

日本出土アルカリ珪酸塩ガラスの考古科学的研究

—弥生～古墳時代に流通したガラス小玉の再分類—

田村 朋美

目 次

第 1 章 序 論 -----	1
1-1 はじめに -----	1
1-2 ガラスの定義と分類 -----	2
1-2-1 ガラスの定義 -----	2
1-2-2 ガラスの分類と名称 -----	3
1-3 理化学的手法による古代ガラスの研究史 -----	6
1-3-1 地中海周辺地域および西アジアの古代ガラス -----	6
1-3-2 南アジア, 東南アジア, 東アジアの古代ガラス -----	7
1-3-3 日本列島の古代ガラス -----	8
1-4 問題の所在 -----	10
1-5 研究の目的 -----	13
第 2 章 資料と方法 -----	19
2-1 調査資料 -----	19
2-2 調査方法 -----	19
2-2-1 顕微鏡観察 -----	22
2-2-2 CR 法 -----	23
2-2-3 AR 法 -----	24
2-2-4 蛍光 X 線分析法 -----	25
2-2-5 ラマン分光分析法 -----	26
2-3 蛍光 X 線分析の FP 法による定量値の精度 -----	26
2-3-1 実験の方法 -----	27
2-3-2 結果と考察 -----	27
2-4 完全非破壊法によるアルカリ珪酸塩ガラスの分類の妥当性 -----	27
2-4-1 ガラスの風化による化学組成の変化 -----	28
2-4-1-1 実験の方法 -----	28
2-4-1-2 結果と考察 -----	29
2-4-2 AR 法と蛍光 X 線分析を併用したアルカリ珪酸塩ガラスの分類 -----	34
2-4-2-1 AR 法によるカリガラスとソーダ石灰ガラスの判別 -----	35
2-4-2-2 完全非破壊法の蛍光 X 線分析によるカリガラスの細分 -----	37
2-4-2-3 完全非破壊法の蛍光 X 線分析によるソーダ石灰ガラスの細分 -----	37
2-4-2-4 着色剤の分類 -----	40
2-4-2-5 小 結 -----	43

第3章 アルカリ珪酸塩ガラス小玉の分類	45
3-1 分類の手順	45
3-2 製作技法	46
3-2-1 形態的特徴	46
3-2-2 製作技法の推定	65
3-3 基礎ガラスの特徴	74
3-3-1 カリガラス	74
3-3-2 ソーダ石灰ガラス	78
3-3-3 小 結	92
3-4 着色方法と着色剤の特徴	93
3-4-1 遷移金属イオンによる着色	93
3-4-1-1 コバルトイオン	93
3-4-1-2 銅イオン	97
3-4-1-3 鉄イオン	98
3-4-1-4 マンガンイオン	100
3-4-2 金属コロイドによる着色	101
3-4-3 結晶物質(顔料)の混入による着色	102
3-5 製作技法ー基礎ガラスー着色剤の対応関係	104
3-5-1 カリガラスの製作技法と着色剤	104
3-5-2 古墳時代のソーダ石灰ガラスの製作技法と着色剤	107
3-5-3 弥生時代のソーダ石灰ガラスの製作技法と着色剤	116
3-5-4 コバルト原料の分類	125
3-6 小 結	131
第4章 アルカリ珪酸塩ガラス小玉の生産地と交易ルート	137
4-1 日本列島におけるアルカリ珪酸塩ガラスの変遷	137
4-2 アルカリ珪酸塩ガラス小玉の生産地	142
4-2-1 カリガラス小玉の生産地	142
4-2-2 ソーダ石灰ガラス小玉の生産地	144
4-3 アルカリ珪酸塩ガラス小玉から見た交易ルートとその変遷	153
第5章 総 括	163
謝 辞	167
論文要旨	169

第1章 序 論

1-1 はじめに

ガラスは現代の日常生活に欠かせない存在である。ガラスには、黒曜石など天然に産出するものと人工的に作られるものがある。人工ガラスの起源には諸説¹⁾あるが、紀元前 3000 年頃までにはメソポタミア、シリア、エジプトでガラスが作られるようになった。その後、ガラスは盛衰を繰り返しながらも現在に至るまで作り続けられてきた。

人類の歴史の中で最初にガラス生産が栄えた時期は、エジプト第 18 王朝時代（紀元前 16～前 13 世紀）である。エジプト第 18 王朝時代には、メソポタミアで発明されたコア技法²⁾によるガラス容器の生産が大きく発展した。

その後、いったんガラス生産は衰退するが、ローマ帝国（紀元前 6 世紀～後 6 世紀）³⁾において再び隆盛する。紀元前 1 世紀に吹き技法⁴⁾が発明されると、ガラス容器の大量生産が可能となり、ローマ帝国の交易品としてユーラシア大陸各地に輸出された。ローマ帝国の東西分裂後も、ガラス生産はビザンツ帝国（4～15 世紀）やササン朝ペルシア（3～7 世紀）、イスラム帝国（7～13 世紀）⁵⁾などで栄えた。近世以降も、ベネツィア共和国やイギリス、フランス、ドイツなどのヨーロッパ各国で新しいガラス生産技術が開発され、現代へとつながるガラス産業が発展した。

一方、地中海周辺や西アジア地域で発達したガラスはインドや中国などに伝わり、それぞれ独自の発展を遂げた。インドでは、紀元前 3 世紀頃までに南部のアリカメドゥ（Arikamedu）で、インド・パシフィックビーズ（Indo-Pacific Beads）⁶⁾と呼ばれるガラス小玉の生産が始まった（Francis 1999, 2002）。インド・パシフィックビーズは、3 世紀頃までアリカメドゥなど南インドで生産されたが、その後、東南アジアに生産地が拡散した。南アジアから東南アジアの各地で生産されたインド・パシフィックビーズは、東アフリカから東アジアの沿岸地域に広く分布し、活発な海上交易活動がおこなわれたことを示す資料である。

中国では、戦国時代（紀元前 5～前 3 世紀）に中国独自の化学組成を有する鉛バリウムガラスが長江流域で出現し、漢代には黄河流域や中国東北部などにも広く分布した。一方で、漢代～魏晋南北朝時代（紀元前 3 世紀～後 6 世紀）にはローマ帝国やササン朝ペルシアで製作されたガラス容器が発見されていることから、これらの西方地域のガラ

スが海や陸のルートを通して活発に交易されていたと考えられている。さらに、長江以南の漢代の墳墓からは大量のインド・パシフィックビーズも発見されている（熊・李 2011）。

日本列島でも弥生時代以降、多くのガラス製品が流通した。日本列島におけるガラス製品の出現時期については、近年、縄文時代晩期の遺構からもガラス小玉の出土例が報告されているものの、確実な事例としては弥生時代前期末が最も古いとされる（大賀 2002, 富樫 2003）。日本列島に最初に流入したガラスはインド・パシフィックビーズである。インドのアリカメドゥでインド・パシフィックビーズが成立してほどなく、日本列島まで到達している（大賀 2002）。弥生時代後期には、すでに沖縄本島から北海道東部までの広い範囲にガラス小玉が流通していた。また、中国起源の鉛バリウムガラス製の管玉や璧、ササン朝ペルシアのガラス容器など、さまざまな起源をもつガラス製品が流入した。

以上のように、ガラスは古代社会に共通する普遍的な遺物であると言っても過言ではない。ガラス製遺物は、古代の物流や技術伝播を解明する手掛かりとなる多くの重要な情報を内包している。とくに、弥生～古墳時代の日本列島においては、ガラスそのものは生産されず、大多数は製品として搬入されたと理解されている（大賀 2002, 肥塚・大賀 2006）。そのため、弥生～古墳時代の遺跡から大量に出土するガラス製遺物の研究を通して、当時の交易関係や技術交流、さらにはガラスに反映された社会情勢を解明することが可能になる。

1 - 2 ガラスの定義と分類

1 - 2 - 1 ガラスの定義

遺跡から出土するガラス製品から当時の交易関係の様相を明らかにするには、その生産地や入手経路の解明が課題となる。ガラス製品からこれらの情報を得るためには、形態的特徴などの考古学的研究だけでなく、化学組成の把握など理化学的な手法を用いた研究が不可欠である。そこで、ここではまずガラスの理化学上の定義について述べる。

ガラスは特定の物質を意味する語ではない。結晶という語が規則正しい原子配列をもつ物質の

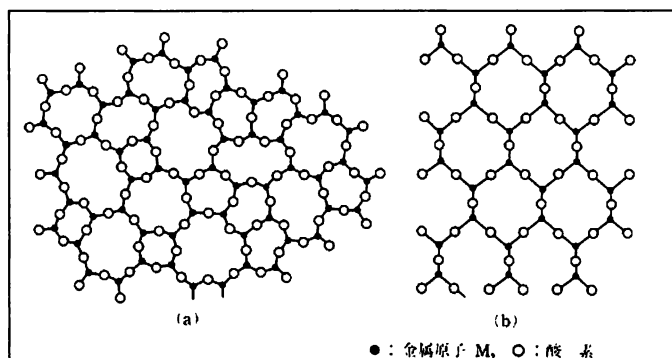


図 1-1 結晶とガラスの構造模式図（山根 1989 より抜粋）

(a) ガラス, (b) 結晶

状態をあらわすように、ガラスという語は、原子配列が不規則な網目構造をもち(図 1-1)、ガラス転移を示す物質の状態をあらわすものである(作花 2007)。現代では様々な方法でガラスが製造されているが、古代においてガラスは融液の冷却によって作られた。

ガラスがその原子配列において不規則な網目構造をもつとする説は不規則網目構造説と呼ばれ、サッカリアセン(Zachariasen)によって提唱された。その後、この説は多数の研究者によって支持され、現在に至っている(山根 1989)。図 1-2 にガラスとなる融液の体積と温度の関係を模式図として示す。

融点 T_m 以上の温度で液体である物質の温度を下げると、体積は液体の膨張係数に従って減少するが、融点付近での粘度が低く、結晶化しやすい融液は、融点で急激に結晶に変化して体積が減少する。結晶となる物質は粘度の高い状態を経ずに固体となるため、巻いたり伸ばしたりする加工はできない。これに対して、融点付近での粘度が高くガラス化しやすい融液は、融点で急激な体積の変化を起こすことなく過冷却の液体となり、液体の膨張係数に従って体積の減少を続ける。それと同時に、粘度は温度が下がるにつれて増大する。次いで、ガラス転移温度 T_g まで温度が下がると、過冷却液体は固いガラスにガラス転移し、それ以下の温度では、結晶と近似の膨張係数に従って体積が減少する。ガラス転移点に至るまでの過冷却の融液の状態においては、各温度段階に合わせて様々な加工を施すことができる。

以上のようなガラスの定義に合致する物質は、一般的な酸化物ガラスに限られるものではなく、硫化物やセレン化物などもガラスになる。また、現代では分子量の大きい有機化合物や金属合金にも、ガラスの定義に合致する物質が存在する。ただし、古代ガラス η として知られるガラスは、酸化物ガラスのなかでも二酸化珪(ケイ)素(SiO_2)を主成分とする珪(ケイ)酸塩ガラスである。

1 - 2 - 2 ガラスの分類と名称

古代ガラスを化学組成で分類する基準はなく、現代ガラスの分類法にならって主要な酸化物の組み合わせにより分類される場合が多い。ガラスを構成する酸化物は、ガラス

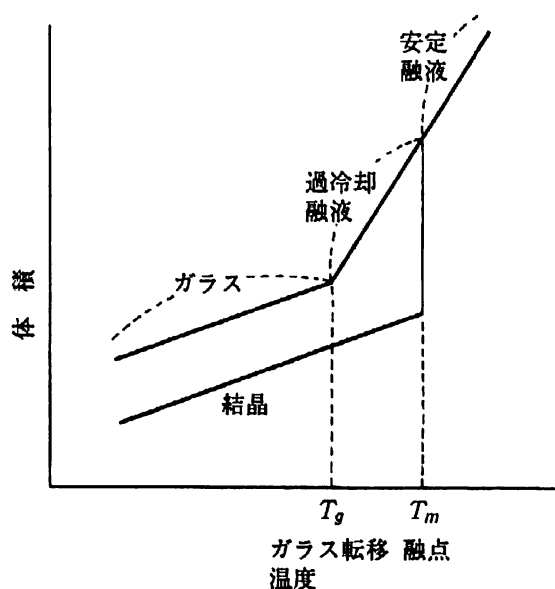


図 1-2 ガラスと結晶における体積の温度変化
(作花 2007 より抜粋)

の不規則網目構造説に基づき、役割に応じて三種類に分類される。サッカリアセンが提唱したガラスの不規則網目構造説によると、ガラスを構成する酸化物は、網目形成酸化物、網目修飾酸化物および網目中間酸化物からなる。網目形成酸化物とは、単独で3次元網目構造を形成しうる酸化物のことであり、古代ガラスの場合はすべて二酸化珪素 (SiO_2) である。これに対し、網目修飾酸化物は単独で網目構造を形成することはできないが、ガラスの性質に重要な影響を与える酸化物であり、酸化ナトリウム (Na_2O)、酸化カリウム (K_2O)、酸化マグネシウム (MgO)、酸化カルシウム (CaO) などが相当する。網目中間酸化物は、網目形成酸化物の一部と置換して網目構造の形成に加わるとともに、網目修飾酸化物としての役割も果たしうる成分で、酸化アルミニウム (Al_2O_3)、酸化鉛 (PbO) などが相当する。

網目修飾酸化物がガラスの性質に与える最も大きい効果は、熔融温度の低下である。したがって、古代ガラスは、主要な融剤として働く修飾酸化物の種類で分類されることが多く、融剤としてアルカリ酸化物を用いるものと鉛酸化物を用いるものに大別される (肥塚 1995)。アルカリ酸化物には、酸化ナトリウムと酸化カリウムがある。酸化ナトリウムを融剤として用いる場合、酸化ナトリウムと二酸化珪素の二成分系では化学的耐久性が著しく低下して実用ガラスとはならない (山根 1989)。そのため、通常は酸化カルシウムを加えて三成分系とすることから、一般にソーダ石灰ガラスと呼ばれる。また、主要な酸化物を列記して、 $\text{Na}_2\text{O}\text{-CaO}\text{-SiO}_2$ 系ガラスのように記載することもある。

一方、酸化カリウムを融剤とした場合は、二酸化珪素との二成分系で実用ガラスの製作が可能である。そこで、酸化カルシウムなどの他の修飾酸化物の含有量が少ないものは、単純にカリガラス ($\text{K}_2\text{O}\text{-SiO}_2$ 系ガラス) と呼ばれる。一方、中世ヨーロッパのヴァルトグラス (黒川 2009) のように、酸化カリウムに加えて酸化カルシウムの含有量が10%前後と多いものは、カリ石灰ガラス ($\text{K}_2\text{O}\text{-CaO}\text{-SiO}_2$ 系ガラス) として区別される。しかし、カリガラスとカリ石灰ガラスを区別する明確な基準はなく、酸化カルシウムの含有量が1%前後であっても、カリ石灰ガラスと記載されることもある (ブリル 1993)。また、酸化ナトリウムと酸化カリウムが両者とも多く含まれる場合には、混合アルカリガラスと呼ばれることもある (肥塚 1995)。これについても、混合アルカリガラスと酸化カリウムを数%含むソーダ石灰ガラスや、反対に酸化ナトリウムを数%含むカリガラスとを区別する明確な基準はなく、目的に応じて便宜的に分類されていることが多い。

鉛酸化物を融剤とした古代の鉛珪酸塩ガラスには、二成分系の鉛ガラス ($\text{PbO}\text{-SiO}_2$ 系ガラス) と酸化バリウム (BaO) を多く含む鉛バリウムガラス ($\text{PbO}\text{-BaO}\text{-SiO}_2$ 系ガラス) とが知られている。鉛バリウムガラスには、酸化ナトリウムや酸化カルシウムなど他の修飾酸化物を数%含有するものも存在する (肥塚 1995) が、それらはとくに区別されず、鉛バリウムガラス内の変異と理解されている。

上述のような網目形成酸化物、網目修飾酸化物および網目中間酸化物という概念を用いた古代ガラスの理解は、できあがったガラス中でのそれらの酸化物が果たす役割を説明するものであり、古代ガラスの製作の段階でそれぞれの酸化物の役割が意識されていたわけではない。一方、古代ガラスを実際の製作活動に関係する原料という観点から分類することもある。原料の差異はガラス製法の伝統の差異を反映している（ブリル 1993）。したがって、古代ガラスを原料から分類し、時期変遷や分布を把握することも、古代の交易関係や技術伝播を解明するためには重要である。

古代ガラスの原料は主剤、融剤、着色剤に大別できる。主剤は主成分となる二酸化珪素源となる物質のことで、石英礫や石英粒子を多く含む砂（砂漠の砂や川砂）が候補となる。ガラスの化学組成および当時の絵画や文字資料から古代エジプトのガラスの原料を推定したルカス（Lucas 1934）やターナー（Turner 1956）は、石英礫ではなく、適当な量の石灰分（酸化カルシウム）を含んだ砂漠の砂が主原料として用いられたとした。石英礫を用いた場合には二酸化珪素以外の不純物の含有量が極めて少ないのに対し、砂を主原料とした場合、酸化鉄など多くの不純物を伴うことから判断できる。

