員
研究者番号：10099955

(3) 連携研究者

齋藤 努 (SAITO TSUTOMU)
国立歴史民俗博物館・研究部・教授
研究者番号：50205663

玉田 芳英 (TAMADA YOSHIHIDE)
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・考古第二研究室長
研究者番号：90188425

高妻 洋成 (KOZUMA YOSEI)
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