融剤原料としては、蒸発塩（鉍物系のソーダ原料）や植物灰、カリ硝石などのアルカリ原料と、方鉛鉍などの鉛原料がある。酸化ナトリウムを融剤としたガラスには、鉍物系のソーダ原料を利用したものと植物灰を利用したものが存在し（Sayre 1963）、酸化カリウムを融剤としたガラスにも、鉍物系のカリ硝石を利用したものと植物灰を利用したものがある（肥塚 1997）。これらは、酸化マグネシウムや酸化カリウムの含有量で区別される。

着色剤原料には、銅やコバルトなどの金属やそれらの元素を含む鉍物が利用されるほか、人工的に合成した顔料が添加されることもある。化学組成では、酸化銅（CuO）や酸化コバルト（CoO）などの金属酸化物が着色剤成分と考えられる。

ただし、古代ガラスを構成する各酸化物は、主剤、融剤、着色剤のどれかひとつに由来するとは限らない。たとえば、酸化鉄は、着色剤に由来する可能性もあると同時に、主剤となる珪砂に由来する可能性もある。このように、ガラスを構成する酸化物の含有量から原料を推定し、その差異から古代ガラスを分類する場合も様々な問題が存在する。

以上のように、古代ガラスを化学組成から分類する適当な基準がないことから、古代ガラスの分類法には、主要成分を組み合わせる方法や、原料に基づいて分類する方法などが混在している。ただし、いずれの場合もガラス形成に不可欠な主剤と融剤に由来する成分の含有量が分類の基準とされ、これらによって分類された分類単位をガラスの材質とよぶことがある。しかし、材質という語では、着色剤に由来する成分を含むのかどうか曖昧である。そこで、本論文では、主剤と融剤に由来する成分のことを基礎ガラス成分と呼び、その分類単位を基礎ガラスの種類とよぶ。

1 - 3 理化学的手法による古代ガラスの研究史

1 - 3 - 1 地中海周辺地域および西アジアの古代ガラス

理化学的手法による古代ガラスの研究は、欧米の研究者を中心に 1920 年代からおこなわれるようになり、1950 年代に大きく進展した (Sayre 1965)。そして、ガラス出現期のメソポタミアやエジプト、ローマ帝国、ササン朝ペルシアのガラスなど、地中海周辺地域や西アジアの古代ガラスを対象に化学分析が進められた。

地中海周辺地域や西アジアの古代ガラスは、主に融剤にアルカリ酸化物を利用するアルカリ珪酸塩ガラスである。アルカリにはナトリウム（ソーダ）が利用された。これらは、酸化マグネシウムと酸化カリウムの含有量によって大きく二分される (Sayre 1963)。酸化マグネシウムと酸化カリウムの含有量の差異は、融剤であるソーダ原料の差異に起因する。すなわち、酸化マグネシウムと酸化カリウムの両成分の含有量が 1.5～2 %⁸⁾ よりも少ないガラスはナトロン (Natron) をソーダ原料に使用し、両成分の含有量が 1.5～2 % よりも多いガラスは植物灰をソーダ原料としたと推定されている。それぞれ、ナトロンガラスおよび植物灰ガラス、あるいはナトロンタイプおよび植物灰タイプとよばれている。

ナトロンは、炭酸ナトリウムや炭酸水素ナトリウムなどを主成分とする鉱物系のソーダ原料の一種であり、エジプトなどの塩湖で蒸発塩として産出された (Lucas 1934)。ナトロンの産地としては、東アフリカのケニア南部にあるマガディ湖 (Lake Magadi) やエジプトのナトルーンの谷 (Wadi Natrun) などが有名である。ナトロンは古代エジプトの特産品で、1 世紀のローマの博物学者大プリニウス (Pliny the Elder) が著した『博物誌』のガラス誕生にまつわる説話の中にも登場する。ナトロンはミイラ作成の防腐剤 (Lucas 1934) や医薬品としてエジプト人に珍重され、エジプトがローマ帝国の支配下に入るとローマ帝国の専売品となった (丸山 1973)。

植物灰については、メソポタミアのニネヴェ土版に、ガラス生産に用いるアルカリ原料には海岸のザリコルニア (Salicornia) (和名：アツケシソウ) という植物を用いたという記述がある (Turner 1956)。植物灰は、ナトロンなど鉱物系のソーダ原料に比べて入手が容易であり、各地で様々な種類の植物の灰が用いられた (丸山 1973)。

1960 年代以降には、ソーダ原料の異なるこれら二種類のソーダ石灰ガラスの時期変遷や分布域の検討が進んだ。ガラスが発明されたメソポタミアや古代エジプト、ササン朝ペルシアなどでは、植物灰をソーダ原料としたソーダ石灰ガラスが生産され、ローマ帝国および 9 世紀頃までのビザンツ帝国やイスラム帝国初期の地中海周辺地域では、ナトロンをソーダ原料としたソーダ石灰ガラスが生産されていた (Sayre 1963, Gratuze and Barrandon 1990, Freestone *et al.* 2000)。ただし、ナトロンの生産地を支配下に置き

ていた古代エジプトでは、新王朝からプトレマイオス期にかけて一部のガラスにナトリウムが用いられた (Lucas 1934, 丸山 1973, Freestone *et al.* 2000)。その後、9世紀頃に、ナトリウムを原料としたソーダ石灰ガラスは衰退する。ナトリウムが枯渇したことが原因であるとも言われている (黒川 2009)。

2000年代に入ると、エジプトやシリア、西北ヨーロッパなどのナトリウムをソーダ原料としたソーダ石灰ガラスの化学組成の分析が急速に進展した。フリーストーンら (Freestone *et al.* 2002) の集中生産説やジャクソン (Jackson 2005) の分散生産説などを中心に様々な論考が発表され、ローマ帝国期～イスラム帝国初期のガラスの細分や生産地の推定がおこなわれている。

また、植物灰をソーダ原料としたソーダ石灰ガラスについても、分析資料の増加により細分が進んでいる。近年では、ササン朝ペルシアの中心地であるイラン高原で出土するものと、ササン朝ペルシアと技術的な交流があったと考えられる中央アジアで出土するものでは、化学組成に差があることが明らかとなってきた (Brill 2009, Lankton *et al.* 2009, 谷一 2011)。中央アジアのガラスは酸化カリウムが4%以上、もしくは酸化カリウムが酸化マグネシウムよりも多いという特徴が示されている。

1-3-2 南アジア、東南アジア、東アジアの古代ガラス

1980年代になると、南～東南アジアおよび東アジアで発見される古代ガラスに注目が集まり、その分布域や出現時期などに関する研究が進展した (Brill 1987)。ブリルは、南～東南アジアおよび東アジアで発達したガラスを「アジアのガラス」と呼び、地中海周辺や西アジア地域で発達した「西のガラス」⁹⁾ に比べて化学組成が多様であることを指摘した (ブリル 1993)。「アジアのガラス」には、鉛を融剤に用いた鉛ガラスや鉛バリウムガラスなどの鉛珪酸塩ガラスのほか、アルカリ珪酸塩ガラスでも酸化カリウムを融剤としたカリガラスや酸化アルミニウムの含有量の多いソーダ石灰ガラスが知られるようになった。

鉛ガラスおよび鉛バリウムガラスについては、鉛同位体比法による生産地の研究が進展し、中国産、朝鮮半島産、日本列島産のいずれかを判別することが可能となった。鉛ガラスは、3世紀頃までは中国で生産されたものが朝鮮半島や日本列島にもたらされ、7世紀頃に朝鮮半島や日本列島でも自国産の鉛ガラスが生産されるようになることが明らかとなった (肥塚 1995, 肥塚 2001, 国立扶余文化財研究所 2007)。

カリガラスは、広東省や広西チワン族自治区などの漢代の墳墓から多量に出土すること、ならびに典型的な中国様式の容器が存在することから、中国で生産された可能性が指摘された (Shi *et al.* 1986)。ただし、カリガラス製品には、中国以外でも生産可能なガラス小玉も多数存在している。とくに注目すべき資料として、広西省の後漢墓などで

は銅のコロイド着色による赤褐色不透明ガラス小玉が発見されている。当時の中国には銅コロイドによる着色技術はなく、すでにこの技術を獲得していたインドで生産された可能性も指摘された (Zhang 1991)。近年では、ランクトンら (Lankton and Dussubieux 2006) が南アジアや東南アジア、韓国などに分布するカリガラスを酸化アルミニウムおよび酸化カルシウムの含有量によって細分し、それぞれの分布域を明らかにしている。

酸化アルミニウムの含有量の多いソーダ石灰ガラスに初めて注目したのはブリルである (ブリル 1993)。ブリルは、インドの生産地遺跡などから出土したガラスに地中海周辺や西アジアのソーダ石灰ガラスに比べて酸化アルミニウムの含有量が異常に多く (6～10%)、酸化カルシウムが極端に少ない (1～4%) ソーダ石灰ガラスが存在することを見出した。さらに、この種のガラスは東南アジアや朝鮮半島など広範な地域に分布することを明らかにした。ブリルは、これらのガラスは川砂とレ (reh) (天然ソーダの一種) を原料として作られたと推定した。

一方、南インドや中国南部沿岸地域の漢代の墳墓などでは、「西のガラス」であるローマガラス¹⁰⁾が発見されている (Stern 1991, 安 1992, Gan 2009)。中国では、内陸部の新疆ウイグル自治区などでもローマガラスやササン朝ペルシアのガラスが発見されている (安 1992, Gan 2009)。したがって、南アジアから東アジアにかけても「西のガラス」が海や陸のルートを通して流入していたことは明らかである。朝鮮半島でも、韓国の慶尚北道慶州市の新羅時代の墳墓などで多くのガラス容器が出土している。これらは、形態的特徴からローマガラスの可能性も指摘されてきた (由水 2001)。しかし、近年、皇南王塚南墳出土のガラス容器類について化学組成の分析調査が実施され、ローマ系のナトロンガラスではなく、植物灰ガラスであることが明らかとなった (Lankton *et al.* 2009)。このように、ガラス製遺物の化学組成から新たな事実が次々と明らかとなっており、理化学的な手法による古代ガラスの研究の重要性はますます高まっている。

1-3-3 日本列島の古代ガラス

日本では、1912年から1913年にかけて古谷清が、数点の古墳出土ガラスの定性分析をおこなった結果を「本邦上代硝子に関する新研究」と題して、6回にわたり『考古学雑誌』に報告している (古谷 1912～1913)。この報告の中で、古谷は、ガラスに鉛ガラスとアルカリ石灰ガラスがあることを指摘した。次いで1931年に中尾万三が、京都府美濃山古墳、京都府二子塚古墳、宮崎県西都原古墳群より出土したガラス小玉や、中国と朝鮮半島などで出土したガラスの分析をおこない、これらのガラスがアルカリ石灰ガラスであると報告している (中尾 1931)。

1950年代からは、山崎一雄を中心にガラス製遺物の分析調査が進められ、弥生時代の鉛ガラスには、漢代以前の中国のガラスと密接な関係をもつ鉛バリウムガラスが存在す

ることが明らかになった（山崎 1962）。さらに、山崎は、アルカリ石灰ガラスにはナトリウムの多いものとカリウムの多いものが存在することを指摘した。

ガラス製遺物の分析値の蓄積を受けて、小林行雄は、日本列島で発見される古代ガラスの変遷について初めて論じた（小林 1964, 1978）。小林は、鉛ガラス（鉛バリウムガラスを含む）は弥生時代中期に多く、アルカリ石灰ガラスは弥生時代後期以降に多いことや、古墳時代のなかでアルカリ石灰ガラスがカリウムの多いものからナトリウムの多いものに変化することを指摘した。

1980 年代以降になると、山崎一雄（1987）や馬淵久夫（1989）はガラス製遺物の化学組成の分析を進めるとともに、鉛同位体比による鉛ガラスや鉛バリウムガラスの研究を進展させた。その結果、弥生時代の鉛ガラスや鉛バリウムガラスには中国産の鉛鉱石が用いられ、古墳時代後期の鉛ガラスには朝鮮半島産の鉛鉱石が使用されていたことが明らかとなった。さらに、1990 年代には、肥塚隆保や平尾良光により、奈良県飛鳥池遺跡から出土したガラスおよびガラス製作関連遺物（ガラス埴塼、原料鉱石など）の化学組成の調査と鉛同位体比測定がおこなわれ、7 世紀後半に日本列島産の鉛鉱石を用いた国産ガラスの生産が始まったことが示された（肥塚ほか 1993, 肥塚 1995）。

また、肥塚隆保は、弥生時代後期～奈良時代の約 1000 点におよぶガラス製遺物の化学組成を調査し、日本列島における古代ガラスの化学組成の時期変遷をまとめた（肥塚 1995）。

肥塚は、弥生時代から奈良時代のガラスを、化学組成から鉛酸化物を融剤とする鉛珪酸塩ガラスとアルカリ酸化物を融剤とするアルカリ珪酸塩ガラスに大別した。また、鉛珪酸塩ガラスには、バリウムを含まない鉛ガラス（ PbO-SiO_2 系）とバリウムを含む鉛バリウムガラス（ PbO-BaO-SiO_2 系）が、アルカリ珪酸塩ガラスには、カリガラス（ $\text{K}_2\text{O-SiO}_2$ 系）、低アルミナソーダ石灰ガラス（ $\text{Na}_2\text{O-CaO-SiO}_2$ 系）および高アルミナソーダ石灰ガラス（ $\text{Na}_2\text{O-Al}_2\text{O}_3\text{-CaO-SiO}_2$ 系）が流通したことを明らかにした。そして、日本列島で出土するガラス製遺物の材質（基礎ガラス）が、弥生時代末と古墳時代の終わりごろに大きく変化することを指摘した。以下、肥塚によるガラスの変遷観を概観する（図 1-3）。

日本列島に初めて出現するガラスは、鉛珪酸塩ガラス（鉛ガラスもしくは鉛バリウムガラス）とカリガラスである。弥生時代を通じて、この二種類のガラスが流通の中心であり、ソーダ石灰ガラスは少数である。一方、古墳時代になると、カリガラスは流通し続けたが、鉛珪酸塩ガラスは途絶える。そして、二種類のソーダ石灰ガラスが本格的に流通し始める。さらに、古墳時代末頃には、古墳時代を通じて流通したカリガラスが途絶え、再び鉛ガラスが出現する。

さらに肥塚は、ガラスの材質（基礎ガラス）と色調に対応関係があることを見出した。低アルミナソーダ石灰ガラスは、例外的なものを除いてコバルト着色の紺色透明であるのに対し、赤褐色不透明や黄色不透明、黄緑色不透明など多彩な色調のガラスは高アルミナソーダ石灰ガラスであることを明らかにしたのである。これは、化学組成と考古学的な観察との接点として評価され（大賀 2002）、以後、様々な考古学的研究に肥塚の分類や変遷観が参照されている（大賀 2002、小寺 2006、谷澤 2011）。

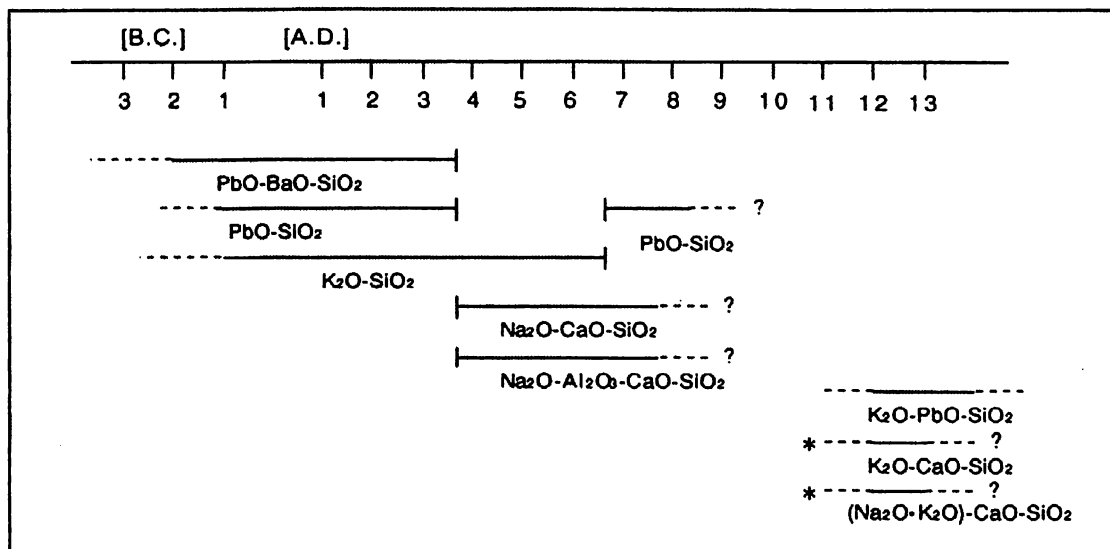


図 1-3 肥塚による日本列島の古代ガラスの変遷観（肥塚 1995）

1 - 4 問題の所在

日本列島で出土するガラス製品に関する化学組成の分析値は確実に蓄積されてきているものの、なお多くの問題が残されている。

古代ガラスの研究では、化学組成を把握するための理化学的研究のほかに、製作技法や色調による分類に基づく分布や変遷についての研究も重要な位置を占める。弥生～古墳時代にかけて流通したガラス製品には、釧、璧や容器などもわずかに知られるが、大半は勾玉、管玉、小玉などの玉類である。これらガラス玉類の形態や製作技法の研究も多くおこなわれ、その多様性や変遷も明らかとなってきた。一方で、製作技法と化学組成との対応関係についての研究は少ない。

製作技法の推定がガラス製品の研究に重要となる理由には大きくふたつある。ひとつは、ガラス製品の化学組成の評価において、ガラス製品の「一次的生産と二次的生産の

区別が必須」(大賀 2010, p.27, ll.36) であるためである。大賀克彦 (2010) によると、一次的な生産とは原料からガラス素材を製作する過程であり、二次的な生産とはガラス素材からガラス製品を製作する過程であると定義される。ガラス玉類の二次的な生産に用いられるガラス素材には、未加工ガラスだけではなく、いったん製品化されたガラスが再利用される場合があり、必ずしも同じ種類のガラスのみが素材として利用されるわけではない。そのため、化学組成の異なるガラスが混合されることによって、中間的な化学組成をもつ個体が出現する可能性がある。とくに注意を要するのが、日本列島や朝鮮半島で出土するガラス小玉成形用鋳型 (いわゆる「たこ焼き型鋳型」(肥塚 2002, 田中 2007)) を用いて製作されたガラス小玉の分析値の取り扱いである。鋳型を用いて製作されたと考えられるガラス小玉には、実際に基礎ガラスの異なるガラスが数種類含まれていることが明らかとなっている (田村ほか 2011)。

ふたつ目の理由は、製作技法も化学組成と同様にガラス製作集団の系統を反映する要素となりうるためである。ガラスの種類とガラス玉類の製作技法との関係は、それらが製品として舶載されたものであるか、日本列島で加工されたものであるかによって評価が異なる。これまでの考古学的調査から、弥生～古墳時代の日本列島内では、研磨や穿孔、融着などの方法や鋳型を用いたガラス玉類の二次的な生産の痕跡は認められるものの、引き伸ばし法や巻き付け法などその他の技法を用いたガラス玉の製作を示す痕跡は見つかっていない。そのため、製作技法と化学組成の対応関係を把握することによって、ガラス玉の生産地推定に有意義な情報を得ることができると考えられる。

ガラス製品の製作技法と化学組成との対応関係については、小林行雄や木下佳子が、最も出現頻度の高い材質 (基礎ガラスの種類) が、勾玉、管玉、小玉という玉の種類によって異なることを指摘している (小林 1964, 1978, 木下 1986)。全体的な傾向として、勾玉、管玉には鉛酸化物を融剤としたガラスが多く、小玉にはアルカリ酸化物を融剤としたガラスが多い。

大賀克彦 (2002) は、弥生～古墳時代のガラス小玉の製作技法を、引き伸ばし法、連珠法、巻き付け法、鋳型法、分割研磨法、加熱貫入法、融着法に分類したうえで、肥塚 (1995) が示した日本列島で流通したガラスの種類と組み合わせることによって日本列島におけるガラス小玉の分類体系を提示し、それぞれの消長について検討をおこなっている。しかし、従来の化学組成によるガラス小玉の分類には、大賀がその論考中で「膨大なガラス玉の中では十分とはいえない点に由来する偏向」(大賀 2002, p.127, ll.16) と指摘した問題が存在する。すなわち、古墳時代前期や古墳時代後期のガラス小玉の分析事例が比較的多い一方、弥生時代や古墳時代中期の資料の調査事例が極めて少ないという分析資料の点数に関する時期的な偏りである。さらに、製作技法別にみると、引き伸ばし法以外の技法で製作されたアルカリ珪酸塩ガラス小玉の分析事例が極めて少ない

という問題も存在する。そのため、大賀（2002）の分類でも引き伸ばし法以外の製作技法に対応するガラス小玉の化学組成については、色調などからの推定が多い。この問題は、これまでの理化学的な分析手法によるガラス製品の研究が、製作技法の分類やその時期的変遷などの考古学的な研究成果を積極的に活用することなく、無作為に分析資料を抽出してきたことに起因する。日本列島で出土したガラス小玉から無作為に分析資料を抽出すると、圧倒的多数を占める引き伸ばし法によるガラス小玉に偏り、結果的に製作技法と化学組成の対応関係の把握が不十分とならざるをえないのである。

また、日本列島で出土するガラス製品の生産地の評価も十分でない。鉛珪酸塩ガラスについては鉛同位体比法による原料鉛鉱石の産地推定が進み、弥生時代は中国産、7世紀前半は朝鮮半島産、7世紀後半以降では日本列島産の鉛鉛鉱石が用いられたことが明らかとなっている。しかし、アルカリ珪酸塩ガラスに関しては不明な点が多い。ランクトンら（Lankton and Dussubieux 2006）は、南アジアや東南アジア、中国などに分布するカリガラスを酸化アルミニウムおよび酸化カルシウムの含有量によって細分し、それぞれの分布域を明らかにしている。一方、日本列島で出土するカリガラスについては、着色成分以外の観点を用いた細分はなされず、中国南部の漢代の墓から多量に出土することや、着色剤としてのコバルト原料の特徴から、中国産と推定されているにとどまる（肥塚 1995）。

高アルミナソーダ石灰ガラスは「アジアのガラス」と呼ばれ、中国、朝鮮半島、日本列島、インド、スマトラなどの地域で出土する。インド・パシフィックビーズの素材として使用されていることが多く、とくに赤色または茶色不透明を呈する小玉はインドが起源である可能性が指摘されている。日本列島では、古墳時代になって大量に流通したとされるが、近年、弥生時代の出土事例も増加しつつある。しかし、弥生時代の資料の分析事例は極めて少なく、古墳時代の類例との比較は十分になされていない。

低アルミナソーダ石灰ガラスについては、西アジアから地中海周辺地域で発達した「西のガラス」と推定されている（肥塚 1995）。しかし、西方のどの地域で生産されたのかという具体的な検討はおこなわれていない。「西のガラス」の生産地である西アジアや地中海周辺地域で出土するソーダ石灰ガラスは、酸化マグネシウムと酸化カリウムの含有量によってナトロンガラスと植物灰ガラスに分類され、それぞれの分布の中心地も明らかとなっている（e.g. Sayre 1963）。日本列島で出土する低アルミナソーダ石灰ガラスについても、細分の可能性を検討する必要がある。

また、肥塚（1995）が示したガラスの種類と色調の対応関係も、一部修正を要する。低アルミナソーダ石灰ガラスは、例外的なものを除いて、ほぼコバルト着色による青紺色に限られると言われてきたが、黄色、黄緑色、淡青色など多彩な色調が存在することが明らかとなってきたからである（田村ほか 2011）。これらの色調は、従来、高アルミ

ナソーダ石灰ガラスによって実現されたと考えられてきた。一方、高アルミナソーダ石灰ガラスにもコバルト着色による紺色のものが一定量存在することもわかってきた（田村ほか 2009）。

弥生～古墳時代に流通したアルカリ珪酸塩ガラスに関する以上の問題点は、以下の三点に集約することができる。すなわち、第一に、これらのガラスは基礎ガラスの化学組成による従来の分類体系を再検討する必要があること、第二に、これまで化学組成の分析調査が十分でなかった時期の資料の調査を進める必要があること、そして第三に、アルカリ珪酸塩ガラスの製作技法、基礎ガラスの化学組成、着色剤の対応関係を把握する必要があることである。

1 - 5 研究の目的

本研究は、弥生～古墳時代の日本列島で流通したガラス製品の生産地を推定し、その消長からユーラシア大陸における古代ガラスの交易ルートとその時期変遷を明らかにすることを目的とする。

本研究では、弥生～古墳時代のアルカリ珪酸塩ガラスの製作技法と基礎ガラスの化学組成、および着色剤の多様性を明らかにするとともに、これらの対応関係を把握する。その上で、それらの対応関係を、製作技法や色調に基づくガラス製品の時期変遷や分布に関する考古学的な研究成果と照らし合わせることにより、各々の種類のアルカリ珪酸塩ガラスの流通時期の変遷モデルを提示する。さらに、ガラスの生産地があったと推定されている地域や日本列島の隣接地域で出土した資料との比較から、弥生～古墳時代に日本列島で流通したアルカリ珪酸塩ガラスの生産地および日本列島への流入経路とその変遷について明らかにする。

註

- 1) 主要なものには、銅の精錬時に熔融窯の中に偶然できたガラス質の物質から発達したという説と、釉薬から独立して単体のガラスとして発達したとする説がある。また、大プリニウスの博物誌第36巻65章の説話も有名である。すなわち、フェニキア商人が海岸で炊事をする際、炉を築くのに積み荷のソーダ塊を用いたところ、海岸の砂とソーダ塊が溶けてガラスができたというものである。ただし、ガラスの起源は大プリニウスの時代よりもはるかに遡ることから、これは単なる説話にすぎないと考えられている。
- 2) 金属棒の先につけた粘土芯（コア）を軟化させたガラスで覆い、固化成形した後に中の粘土芯を取り除いて容器を得る方法。

- 3) ローマ帝国とは、一般にイタリア半島に都市国家として誕生した古代ローマが、領域国家へ発展した段階以降をさす（本村 2007）。したがって厳密には共和政期のローマ（紀元前 509～27 年）を含む。一方、その終焉は西ローマ帝国の滅亡（476 年）をさすのが一般的である。
- 4) 金属の管（吹竿）に軟化したガラスを巻き付けて、息を吹き込みながら成形する方法。初期は型の中に溶けたガラスを吹き込んで成型する「型吹き法」であった。型を用いず、吹竿に巻き取ったガラスを宙で吹いて成形する「宙吹き法」が 1 世紀頃までには成立した（谷一 1999）。
- 5) 正統カリフ時代（632～661 年）からアッバース朝期（750～1258 年）までのイスラム国家をさすものとする。
- 6) インド・パシフィックビーズ（Indo-Pacific Beads）とは、“Indo-Pacific Monochrome Drown Glass Beads”の略で、引き伸ばし法（drawing technique）で製作された、径がおおよそ 6 mm 未満の単色のガラス小玉をさす。ラダ（lada）と呼ばれる金属管を用いた特殊な方法（lada tube drawing, ラダ技法）で軟化したガラス塊を引き伸ばしてガラス管を作り、それを分割して小玉を得たとされる（Fransis 1990）。
- 7) 世界史における古代の定義は、政治史的観点と社会史的観点から様々な説があり、国や地域によっても異なる。たとえば、日本史では主に飛鳥時代（または奈良時代）から平安時代をさすが、西洋史では西ローマ帝国の崩壊をもって古代の終焉とすることが多い。また、中国史では秦の成立から後漢の崩壊、あるいは唐の崩壊までをさす。本論文では、日本列島にガラスが出現した弥生時代から古墳時代のガラス製品を中心に扱うことから、ガラス発生期（紀元前 3000 年頃）から 7 世紀頃までのガラスを古代ガラスとする。
- 8) これら二種類のソーダ石灰ガラスを区分する酸化マグネシウムと酸化カリウムの含有量の境界は 1.5%とされることが一般的だが、2%とする場合もある（Brill 2009）。
- 9) 西アジアのガラスを「西のガラス」に分類し、「アジアのガラス」に含めないのは用語として矛盾するが、ここでは先行研究に従う。
- 10) 一般にローマ帝国領内で製作されたガラス製品をさす。

引用・参考文献

- 安家瑤／谷一尚 訳, 1992, 「中国の古代ガラス」, 『世界ガラス美術全集 4 中国・朝鮮』, 求龍堂, 193～227 頁。
- 大賀克彦, 2002, 「日本列島におけるガラス小玉の変遷」, 『小羽山古墳群』, 127-145 頁。
- 大賀克彦, 2003, 「紀元三世紀のシナリオ」, 『風巻神山古墳群』, 72～90 頁。
- 大賀克彦, 2010, 「日本列島におけるガラスおよびガラス玉生産の成立と展開」, 『月刊文化財』, 566 号, 27 頁, 36 行。
- 小田幸子, 1977, 「新沢千塚 126 号墳出土のガラス器とガラス玉」, 『新沢千塚 126 号墳』, 84～90 頁。
- 木下佳子, 1986, 「ガラスの技術」, 『弥生文化の研究 6 道具と技術Ⅱ』, 雄山閣, 157～162 頁。

- 黒川高明, 2009, 『ガラスの文明史』, 春風社。
- 肥塚隆保, 1995, 「古代珪酸塩ガラスの研究—弥生～奈良時代のガラス材質の変遷—」, 『奈良国立文化財研究所創立 40 周年記念論文集 文化財論叢Ⅱ』, 929～967 頁。
- 肥塚隆保, 1997, 『日本で出土した古代ガラスの歴史的変遷に関する科学的研究』, 博士学位論文。
- 肥塚隆保, 2001, 「古代ガラスの材質と鉛同位体比」, 『国立歴史民俗博物館研究報告』第 86 集, 233～249 頁。
- 肥塚隆保, 2002, 「古代のガラス」, 『文化財のための保存科学入門』, 32～45 頁。
- 肥塚隆保・大賀克彦, 2006, 「弥生・古墳時代におけるガラス玉類の生産」, 『季刊考古学』94, 98～99 頁。
- 肥塚隆保・平尾良光・川越俊一・西口寿生, 1993, 「古代鉛ガラスの研究」, 『日本文化財科学会第 10 回大会研究発表要旨集』, 26～27 頁。
- 小寺智津子, 2006, 「弥生時代のガラス製品の分類とその副葬に見る意味」, 『古文化論叢』第 55 集, 47～79 頁。
- 小林行雄, 1964, 「瑠璃」, 『続古代の技術』, 187～298 頁。
- 小林行雄, 1978, 「弥生・古墳時代のガラス工芸」, 『MUSEUM』324, 4～13 頁。
- 作花済夫, 2007, 「ガラス・結晶・アモルファス」, 『ガラスの百科事典』, 朝倉書店, 502～505 頁。
- 田中清美, 2007, 「たこ焼き型鋳型」によるガラス小玉の生産」, 『大阪歴史博物館研究紀要』第 6 号, 1～24 頁。
- 谷一尚, 1999, 『ガラスの考古学』, 同成社。
- 谷一尚, 2011, 「サーサーン朝ペルシア・ガラスの「直」(中国・東方流入)と「風」(中国・東方化)」, 『東西交渉とイラン文化』, アジア遊学 137, 162～168 頁。
- 谷澤亜里, 2011, 「弥生時代後期におけるガラス小玉の流通—北部九州を中心に—」, 『九州考古学』第 86 号, 1～39 頁。
- 田村朋美・大賀克彦・肥塚隆保, 2009, 「日本における紺色ガラス玉の変遷に関する科学的研究」, 『The First Annual Symposium of the Society for Conservation of Cultural Heritage in East Asia』, 93～95 頁。
- 田村朋美・高妻洋成・肥塚隆保, 2011, 「日本出土ソーダ石灰ガラス製小玉の種類とその変遷」, 『日本文化財科学会第 28 回大会研究発表要旨集』, 120～121 頁。
- 田村朋美・脇谷草一郎・高妻洋成, 2011, 「見野古墳群出土ガラス小玉の自然科学的調査」, 『姫路市見野古墳群発掘調査報告』, 161～172 頁。
- 富樫雅彦, 2003, 「弥生・古墳時代のガラス」, 『考古資料大観』第 6 巻, 339～344 頁。
- 中尾万三, 1931, 「東洋古代の硝子と釉」『考古学雑誌』21, 245～268 頁。
- ブリル・R／山崎一雄(訳), 1993, 「古代アジアガラスの科学的研究」, 『奈良国際シンポジウム'91 報告書』, 71～81 頁。

- 古谷清, 1912～1913, 「本邦上代硝子に関する新研究」1～6, 『考古学雑誌』2巻404～411頁, 487～495頁, 748～753頁, 3巻147～152頁, 203～208頁, 703～713頁。
- 馬淵久夫, 1989, 『本邦出土古代ガラスの原料産地と材質の変遷』, (科学研究費補助金研究成果報告書)。
- 丸山次雄, 1973, 『ガラス古代史ノート』, 雄山閣。
- 本村凌二, 2007, 『地中海世界とローマ帝国』, 講談社。
- 山崎一雄, 1962, 「化学的方法」, 『世界考古学大系』第16巻, 129～135頁。
- 山崎一雄, 1987, 「日本出土のガラスの化学的研究」, 『古文化財の科学』, 思文閣出版, 274～300頁。
- 山根正之, 1989, 『はじめてガラスを作る人のために』, 内田老鶴圃。
- 由水常雄, 2001, 『ローマ文化王国—新羅』, 新潮社。
- 国立扶餘文化財研究所, 2007, 『王宮의 工房Ⅱ』, (『扶餘文化財研究所學術研究叢書』第44輯), (韓文)。
- 熊昭明・李青会, 2011, 『広西出土漢代玻璃器的考古学与科技研究』, (中文), 文物出版社。
- Brill, R.H. (1987), Chemical Analyses of Some Early Indian Glasses, Proceedings of the Archaeometry Section of the XIV International Congress on Glass 1986 New Delhi India, Indian Ceramic Society, pp.1-25.
- Brill, R.H. (2009), Opening Remarks and Setting the Stage: Lecture at the 2005 Shanghai International Workshop on the Archaeology of Glass Along the Silk Road., Ancient Glass Research along with the Silk Road., World Scientific, pp.109-147.
- Francis, P. (1990), Glass beads in Asia Part 2. Indo-Pacific Beads. Asian Perspectives, 29-1, pp.1-23.
- Francis, P. (2002), Asia's Maritime Bead Trade, University of Hawaii Press.
- Freestone, I.C., Gorin-Rosen, M.Y., Hughes, M.J. (2000), Primary Glass from Israel and the Production of Glass in Late Antiquity and the Early Islamic Period. Travaux de la Maison de l'Orient Meditteraneen, 33, pp.65-83.
- Freestone, I.C., Ponting, M., Hughes, M.J. (2002), The Origins of Byzantine Glass from Maroni Petrera, Cyprus. Archaeometry, 44, 2, pp.257-272.
- Gan Fuxi (2009), The Silk Road and Ancient Chinese Glass. Ancient Glass Research along with the Silk Road., World Scientific, pp.109-148.
- Gratuze, B. and Barrandon, J. N. (1990), Islamic Glass Weights and Stamps : Analysis Using Nuclear Techniques. Archaeometry, 32, 2, pp.155-162.
- Jackson, C.M. (2005), Making Colourless Glass in the Roman Period. Archaeometry, 47, 4, pp.763-780.

- Lankton, J.W. and Dussubieux L.E. (2006), Glass in Asian Maritime Trade : A Review and an Interpretation of Compositional Analyses., *Journal of Glass Studies*, 48., pp.121-144.
- Lankton, J.W., et al. (2009), Bactrian Glass Vessels in Korean Tombs? *Annales du 17e Congres de l'Association Internationale pour l'Histoire du Verre*, Anvers, 2006, University Press, Antwerp, pp.579-589.
- Lucas, A. (1934), *Ancient Egyptian Materials and Industries*, London, Edward Arnold (Publishers) Ltd.
- Sayre, E. (1963), The International Use of Antimony and Manganese in Ancient Glass, *Advances in Glass Technology Part2.*, F. Matson and G. Rindone editors, Plenum Press, New York.
- Sayre, E. (1965), Summary of the Brookhaven Program of Analysis of Ancient Glass Application of science in examination of works of art. *Proceedings of the seminar: September*, conducted by the Research Laboratory, Museum of Fine Arts, Boston, Massachusetts, pp.7-16.
- Shi Meiguang, He Ouli, and Zhou Fuhwng (1986), Investigation on Some Chinese Potash Glasses Excavated in Han Dynasty Tombs *Proceedings of 14th International Congress on Glass*, Indian Ceramic Society, pp.15-20.
- Stern, M.E. (1991), *Early Roman export glass in India, Rome and India : the ancient sea trade* edited by Vimala Begley and Richard Daniel De Puma, University of Wisconsin Press, pp.113-124.
- Turner, W.E.S. (1956), *Studies in Ancient Glasses and Glass-making Processes*, Part V, The Chemical composition of ancient glasses, *Journal of the society of glass technology*, 40, pp.162-186.
- Zhang Fukang (1991), *Scientific Studies of early glasses excavated in China.*, Scientific research in early Chinese glass, The Corning Museum of Glass, pp.157-165.

第2章 資料と方法

2-1 調査資料

本研究では、弥生～古墳時代のアルカリ珪酸塩ガラス製品のほとんどを占める小玉を研究対象とした。ガラス小玉は、大賀克彦が指摘するように、「頻度的にも数量的にも普遍的である、自給的な財ではなく広域的な流通が活発である、種類が多様で生産地も複数存在する、系統的な分類といった基礎的な作業が進展している」（大賀 2003, p.80, 11.3-7）ため、製作技法と化学組成の対応関係を明らかにすることで当該時期の交易関係を解明する有効なツールとなりうると考えられる。

本研究では、弥生時代後期～古墳時代後期末の遺構（13 都府県 103 遺構）から出土した約 5900 点のガラス小玉を調査対象とした。日本列島で出土する莫大な数のガラス小玉の全体的な傾向を、限られた分析結果から把握するため、調査資料の選定にあたっては以下の点に留意した。ひとつは、全国で出土したガラス小玉を概観したうえで、弥生時代後期～古墳時代後期の各時期に流通した主要なガラス小玉を網羅することである。もうひとつは、同時期に流通した主要なガラス小玉とは製作技法や色調という可視的な特徴が異なり、かつ一定量の流通が認められる資料を選択的に調査することである。

さらに、これまでは分析例が少なく不明な点の多い弥生時代後期や古墳時代中期の資料を中心に、分析をおこなった。また、ガラス小玉の時期的な枠組みを提示するうえで、後世の資料が混入する可能性をできるだけ排除するため、墳墓出土資料を中心に調査した。なお、本研究では単色のガラス小玉を対象とし、トンボ玉や雁木玉などの多色ガラス玉は議論の対象としないこととした。調査資料の内訳を表 2-1 に示す。

2-2 調査方法

本研究で実施するガラス小玉の調査手法は、製作技法の推定を目的とするものと、化学組成の把握を目的とするものがある。遺跡から出土したガラス小玉は貴重な文化財であり、非破壊的な手法で調査をおこなうのが原則である。これに基づき、製作技法の推定には、顕微鏡観察および X 線透過撮影法としてコンピューテッドラジオグラフィ法（Computed Radiography 法：以下、CR 法）を適用した。

表 2-1 調査対象資料一覧

時代	都道府県	市町村	遺構名	点数	
弥生後期前半	静岡県	袋井市	高尾向山26号方形周溝墓第1主体	8	
			高尾向山57号方形周溝墓第2主体	17	
	福岡県	宗像市	朝町竹重遺跡2次(SK-185)	1388	
		春日市	須玖唐梨2号土墳墓	108	
		糸島市	三雲・井原遺跡ヤリミノ地区15号甕棺墓	82	
弥生後期後半～終末期	東京都	北区	田端西台通遺跡 方形周溝墓SZ07主体部	147	
			田端西台通遺跡 方形周溝墓SZ07周溝内土坑	9	
	千葉県	木更津市	大山台5号方形周溝墓第1主体	6	
			大山台5号方形周溝墓第2主体	6	
			大山台5号方形周溝墓北側溝内	9	
			東谷28号方形周溝墓第1主体	24	
			東谷28号方形周溝墓第2主体	9	
			東谷27号方形周溝墓	1	
			東谷47号方形周溝墓第1主体	2	
			東谷47号方形周溝墓第2主体	1	
			東谷22号方形周溝墓	1	
			東谷18号方形周溝墓	2	
			東谷15号方形周溝墓	22	
			東谷23号方形周溝墓	6	
			東谷19号方形周溝墓	10	
			東谷16号方形周溝墓	27	
			東谷49号方形周溝墓	4	
			東谷29号方形周溝墓	25	
			東谷46号方形周溝墓第1主体	7	
			東谷36号方形周溝墓	5	
			東谷45号方形周溝墓	10	
			東谷41号方形周溝墓	2	
			東谷227号土墳墓	1	
			東谷33号方形周溝墓第1主体	5	
			東谷33号方形周溝墓第2主体	4	
			東谷33号方形周溝墓第3主体	4	
			東谷14号方形周溝墓	4	
		神奈川県	南足柄市	御茶屋通遺跡 方形周溝墓	4
		静岡県	掛川市	本村SF04	1
				本村SF06	3
				本村SF07	3
		広島県	三次市	矢谷D地点方形周溝墓(MS2)No.3主体	3
		福岡県	春日市	小倉原田3号3号土墳墓	75
				立石26号土墳墓	6
			福岡市	宮の前1号箱式石棺墓	120
				野方久保(第1次)1号甕棺墓	17
				野方中原8号箱式石棺墓	9
		佐賀県	唐津市	岸高Ⅱ遺跡33号甕棺墓	36
				塩鶴2号甕棺墓	84
				中原SK12087	10
				中原SP13420	24
				中原ST13415(周溝内)	9
				中原SP13418	24
				中原SK12088	12
				中原SP13420	26
		大分県	玖珠町	八幡中学校遺跡8号墓	72
	古墳前期	静岡県	袋井市	愛野向山B10号墳第1主体	34
			藤枝市	釣瓶落11号墳	37
				若王子1号墳第2主体	1
				飯宿沢渡1号墳第2主体	2
			東浦1号墳第1主体	1	
広島県			尾ノ上古墳	186	
			加茂倉田SK87	37	
			加茂倉田2号箱式石棺墓	1	
			加茂倉田3号箱式石棺墓	2	
			才町茶臼山遺跡SK1	3	
			才町茶臼山遺跡SK2	2	
			汐首C遺跡SK2	4	
			汐首4号古墳	1	
			下迫古墳第1主体部	6	
福岡県		福岡市	桑原金原1号墳	1	
			藤崎(第3次)3号方形周溝墓	3	

時代	都道府県	市町村	遺構名	点数
古墳中期前半	静岡県	掛川市	源ヶ谷1号墳	56
	京都府	長岡京市	宇津久志1号墳	428
	大阪府	岸和田市	風吹山古墳	411
	広島県	福山市	国成古墳	21
古墳中期後半	静岡県	藤枝市	女池ヶ谷25号墳	72
			西ノ宮3号墳	67
	滋賀県	野洲市	大塚山古墳	50
古墳中期後半～後期	福岡県	福岡市	飛山1号墳	23
古墳後期	東京都	北区	田端西台通遺跡 SK75土坑	54
	静岡県	藤枝市	若王子21号墳	1
		掛川市	本村A4号横穴墓	14
			山脇2号横穴墓	72
		袋井市	北山古墳群	53
			若作B4号墳	6
		浜松市	地藏平A19号墳	9
			中平2号墳	6
			半田山G支群8-KF03	419
			半田山G支群8-KF07	20
	滋賀県	野洲市	甲山古墳 玄室5区	77
			甲山古墳 玄室7区	64
			甲山古墳 石棺北側流入土	46
			甲山古墳 玄室7区(資料調査時は玄室①②区)	1
			円山古墳 6区中層	143
			円山古墳 8区	7
			円山古墳 9・10区	14
			円山古墳 9区上・中層	39
	京都府	木津川市	上狛天竺堂1号墳	49
	奈良県	明日香村	飛鳥寺塔心礎	423
	兵庫県	姫路市	見野古墳6号東石室	92
	福岡県	宗像市	多久瓜ヶ坂(5区SO-4)	6
		福岡市	柏原C-6号墳	14
			中津宮古墳	25
			宝満尾古墳	31
			三苫B2号墳	14
			三苫B3号墳	2
			三苫B8号墳	64
多様な時期	奈良県	奈良市	東大寺金堂	155

ガラスの化学組成の調査には、原子吸光法、ICP 発光分析法、ICP 質量分析法、蛍光 X 線分析法、中性子放射化分析法、走査型電子顕微鏡分析法など、さまざまな方法が適用されている。このうち、原子吸光法、ICP 発光分析法、ICP 質量分析法は、測定試料を採取する必要のある、いわゆる破壊分析である。一方、蛍光 X 線分析法、中性子放射化分析法、走査型電子顕微鏡分析法では、試料を採取する必要はない。ただし、中性子放射化分析法では、鉛 (Pb) や珪素 (Si) などの古代ガラスの主要な成分を測定することができない。蛍光 X 線分析法は、非破壊非接触での多元素同時測定が可能であり、とくにエネルギー分散型のものは比較的短時間で測定できることから、多数の資料の測定に適している。走査型電子顕微鏡分析法でも、非破壊非接触の多元素測定は可能だが、多数の資料の分析には難がある。

理化学的手法を用いた古代ガラスの研究法についてまとめたブリルは、考古資料の研究には大きくふたつの方法があると述べている (Brill 1969)。ひとつは、広い範囲と期間にまたがる、帰属の明らかな資料を分析する方法である。この場合、統計的な推論を

可能とするためにも、十分に多くの資料が含まれている必要がある。ブリルは、これを、考古資料の有用な目録を作成する唯一の方法とした。もうひとつは、特別に重要な資料を集散的に研究し、個々の材料や製造技術を解明する方法である。

第1章で述べたように、日本列島で出土するガラス製遺物の分類や消長の把握はいまだ不十分であり、破壊分析を伴う集中的な研究に供すべき資料かどうかを判断する根拠となる目録は存在しない。こうした状況でやみくもに破壊分析を行うことは、文化財の不必要な消費につながる可能性が懸念される。まず、非破壊測定法を用いて、日本列島出土のガラス製品を分類し、消長を十分に把握したうえで、それぞれの代表的な資料に対して、破壊分析を伴う集中研究を実施するのが望ましい。

以上の理由から、本研究では、非破壊で多数の資料を調査することが可能なエネルギー分散型蛍光 X 線分析法（以下、たんに蛍光 X 線分析法と記述した場合は、エネルギー分散型蛍光 X 線分析法をさす）を、主要な化学組成の調査法として採用した。

分析的手法を用いて化学組成を把握する以外にも、X 線透過撮影法の一つである CR 法やオートラジオグラフィ法（Auto Radiography 法：以下、AR 法）を用いて、古代ガラスの種類を判別する方法がある（肥塚・脇谷 2003）。CR 法では鉛珪酸塩ガラスとアルカリ珪酸塩ガラスを、AR 法ではカリガラスとソーダ石灰ガラスを区別することができる。

また、ガラス中に着色剤として添加された顔料などの結晶物質が含まれることがある。肥塚は、日本で出土する鉛バリウムガラスの中に、人工青色顔料である漢青（Han-Blue: $\text{BaCuSi}_4\text{O}_{10}$ ）が添加されたものが存在することを見出した（肥塚 2002）。このようなガラス中に含まれる結晶物質の同定には、ラマン分光分析を用いた。

以下、各調査の具体的な方法について詳述する。

2-2-1 顕微鏡観察

製作技法を推定するため、ガラス小玉に含まれる気泡の配置や形状、ガラス玉表面および孔壁面の状態および形状など、製作技法を示す痕跡に着目して、落射光および透過光下での実体顕微鏡観察をおこなった。落射光下では、ガラス表面や孔内部の凹凸、開孔部周辺の形状、および風化に伴ってガラス表面に現れてくる腐食形態（蝕像）を観察した。

ガラス表面については、平滑か突起物が認められるかに注目した。また、孔の内部は凹凸や研磨痕の有無、開口部周辺の形状が表面張力による曲線を呈するか、凹凸が認められるか、切断痕が認められるかどうかを確認した。蝕像が側面にみられる場合は、孔と直交方向に現れるのか、平行方向に現れるのかに注意し、端面については、小瀬康行が指摘したような、孔を取り巻く同心円状の蝕像（小瀬 1987）が認められるかどうかを

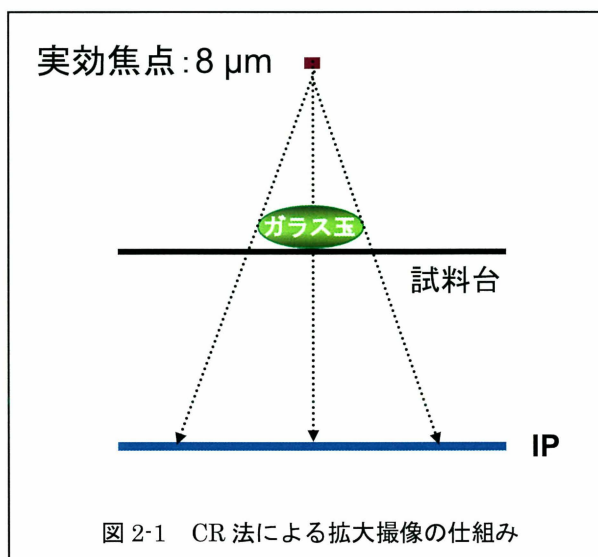
観察した。小瀬は、宙吹き法で製作したガラス管を切断して試作したガラス小玉を強制的に劣化させると、端面に同心円状あるいは螺旋状（小瀬は螺旋状と記載するが、小口面で観察される条痕は、孔を中心とした渦巻状を呈すると考えられる）に走る条痕が出現することを明らかにしている。

一方、透過光下では、透明感や色むらの有無、および内部の気泡の形状や配列を観察した。気泡の配列については、筋状（気泡筋）や独立した気泡の列となっているか、あるいは散在するのかを確認した。また、気泡筋や気泡の並ぶ方向が、ガラス小玉の孔に対して直交するのか平行するのかも重要である。さらに、独立した気泡の場合は、形状が球形か楕円体かレンズ状かにも注意した。色むらについては、孔と直交方向もしくは平行方向に認められるのか、あるいは不規則に認められるのかに注目して観察した。

2-2-2 CR 法

CR 法は、製作技法の推定とアルカリ珪酸塩ガラスと鉛珪酸塩ガラスの判別に用いた。弥生～古墳時代のガラス小玉は、気泡や着色剤により半透明或不透明を呈するものが多く、実体顕微鏡下では内部の観察が難しい場合が多い。このようなガラス小玉に対しては、X 線透過撮影法を適用することで、孔の形状や内部に含まれる気泡などに関する上述の観察が可能となる。そこで、本研究では、X 線透過撮影法として CR 法を適用した。CR 法は、従来のフィルムのかわりにイメージングプレート（Imaging Plate, 以下、IP）を検出系に用いる方法である。撮影方法はフィルムによる従来のものと同様であるが、IP はフィルムと比較して高感度かつダイナミックレンジが大きく、デジタルデータとして画像を取得できる特長がある（肥塚・脇谷 2003）。IP を用いた CR 法は、画像解析が容易であり、微細構造を観察するのにきわめて有効である。

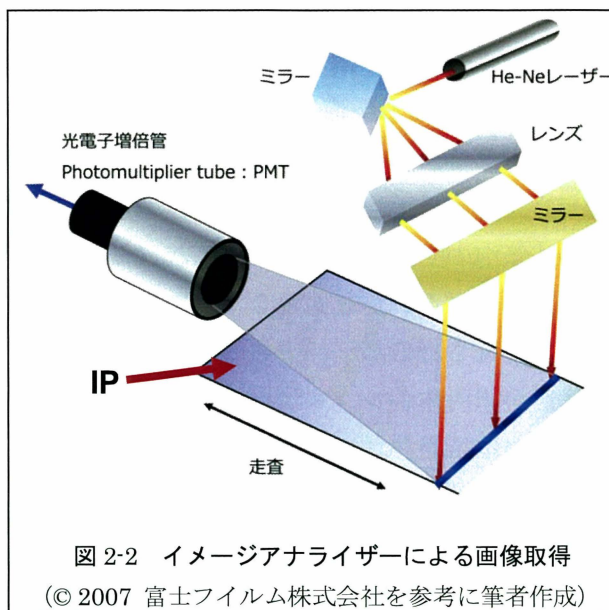
CR 法は、アルカリ珪酸塩ガラスと鉛珪酸塩ガラスの判別にも利用した。アルカリ珪酸塩ガラスと鉛珪酸塩ガラスの密度を比較すると、後者の方がはるかに密度が高く、X 線吸収係数も大きい。したがって、アルカリ珪酸塩ガラスと鉛珪酸塩ガラスを同じ条件下で X 線透過撮影すると、アルカリ珪酸塩ガラスよりも鉛珪酸塩ガラスのほうが、はるかに X 線の吸収が大きくなる。その結果、ポジ画像では鉛珪酸塩ガラスがより濃い画



像として得られることになる。

CR 法には、マイクロフォーカス X 線拡大撮像システム（富士フィルム社製 μ FX-1000）とイメージアナライザー（富士フィルム社製 BAS-5000）を用いた。IP には BAS-SR2025 を使用し、IP を装填したカセット上に分析資料を載せて X 線を照射した。管電圧、管電流および露光時間は測定資料に応じて設定したが、おおむね管電圧で 30～50 kV、管電流で 40～60 μ A、露光時間で 60～180 秒の範囲にある。また、X 線の実効焦点は 8 μ m と微小なため、半陰影体は問題とならず、最

大で 10 倍まで拡大して撮影できる（図 2-1）。X 線照射により IP に蓄積されたエネルギーは、イメージアナライザー内で He-Ne レーザ（633 nm）により励起され、光輝尽発光（Photo-Stimulated Luminescence：PSL）となる。これを光電子増倍管（Photomultiplier tube：PMT）で電気信号に変換し、ログアンプによって増幅した後、A/D 変換によりデジタル信号として出力される（図 2-2）。得られた画像は、解析ソフト（Multi Gauge 3.0）上で、直線またはシグモイド曲線による階調変換をおこない、孔の形状や気泡配列の鮮明化をおこなった。



2 - 2 - 3 AR 法

AR 法はカリガラスの判別を目的として実施した。前節で述べたように、IP は放射線に対して極めて感度がよく、微弱な放射線でも長時間暴露することで検出可能である。AR 法は、物質から放射される放射線をフィルムや IP に記録して画像を得る方法であり、放射線の蓄積線量により画像の濃淡が異なる。カリガラスは一般に酸化カリウムを 18% 前後含有し、 ^{40}K に由来する放射線（ベータ線）を放射している。したがって、カリガラスとソーダ石灰ガラスを IP 上に同じ時間だけ暴露した場合、得られた画像の中でより濃いものを、カリガラスとして識別することができる（肥塚・脇谷 2003）。

本研究では、以下の手順で AR 法を実施した。まず、資料を直接上に置いた IP を、外部からの放射線を遮断するため、鉛製の遮蔽箱内に設置した（図 2-3～4）。そして、遮蔽箱の鉛に由来する放射線を遮蔽するため、IP の周辺を銅板で囲った。使用した IP は BAS-SR2025 であり、暴露時間は 168 時間とした。また、比較のための標準試料として、

日本岩石標準試料 JB-1a と JG-1a の粉体圧縮ピース、および BCR126A (IRMM (Institute for Reference Material and Measurement) 標準物質) を同時に暴露した。これらの酸化カリウムの含有量は、それぞれ 1.4%, 4.0% および 10.0% である。暴露後、IP を取り出し、CR 法と同様にイメージングアナライザーによりスキャンニングをおこない、AR 像をデジタルデータとして取得した。

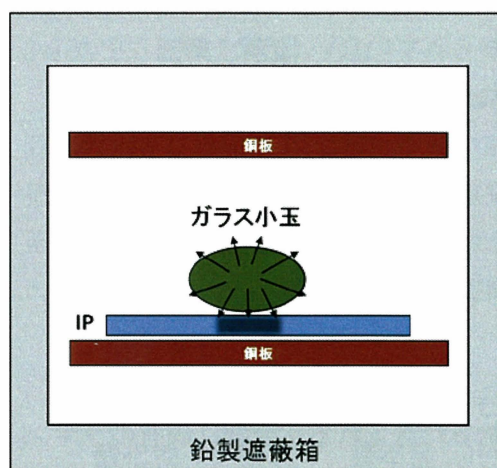


図 2-3 AR 法の模式図

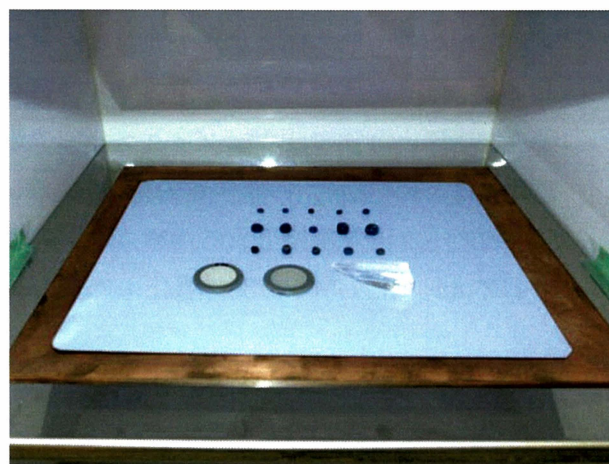


図 2-4 AR 法による調査風景

2 - 2 - 4 蛍光 X 線分析法

X 線を物質に照射すると、その物質を構成する元素に固有の特性 X 線が発生する。蛍光 X 線分析法は、この特性 X 線を検出することで、物質を構成する主要な元素組成を知る方法である。測定装置には、波長分散型とエネルギー分散型がある。前者は、分解能は高いが、測定に長時間を要するのに対し、後者は、分解能は劣るものの、短時間で多元素を同時測定できるという利点がある。ガラスに X 線のような高エネルギーの放射線を長時間照射すると、カラーセンターが生成し、着色することが知られているので (伊藤 1996)、本研究では、X 線の照射時間の短いエネルギー分散型蛍光 X 線分析装置を用いて、化学組成の非破壊測定を実施した。

対象としたガラス小玉は直径が 5 mm 前後と小さく、微小領域の分析が必要であった。蛍光 X 線分析では、測定対象資料の表面状態が測定値の誤差の原因となりうる。今回使用した装置の照射領域は 112 μm であり、測定対象資料の大きさに対して十分に小さいことから、ガラス小玉の曲率の影響はほとんど無視できると考えた。

資料の測定箇所は、実体顕微鏡による観察で、亀裂等が少なく、保存状態が良好と判

断した部分を選定した。なお、測定に先立ち、土などの汚れは顕微鏡下でエチルアルコールを用いた洗浄をおこなった。測定結果は、測定試料と近似する濃度既知のガラス標準試料（CG-A, SG5, SG7, SGT5, NIST620）¹⁾を用いて補正した理論補正法（Fundamental Parameter method, 以下 FP 法とよぶ）により、検出した元素の酸化物の合計が 100%になるように規格化した。なお、本測定法で検出可能な元素は、周期表のナトリウム（Na）～ウラン（U）の範囲であり、ナトリウムよりも原子番号の小さい元素は検出することができない。ただし、従来の研究で、これらの元素が 1%以上含まれる弥生～古墳時代のアルカリ珪酸塩ガラスは知られていない（肥塚 1997）ことから、本研究では、規格化した値を用いて各資料を比較検討した。

測定に用いた装置は、エダックス社製 EAGLEⅢである。励起用 X 線源は Mo 管球、管電圧は、FP 法を用いた定量分析では 20 kV に設定し、一部の資料については 20 keV 以上のスペクトルを検出するため、50 kV に設定した²⁾。管電流は 100 μ A, X 線照射径は 112 μ m, 計数時間は 300 秒とした。なお、測定は真空中で実施した。

2 - 2 - 5 ラマン分光分析法

物質に特定波長の励起レーザーを照射すると、物質に含まれる化合物に固有のラマンスペクトルが得られる（濱口・平川 1988）。化合物の同定にはきわめて有効であり、ラマンスペクトルの検出に高感度の CCD 検出器を用いれば、励起レーザーのエネルギーを低減できるので、資料の損傷を生じることなく分析がおこなえる。顕微鏡を接続した顕微測定も可能で、微小なガラス小玉中に含まれる結晶質物質の同定が可能である。

本研究では、ガラス小玉の着色に用いられた顔料を特定するため、ラマン分光分析法を適用した。測定装置は HORIBA 製 LabRAM HR-800 であり、励起用レーザーには波長 532 nm の半導体ダイオードレーザーを使用した。励起レーザーのスポット径は 100 μ m, 出力は約 50 μ W である。検出器には、空冷ペルチェ冷却型 CCD 検出器を用いた。なお、測定には住友金属テクノロジー株式会社に委託しておこなった。

2 - 3 蛍光 X 線分析の FP 法による定量値の精度

蛍光 X 線分析で物質を構成する元素濃度を求める場合、マトリックス効果などによる分析誤差を最小にするために、測定資料と組成が近似する標準試料を用いて測定値を補正する必要がある。本研究では、ガラス標準試料を用いて補正した FP 法により定量値を求めることとし、その定量値の精度を確認する実験をおこなった。

2-3-1 実験の方法

標準試料 EC1.1 を用いて任意の 11 箇所の測定をおこなった。測定試料と近似する濃度既知のガラス標準試料 (CG-A, SG5, SG7, SGT5, NIST620) を用いて測定結果を補正した FP 法により, 検出した元素の酸化物の合計が 100% になるように規格化した。このようにして算出した測定値と標準試料の標準値を比較し, 測定値のばらつきとその精度を求めた。測定に使用した装置および測定条件は 2-1-4 と同様である。

2-3-2 結果と考察

結果を表 2-2 に示す。酸化カリウムと酸化カルシウムは, 測定誤差が標準値の誤差範囲内におさまる。一方, 酸化ナトリウム, 酸化マグネシウム, 酸化アルミニウム, 二酸化珪素は, 未風化部分の測定値を用いても 1 %未満の差異を議論することはできないことが示された。酸化チタンや酸化鉄などの重元素の場合も, 0.05%未満では変動係数が大きい。このことから, 本論文では, 0.05%未満の値は議論に用いないこととする。

表 2-2 EC1.1 の標準値と測定値およびそのばらつき

酸化物	標準値 (wt%) $\pm$ SD	測定値 (wt%) $\pm$ SD
Na ₂ O	13.41 $\pm$ 0.11 (1%)	12.7 $\pm$ 0.2 (1%)
MgO	3.78 $\pm$ 0.10 (3%)	4.2 $\pm$ 0.1 (2%)
Al ₂ O ₃	1.08 $\pm$ 0.06 (6%)	1.4 $\pm$ 0.1 (3%)
SiO ₂	71.97 $\pm$ 0.14 (0%)	72.2 $\pm$ 0.2 (0%)
K ₂ O	0.59 $\pm$ 0.05 (8%)	0.6 $\pm$ 0.1 (2%)
CaO	8.63 $\pm$ 0.09 (1%)	8.7 $\pm$ 0.1 (1%)
TiO ₂	0.040 $\pm$ 0.002 (5%)	0.04 $\pm$ 0.01 (13%)
Fe ₂ O ₃	0.103 $\pm$ 0.004 (4%)	0.09 $\pm$ 0.00 (5%)

() 内は変動係数

2-4 完全非破壊法によるアルカリ珪酸塩ガラスの分類の妥当性

遺跡から出土したガラス小玉は貴重な文化財であり, 非破壊的な手法で調査をおこなうのが原則である。そのため, 本研究ではガラス小玉の化学組成の調査法として, 非破壊非接触で多元素同時測定が可能であり, 比較的短時間で測定できるエネルギー分散型蛍光 X 線分析法を採用した。

ただし、蛍光 X 線分析法による表面の非破壊測定では、風化による表層での化学組成の変化が分析結果に及ぼす影響を考慮しなければならない。遺跡から出土したガラス小玉は、埋蔵中における水分の作用などにより、表面の風化が進行している。そのため、風化した表面を非破壊測定すると、風化の影響で、本来の正確な化学組成を知ることは困難となる。

もっとも、資料の未風化部分から測定試料を採取することがまれに許されることもある。しかしながら、ガラス小玉は直径が 5 mm 前後の微小なものがほとんどであり、表面の風化層の除去による未風化部分の表出あるいは測定試料の採取は、資料の形状を著しく損なうことが懸念される。以上の理由で、蛍光 X 線分析を実施するにあたって、完全非破壊法による測定が求められる。

ここでは、資料を傷つけることなく情報が得られる「完全非破壊法」によるアルカリ珪酸塩ガラスの分類が可能かどうかを検証した。まず、遺跡から出土したガラス小玉について、風化した表面での定量値と未風化部分の定量値の比較から、完全非破壊法による蛍光 X 線分析法の妥当性を検証し、ガラスの種類および着色剤の分類が可能かどうかを検討した。さらに、AR 法を併用することで、完全非破壊法による蛍光 X 線分析でのアルカリ珪酸塩ガラスの分類精度を向上させられるか検証した。

2 - 4 - 1 ガラスの風化による化学組成の変化

アルカリ珪酸塩ガラスは、鉛珪酸塩ガラスに比べると、酸性溶液に対して比較的安定であると言われる（山根 1989）。日本の土壤の多くは酸性環境にあるため、アルカリ珪酸塩ガラスは表面の風化層が比較的薄く、一見すると保存状態が良好に見える。しかしながら、表層では酸化ナトリウムや酸化カリウムなどのアルカリ酸化物の含有量が大きく変動するとともに、その変動の方向（増減）や変動幅がガラスの種類によって異なることが指摘されている（肥塚 1997）。

そこで、遺跡出土のガラス小玉について、風化した表面での定量値と未風化部分の定量値の比較から、風化によるガラス表面の化学組成の変化について調査した。

2 - 4 - 1 - 1 実験の方法

遺跡から出土した基礎ガラスの異なる数種類のアルカリ珪酸塩ガラスについて、風化表面と風化層を除去した未風化部分を蛍光 X 線分析法で測定し、定量値を比較した。未風化部分の定量値は、超音波研磨装置により表層の風化層を除去しながら測定し、測定値が一定となった時点を定量値とみなした。測定に使用した装置および測定条件は 2 - 1 - 4 と同様である。

2-4-1-2 結果と考察

カリガラスは、紺色透明のものと淡青色透明のものを5点ずつ測定した（カリ紺1～5（表2-3），カリ淡青1～5（表2-4））。その結果、いずれも風化表層では、主要なアルカリ成分である酸化カリウムの含有量が著しく減少し、それに伴って相対的に二酸化珪素の値が増加した（図2-5）。酸化カリウムの減少が著しいものでは、6%前後にまで減少した（カリ紺3）。このことから、風化表面の非破壊測定ではカリガラスと判定できない資料が存在することがわかる。二酸化珪素と酸化カリウムの値が10%以上変動するのに対し、二酸化珪素および酸化カリウム以外のガラスの分類に関わる基礎ガラス成分の変動幅は1%以下と比較的少なく、増減の方向に一定の傾向が認められた（図2-6）。酸化ナトリウムの値は風化表面で0.2～1.2%減少するが、酸化マグネシウムと酸化アルミニウム、酸化カルシウム、酸化チタンはいずれも増加する傾向を示す。

ソーダ石灰ガラスは、未風化部分の測定値から3種類に分け、5点ずつ計15点を分析した。ソーダ淡青1～5（表2-5）は、酸化アルミニウム含有量が多く（10～12%）、ソーダ紺1～10（表2-6～表2-7）は、酸化アルミニウム含有量が少ない（2～4%）。また、ソーダ紺1～5（表2-6）は、酸化マグネシウムと酸化カリウムの含有量がいずれも2%より多いグループ、ソーダ紺5～10（表2-7）は、酸化マグネシウムと酸化カリウムの含有量が2%より少ないグループである。

これらのソーダ石灰ガラスでも、風化表層で主要なアルカリ成分である酸化ナトリウムが著しく減少し、相対的に二酸化珪素の値が増加している（図2-7）。風化表面での酸化ナトリウムの減少量は極めて大きく、未風化部分では15%程度の値を示す資料が、風化表面では1%程度まで減少した（表2-7ソーダ紺10）。酸化アルミニウムの多い一群（ソーダ淡青1～5）は、風化による主成分の変動量がやや少ない。酸化アルミニウムがガラスの耐候性を高める効果をもつ（山根1989）ためと考えられる。

しかし、やはり、風化表面の非破壊測定の定量値からは、主要なアルカリ酸化物が酸化ナトリウムなのか酸化カリウムなのかは判断できない、すなわちソーダ石灰ガラスと判定することができない資料が存在することが示された。ソーダ石灰ガラスでも、二酸化珪素および酸化ナトリウム以外の基礎ガラス成分の変動は1%前後以下と比較的少なく、いずれも増加する傾向が認められた（図2-8）。

表 2-3 カリガラス（紺色透明）の風化表面と未風化部分の定量値

試料		重量濃度 (%)											
		Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	CoO	CuO	PbO
カリ紺1	風化	0.2	0.3	2.8	80.0	11.6	1.7	0.17	1.66	1.18	0.06	0.04	0.03
	未風化	1.2	0.4	2.5	70.8	20.3	1.7	0.18	1.47	1.18	0.06	0.19	0.05
カリ紺2	風化	0.6	0.5	2.7	81.7	8.1	2.3	0.20	1.99	1.68	0.09	0.04	0.02
	未風化	1.0	0.3	1.9	68.0	22.9	1.8	0.21	1.96	1.67	0.09	0.03	0.05
カリ紺3	風化	0.4	0.6	4.3	81.8	6.6	1.6	0.24	2.23	1.99	0.07	0.04	0.04
	未風化	0.9	0.3	2.8	65.8	24.7	1.3	0.18	1.93	1.69	0.06	0.03	0.02
カリ紺4	風化	0.6	0.5	2.8	80.7	9.0	1.4	0.33	2.25	2.05	0.10	0.04	0.05
	未風化	1.8	0.5	2.6	67.0	21.8	1.4	0.27	2.25	2.15	0.09	0.04	0.03
カリ紺5	風化	0.9	0.7	2.6	81.3	8.4	2.1	0.27	1.97	1.66	0.09	0.05	0.03
	未風化	0.7	0.5	2.6	68.0	22.6	1.4	0.17	1.97	1.73	0.09	0.04	0.03
未風化部分の平均		1.1	0.4	2.5	67.9	22.5	1.5	0.20	1.92	1.68	0.08	0.07	0.04
風化部分の平均		0.5	0.5	3.0	81.1	8.7	1.8	0.25	2.02	1.71	0.08	0.04	0.03
変動値の平均		-0.6	0.1	0.6	13.2	-13.7	0.3	0.05	0.10	-0.03	0.00	-0.02	0.00
変動値の標準偏差		0.5	0.1	0.5	2.2	3.1	0.3	0.04	0.12	0.14	0.00	0.06	0.02

表 2-4 カリガラス（淡青色透明）の風化表面と未風化部分の定量値

試料		重量濃度 (%)											
		Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	CoO	CuO	PbO
カリ淡青1	風化	0.4	0.4	4.8	72.9	17.8	0.5	0.16	0.01	0.56	0.01	1.84	0.30
	未風化	1.0	0.3	4.5	70.0	20.9	0.5	0.15	0.02	0.52	0.01	1.77	0.27
カリ淡青2	風化	0.4	0.3	5.0	78.0	12.8	0.5	0.20	0.05	0.52	0.02	1.88	0.19
	未風化	0.8	0.3	4.3	69.9	21.4	0.4	0.15	0.02	0.49	0.01	1.92	0.19
カリ淡青3	風化	0.8	0.6	5.2	75.2	14.8	0.5	0.17	0.01	0.59	0.01	1.76	0.26
	未風化	0.3	0.3	4.4	70.8	20.9	0.5	0.14	0.02	0.54	0.01	1.71	0.26
カリ淡青4	風化	0.6	0.3	5.4	77.1	13.7	0.5	0.18	0.02	0.58	0.01	1.27	0.23
	未風化	0.8	0.3	4.7	70.3	21.1	0.5	0.17	0.02	0.58	0.00	1.27	0.22
カリ淡青5	風化	0.9	0.3	5.0	77.4	13.0	0.5	0.19	0.03	0.57	0.01	1.80	0.27
	未風化	1.2	0.2	4.4	70.1	20.8	0.4	0.17	0.01	0.53	0.01	1.74	0.28
未風化部分の平均		0.8	0.3	4.4	70.2	21.0	0.4	0.16	0.02	0.53	0.01	1.68	0.24
風化部分の平均		0.6	0.4	5.1	76.1	14.4	0.5	0.18	0.02	0.56	0.01	1.71	0.25
変動値の平均		-0.2	0.1	0.6	5.9	-6.6	0.1	0.02	0.01	0.03	0.00	0.03	0.01
変動値の標準偏差		0.4	0.1	0.2	1.9	1.9	0.0	0.01	0.02	0.02	0.00	0.04	0.01

表 2-5 ソーダ石灰ガラス (Al_2O_3 含有量 > 5 %) (淡青色半透明) の風化表面と未風化部分の定量値

試料		重量濃度 (%)											
		Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	CoO	CuO	PbO
ソーダ 淡青1	風化	5.7	0.3	10.9	72.1	6.0	1.8	0.43	0.08	0.56	0.03	1.64	0.22
	未風化	14.9	0.6	9.8	65.4	5.5	1.3	0.31	0.03	0.46	0.02	1.40	0.20
ソーダ 淡青2	風化	6.0	0.4	11.4	72.6	5.9	1.7	0.36	0.04	0.48	0.02	0.85	0.19
	未風化	14.8	0.1	10.0	66.3	5.5	1.4	0.38	0.06	0.45	0.02	0.63	0.17
ソーダ 淡青3	風化	10.2	0.3	11.6	67.9	5.3	2.1	0.54	0.09	0.91	0.02	0.76	0.04
	未風化	16.7	0.4	10.8	63.5	5.0	1.6	0.41	0.05	0.82	0.01	0.54	0.04
ソーダ 淡青4	風化	3.5	0.4	11.8	73.2	6.2	1.8	0.39	0.03	0.60	0.02	1.52	0.23
	未風化	16.1	0.3	9.6	64.8	5.5	1.3	0.34	0.03	0.46	0.01	1.41	0.19
ソーダ 淡青5	風化	6.8	0.4	10.9	72.2	5.9	1.6	0.42	0.03	0.50	0.01	0.78	0.18
	未風化	16.2	0.2	9.7	65.9	5.1	1.2	0.31	0.03	0.38	0.01	0.58	0.14
未風化部分の平均		15.7	0.3	10.0	65.2	5.3	1.4	0.35	0.04	0.51	0.01	0.91	0.15
風化部分の平均		6.5	0.4	11.3	71.6	5.9	1.8	0.43	0.05	0.61	0.02	1.11	0.17
変動値の平均		-9.3	0.0	1.4	6.4	0.6	0.4	0.08	0.01	0.10	0.01	0.20	0.02
変動値の標準偏差		1.9	0.2	0.5	1.3	0.2	0.1	0.06	0.03	0.04	0.00	0.05	0.01

表 2-6 ソーダ石灰ガラス (Al_2O_3 含有量 < 5 %, K_2O , MgO > 2 %) (紺色透明) の風化表面と未風化部分の定量値

試料		重量濃度 (%)											
		Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	CoO	CuO	PbO
ソーダ紺1	風化	5.9	3.8	3.5	73.8	3.4	6.5	0.21	0.51	1.71	0.14	0.26	0.13
	未風化	18.6	2.9	2.7	66.1	2.6	6.1	0.19	0.45	1.76	0.14	0.23	0.11
ソーダ紺2	風化	7.4	4.2	3.8	70.7	4.0	7.1	0.18	0.35	1.66	0.15	0.19	0.11
	未風化	18.9	4.1	2.5	63.2	3.1	5.9	0.13	0.27	1.34	0.10	0.17	0.10
ソーダ紺3	風化	5.3	4.7	4.3	70.8	6.7	6.3	0.16	0.09	1.27	0.04	0.10	0.19
	未風化	17.1	4.0	3.6	62.2	6.2	5.3	0.13	0.08	1.03	0.04	0.09	0.17
ソーダ紺4	風化	2.0	3.5	2.9	77.0	5.2	7.2	0.20	0.16	1.40	0.08	0.13	0.12
	未風化	19.1	2.9	2.5	63.2	4.4	6.1	0.18	0.15	1.22	0.07	0.11	0.07
ソーダ紺5	風化	9.6	5.7	2.7	70.0	3.5	6.4	0.16	0.22	1.36	0.09	0.15	0.05
	未風化	19.0	5.3	2.4	62.8	3.0	5.6	0.15	0.19	1.20	0.09	0.14	0.11
未風化部分の平均		18.5	3.9	2.7	63.5	3.9	5.8	0.16	0.23	1.31	0.09	0.15	0.11
風化部分の平均		6.0	4.4	3.4	72.5	4.6	6.7	0.18	0.27	1.48	0.10	0.17	0.12
変動値の平均		-12.5	0.5	0.7	9.0	0.7	0.9	0.03	0.04	0.17	0.01	0.02	0.01
変動値の標準偏差		2.6	0.3	0.3	2.5	0.2	0.3	0.01	0.03	0.12	0.02	0.01	0.04

表 2-7 ソーダ石灰ガラス (Al_2O_3 含有量 < 5 %, K_2O , MgO < 2 %) (紺色透明) の風化表面と未風化部分の定量値

試料		重量濃度 (%)											
		Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	CoO	CuO	PbO
ソーダ紺6	風化	2.0	0.5	4.0	82.4	1.7	4.8	0.29	2.56	1.51	0.07	0.04	0.03
	未風化	17.5	0.4	3.1	69.0	1.7	4.2	0.24	2.33	1.32	0.06	0.03	0.02
ソーダ紺7	風化	2.1	0.7	3.7	83.0	1.5	5.0	0.26	2.36	1.01	0.09	0.07	0.03
	未風化	16.8	0.5	3.0	70.4	1.6	4.3	0.21	2.03	0.89	0.08	0.05	0.04
ソーダ紺8	風化	2.4	0.4	3.5	83.3	0.8	5.2	0.29	2.66	1.19	0.10	0.05	0.03
	未風化	17.5	0.4	2.2	72.2	0.7	3.8	0.20	1.88	0.85	0.07	0.03	0.03
ソーダ紺9	風化	2.0	0.7	4.1	84.4	0.9	4.0	0.28	2.24	1.20	0.07	0.04	0.04
	未風化	17.5	0.5	2.4	72.0	0.9	3.3	0.22	1.87	1.00	0.05	0.02	0.03
ソーダ紺10	風化	1.4	0.5	3.9	84.9	1.2	4.1	0.28	2.25	1.20	0.08	0.05	0.03
	未風化	15.1	0.4	2.9	73.6	1.2	3.5	0.22	1.89	0.93	0.07	0.03	0.02
未風化部分の平均		16.9	0.5	2.7	71.4	1.2	3.8	0.22	2.00	1.00	0.07	0.03	0.03
風化部分の平均		2.0	0.6	3.8	83.6	1.2	4.6	0.28	2.41	1.22	0.08	0.05	0.03
変動値の平均		14.9	0.1	1.1	12.2	0.0	0.8	0.06	0.41	0.22	0.02	0.02	0.00
変動値の標準偏差		0.7	0.1	0.3	0.9	0.1	0.3	0.01	0.19	0.07	0.01	0.00	0.01

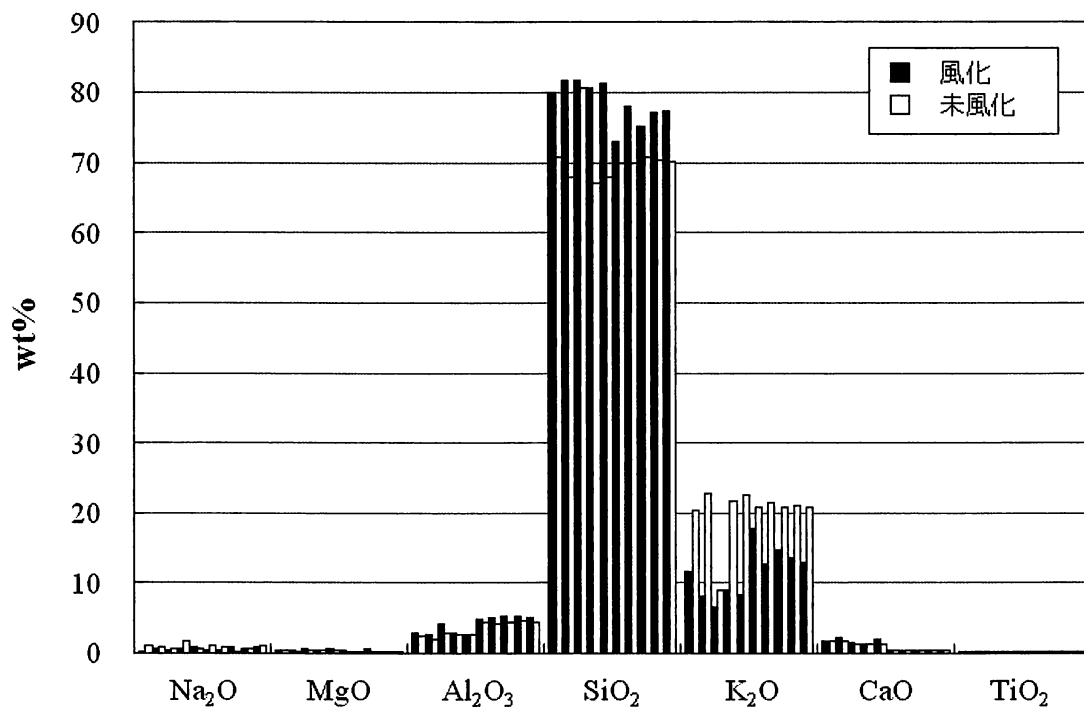


図 2-5 基礎ガラス成分の風化表面と未風化部分の定量値の変化 (カリガラス)

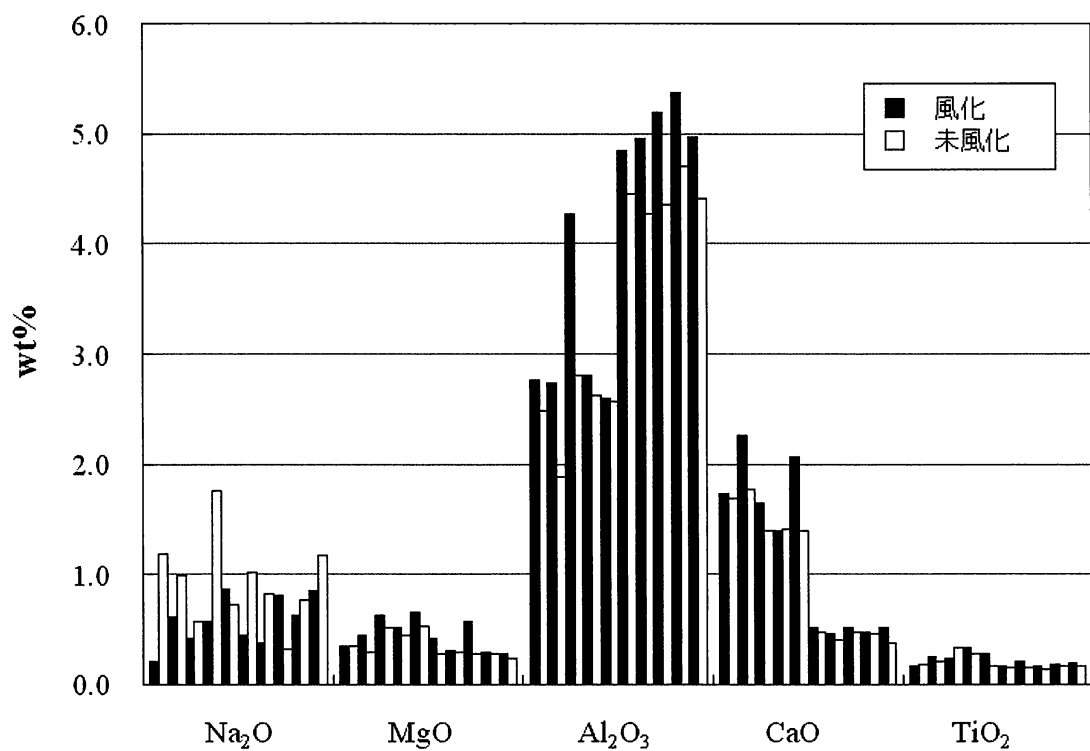


図 2-6 基礎ガラス成分の風化表面と未風化部分の定量値の変化（カリガラス）（ K_2O 、 SiO_2 以外）

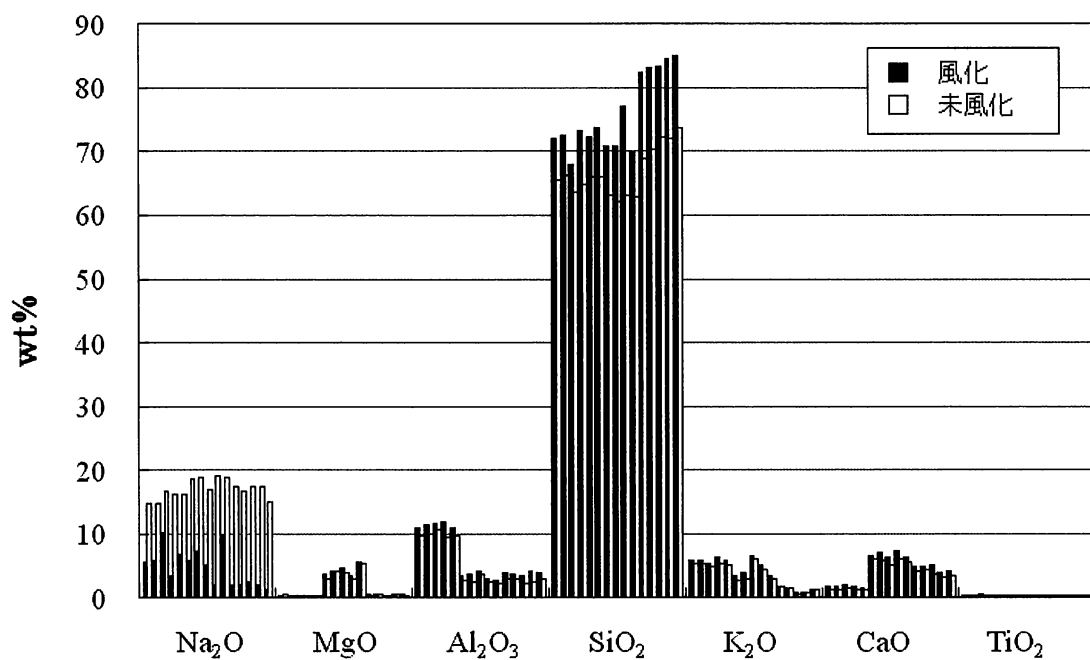


図 2-7 基礎ガラス成分の風化表面と未風化部分の定量値の変化（ソーダ石灰ガラス）

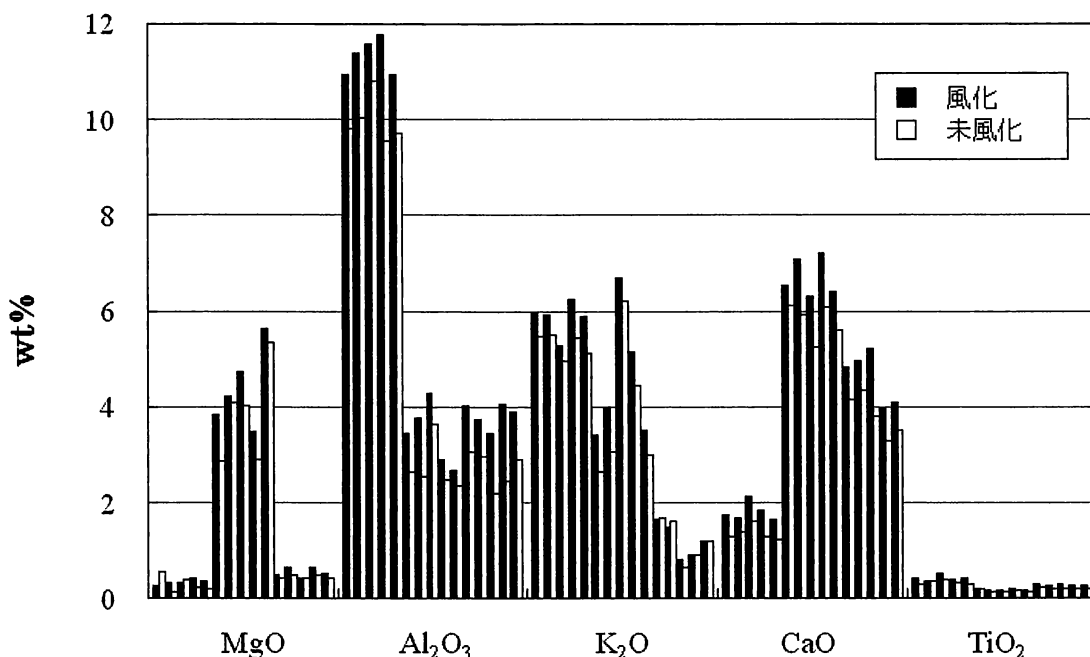


図 2-8 基礎ガラス成分の風化表面と未風化部分の定量値の変化（ソーダ石灰ガラス）（Na₂O, SiO₂ 以外）

2 - 4 - 2 AR 法と蛍光 X 線分析を併用したアルカリ珪酸塩ガラスの分類

アルカリ珪酸塩ガラスの分類では、アルカリ酸化物の種類が異なるカリガラスとソーダ石灰ガラスの判別が出発点となる。本研究で用いた蛍光 X 線分析法でも、未風化部分であれば、酸化ナトリウムと酸化カリウムの測定値から、両者を明確に区別できた（図 2-9）。しかし、風化表面の非破壊測定では、主要なアルカリ酸化物の値が 10%以上減少する場合があります、カリガラスかソーダ石灰ガラスか判断できない資料が一定量存在することが明らかとなった。

カリガラスとソーダ石灰ガラスを判別する方法として、AR 法の有効性が示されている（肥塚・脇谷 2003）。そこで、風化表面でのアルカリ酸化物の減少が著しい資料でも、AR 法によるカリガラスとソーダ石灰ガラスを判別できるかを検証した。

一方、主要なアルカリ酸化物および二酸化珪素以外の成分は、未風化部分と風化表面での測定値の差が 1 %前後以下と比較的小さく、増減の方向も一定であることがわかった。そこで、風化表面での蛍光 X 線分析の測定値から、カリガラスおよびソーダ石灰ガラス内の細分が可能かどうかを検証した。

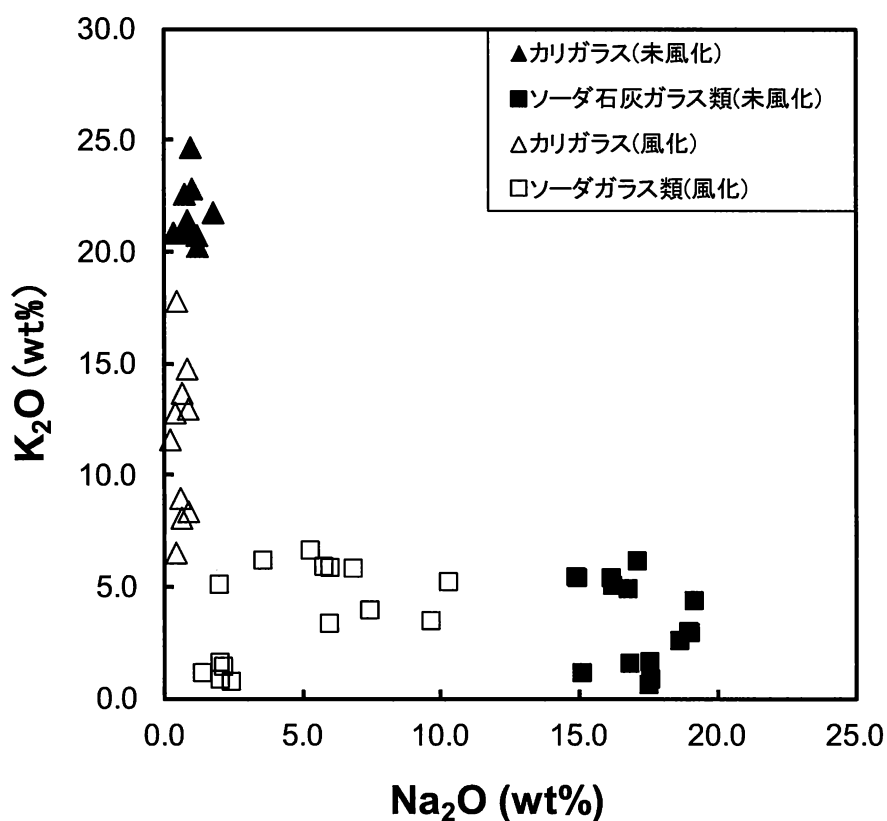


図 2-9 アルカリ珪酸塩ガラスの未風化部および風化表面の Na₂O - K₂O 値

Na₂O および K₂O はどちらも風化表面で減少するため、風化表面の定量値ではカリガラスかソーダ石灰ガラスか判断できない資料が一定量存在する。

2 - 4 - 2 - 1 AR 法によるカリガラスとソーダ石灰ガラスの判別

蛍光 X 線分析による定量値の検討 (2 - 4 - 1) に供したアルカリ珪酸塩ガラス小玉を用いて、表面の風化が進行した場合でもカリガラスとソーダ石灰ガラスを区別できるかを確認する実験をおこなった。

結果を図 2-10 に示す。AR 法では、カリガラスは風化表面での酸化カリウム含有量の変動の程度にかかわらず、いずれも比較試料の BCR126A (K₂O : 10.0%) よりも黒化度が高いのに対し、ソーダ石灰ガラスはいずれも BCR126 よりも黒化度が低く、画像上の濃淡から、カリガラスとソーダ石灰ガラスを判別することが可能であった。

以上の結果から、完全非破壊法による蛍光 X 線分析の測定値ではカリガラスかソーダ石灰ガラスかを判別できない場合にも、AR 法を利用することで、両者を識別できることが確認された。

IP (BAS-SR2025)

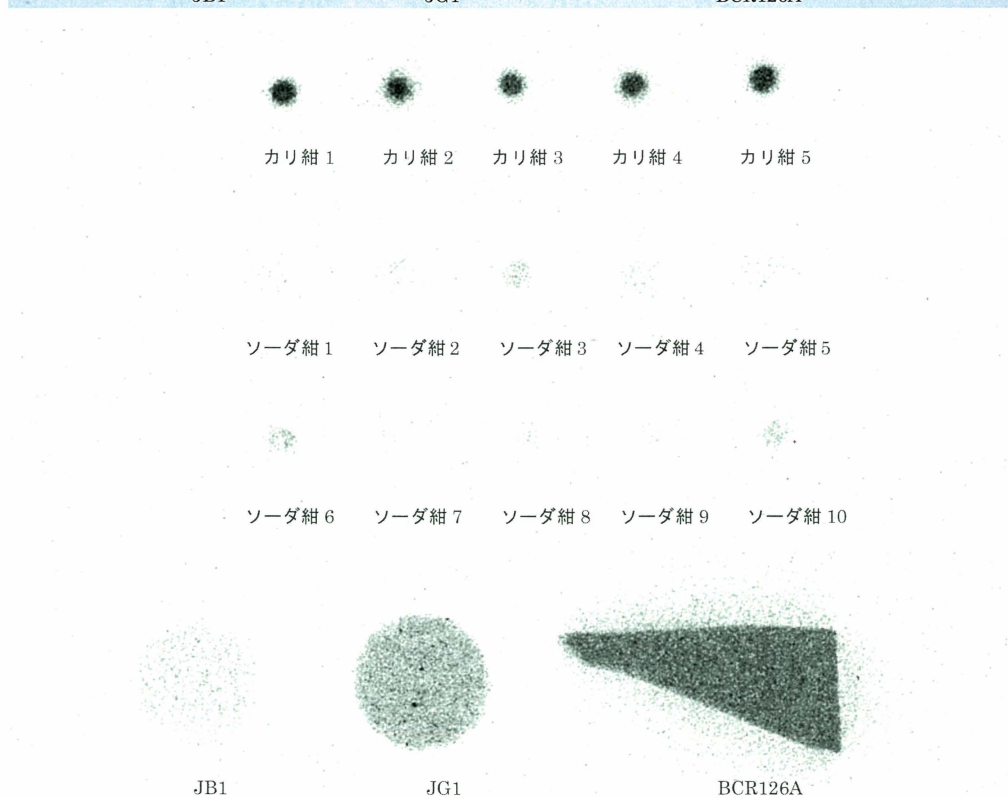


図 2-10 AR 法によるカリガラスとソーダ石灰ガラスの識別

カリガラスは比較試料の BCR126A (K_2O : 10.0%) よりも黒化度が著しく高い。一方、ソーダ石灰ガラスは JB1 (K_2O : 1.4%) と JG1 (K_2O : 4.0%) の間の黒化度を示す。

2-4-2-2 完全非破壊法の蛍光X線分析によるカリガラスの細分

近年、カリガラスを細分して、その分布域を論じる研究が進展している。ランクトンらの先行研究 (Lankton and Dussubieux 2006) では、酸化アルミニウムと酸化カルシウムの含有量がカリガラスの細分に関わる要素とされており、日本列島で出土するカリガラスについても、生産地周辺の資料との対比を進めることが重要となる。そこで、酸化アルミニウムと酸化カルシウムの未風化部分での含有量の相対関係が、風化表面でも再現されるかどうかを検討した。

図 2-11 に、カリガラスに含まれる酸化アルミニウムと酸化カルシウムの未風化部分での測定値と、風化表面での測定値の関係を示す。未風化部分の値では、酸化アルミニウムが多く、酸化カルシウムの少ない一群と、酸化アルミニウムが少なく、酸化カルシウムが多い一群が明確に分離している。こうした分布の特徴は、風化表面の測定値でもほぼ再現されている。ただし、酸化アルミニウムの値が風化表面で 1 % 以上増加し、中間的な領域に分布する個体も認められた。酸化アルミニウムについては、変動量がやや大きい例が存在することに注意する必要がある。ただし、このような変動は 10 点中 1 点であり、分析資料数を十分に増やすことで、風化表面の分析値でも集団としてのまとまりを抽出することは可能と考えられる。

これらの成分の変動は、ほぼ一貫して増加方向を示すものの、変動量の個体差が大きいため、風化表面の測定値から未風化部分の値を見積もることはできない。そのため、破壊分析による定量値と、本研究の非破壊法で得られた風化表面の測定値を直接比較することはできない。

2-4-2-3 完全非破壊法の蛍光X線分析によるソーダ石灰ガラスの細分

ソーダ石灰ガラスは、酸化アルミニウムと酸化カルシウムの含有量で分類される。肥塚隆保 (1995) は、日本列島で流通したソーダ石灰ガラスにも酸化アルミニウムの含有量が多く、酸化カルシウムの少ないものと、酸化アルミニウムの含有量が少なく、酸化カルシウムの多いものがあることを明らかにした。

そこで、ソーダ石灰ガラスの酸化アルミニウムと酸化カルシウムの未風化部分での含有量の相対関係が風化表面でも再現されるかどうかを検討した。ソーダ石灰ガラスに含まれる酸化アルミニウムと酸化カルシウムについて、未風化部分と風化表面の測定値の関係を図 2-12 に示す。未風化部分の測定値で明確に分かれるふたつのグループの関係は、風化表面の測定値でも再現されている。酸化アルミニウムと酸化カルシウムは、いずれも風化表面で増加する傾向を示し、変動の方向は一定である。ただし、やはり変動量の個体差が大きく、破壊分析による定量値と本研究の風化表面の測定値を直接比較することはできない。

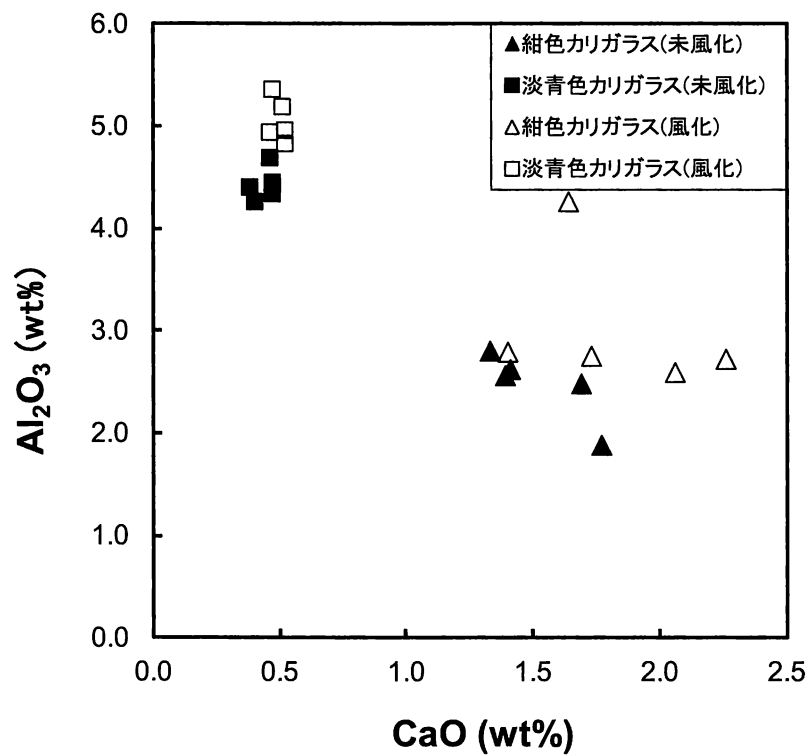


図 2-11 カリガラスの未風化部および風化表面の CaO - Al_2O_3 値

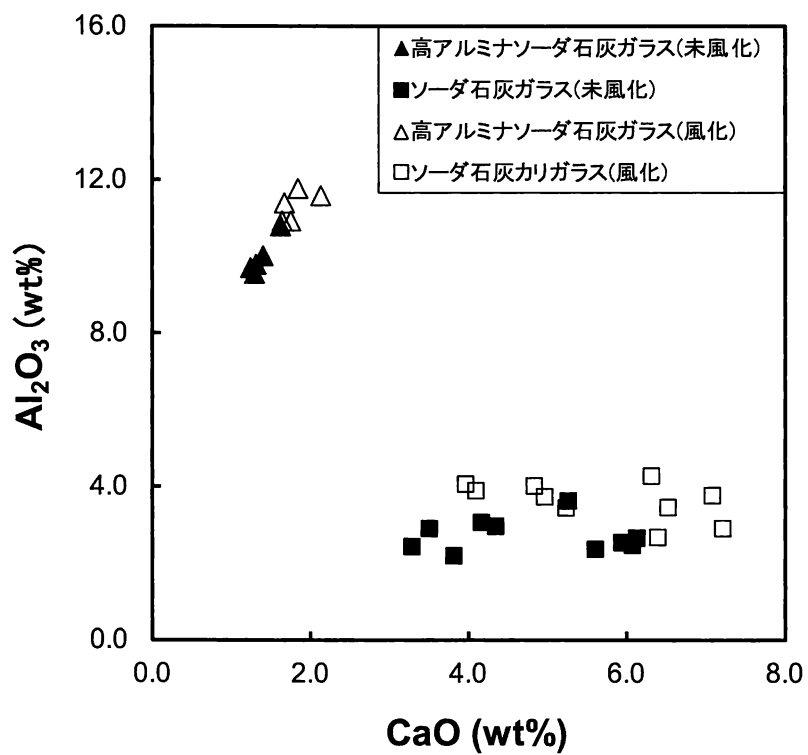


図 2-12 ソーダ石灰ガラスの未風化部および風化表面の CaO - Al_2O_3 値

ソーダ石灰ガラスには、ソーダ原料に鉍物を利用したものと、植物灰を利用したものがあり、酸化マグネシウムと酸化カリウムの含有量から区別される。そこで、次に、ソーダ石灰ガラスの未風化部分における酸化マグネシウムと酸化カリウム含有量の相対関係が、風化表面でも再現されるかどうかを検討した。図 2-13 に、ソーダ石灰ガラスに含まれる酸化マグネシウムと酸化カリウムについて、未風化部分と風化表面の測定値の関係を示す。

未風化部分の測定値でふたつに分かれるグループの関係は、風化表面の測定値でも再現されている。一般に、酸化カリウムおよび酸化マグネシウムの含有量がいずれも 1.5～2 % 以下であれば鉍物系のソーダ原料、両者が 1.5～2 % 以上であれば植物灰が用いられたとされる。これら両成分がともに少ないもの（ソーダ紺 6～10）は、風化表面における変動量が最大で 0.2%（酸化マグネシウム）、および 0.1%（酸化カリウム）である。FP 法による定量値の精度（2 - 3）を考慮しても、両成分の含有量が 2 % 以下のグループの風化表面の測定値が、2 % を大きく超える領域に分布する可能性は低い。

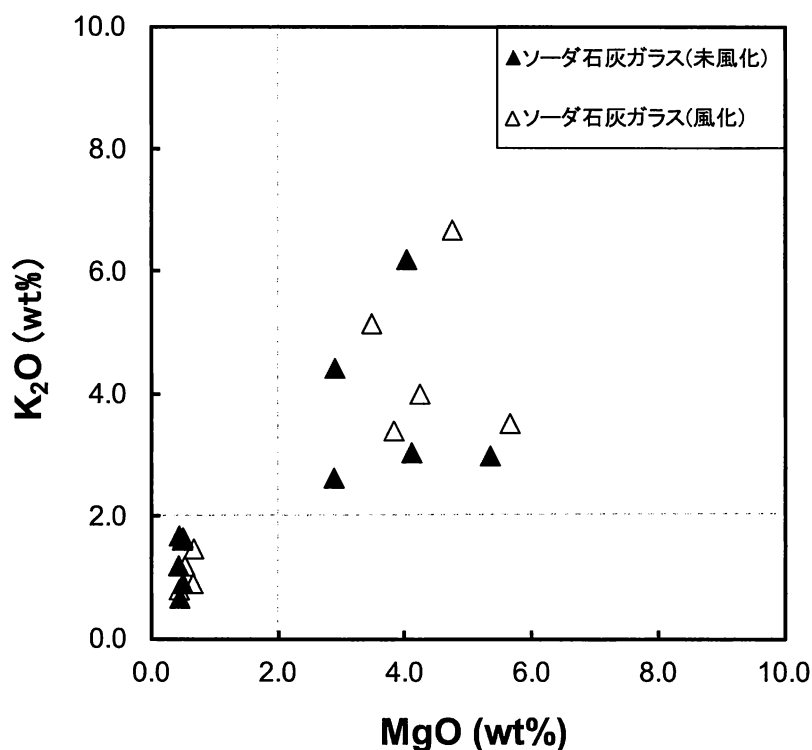


図 2-13 ソーダ石灰ガラスの未風化部および風化表面の MgO - K₂O 値

また、両成分の本来の値が2%以下のグループと2%以上のグループの間では、各成分の含有量の差が1～2%あり、両者は風化による変動幅よりも十分に離れた領域に分布する。したがって、風化表面の測定値が例外的な値を示す資料が出現する可能性は否定できないものの、資料数を十分に増やすことで、グループとしてのまとまりは抽出できる。

2-4-2-4 着色剤の分類

原料に関係する成分から着色剤を分類する場合は、おもに酸化マンガン、酸化銅、酸化コバルト、酸化鉛の含有量が問題となる。ガラスに含まれる酸化鉄も着色要因のひとつと考えられるが、酸化鉄は基礎ガラスの原料となる珪砂などにも含まれるので、着色剤として意図的に添加されたかどうかは不明である。そのため、本研究では、酸化鉄の含有量の多少を着色剤との関係で積極的に評価することはない。

酸化マンガンは、風化面でやや増加する傾向がある（図 2-14）。酸化マンガンを1%前後かそれ以上含む資料では増加量が0.1%を超えることがあるが、含有量が0.5%未満の資料の変動幅は0.1%未満であり、未風化部分での含有量の多少の相対的な関係は、風化部分の定量値でも維持されている。

酸化コバルトの含有量は、多くても0.1%前後である。酸化コバルトが0.07～0.15%含まれる場合には風化表面で0.03～0.05%程度増加することもあるが、それよりも少ない場合の増加量は最大でも0.01%であり、やはり未風化部分での含有量の多少の相対的な関係は、風化表面の定量値でも維持されている（図 2-15）。酸化コバルトが0.05%以上含まれるグループと、0.05%未満の極めて少ないグループは明確に区別できる。前者は色調が紺色のものに、後者は淡青色のものに対応することから、風化表面での酸化コバルトの測定値の多少による分類が有意であることを示している。

酸化銅も風化面でやや増加する傾向が認められる。酸化銅が1%前後かそれ以上含まれる場合に、風化表面における増加量が0.1%を超えることがあるが、0.5%未満の場合には、その増加量は最大でも0.03%である。風化表面の酸化銅の定量値から含有量の多少を論じることは可能であり、酸化銅を0.5%以上含むグループと0.5%未満のグループは風化表面の値でも明確に分類できる（図 2-16）。さらに、酸化銅を0.1～0.3%含有するグループと0.1%未満のグループについても、未風化部分の測定値で確認できるまとまりは、風化表面での分析値でも再現されている。ただ、カリ紺1のみは、風化表面の定量値が0.1%以上減少するという結果が得られている。例外的に、このような変動パターンを示す場合も考慮する必要があるが、資料数を十分に増やすことで回避できる問題と考える。

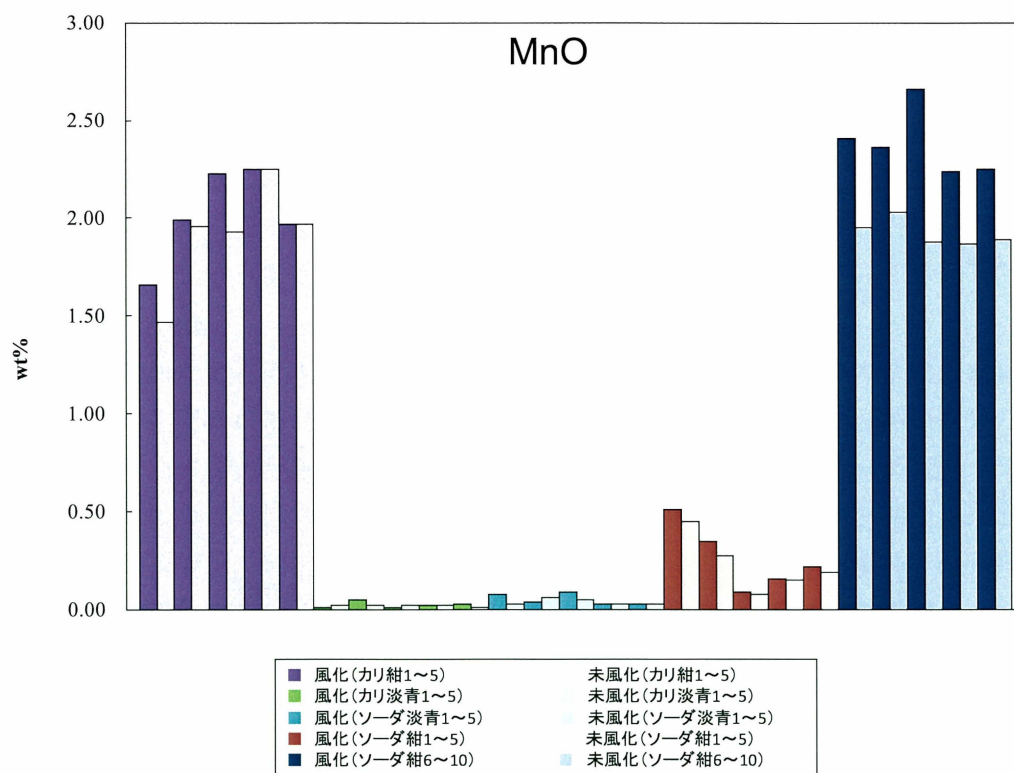


図 2-14 酸化マンガンの風化表面と未風化部分の定量値の変化

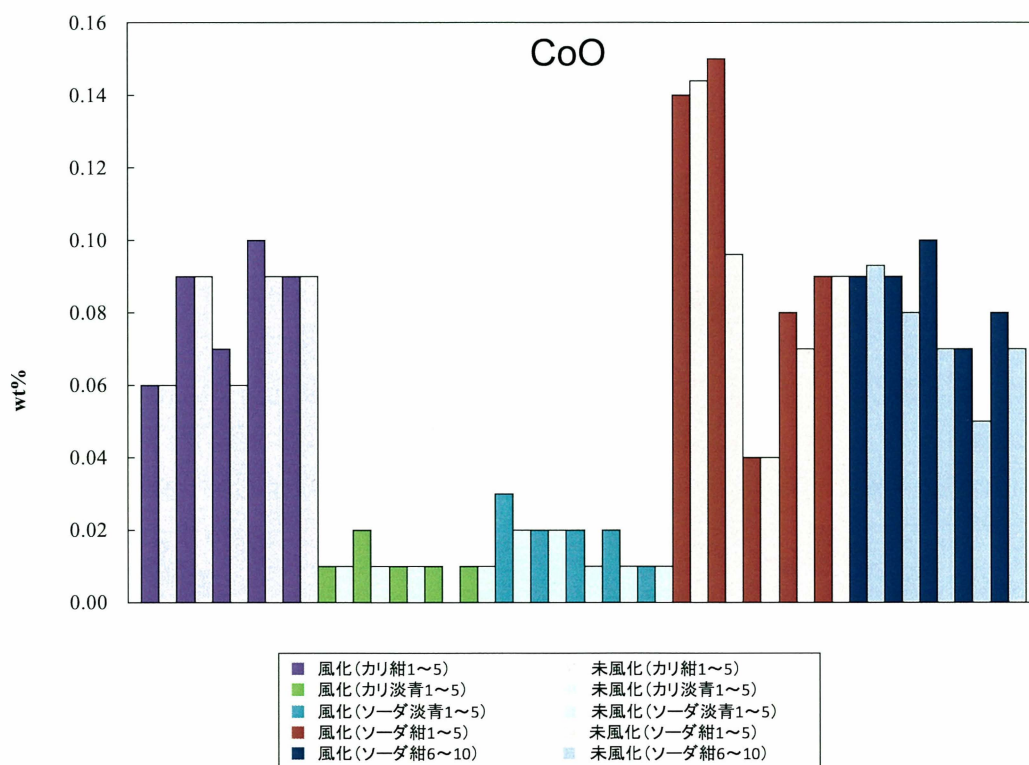


図 2-15 酸化コバルトの風化表面と未風化部分の定量値の変化

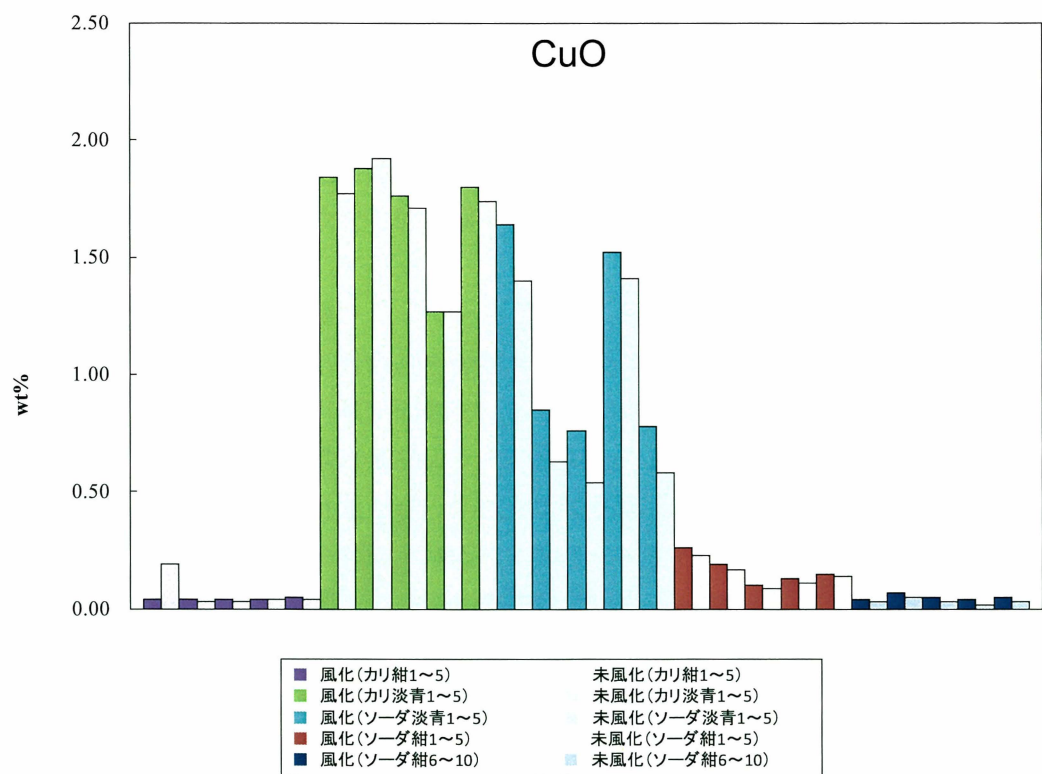


図 2-16 酸化銅の風化表面と未風化部分の定量値の変化

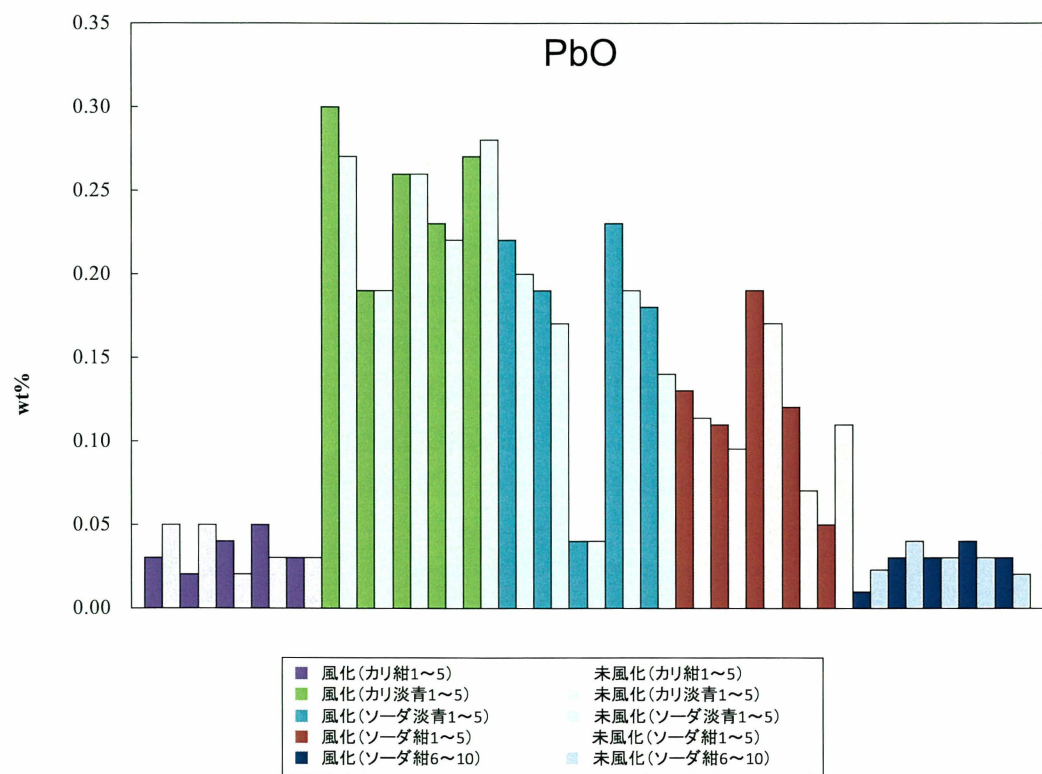


図 2-17 酸化鉛の風化表面と未風化部分の定量値の変化

酸化鉛は、風化表面でわずかに増加するものと、わずかに減少するものの両方が認められる。酸化鉛の含有量が 0.1% を超える場合には変動量が 0.04～0.06% となるが、0.1% 未満の場合の変動量は最大でも 0.03% である。基本的に、未風化部分での含有量の多少の相対的な関係は、風化表面の定量値でも維持されている（図 2-17）。ただし、風化表面での変動の方向が一定でない点は注意する必要がある。

2-4-2-5 小結

完全非破壊法によるアルカリ珪酸塩ガラスの定量値は、主要なアルカリ成分の減少が著しく、二酸化珪素が相対的に大きく増加する傾向がある一方、それ以外の成分の変動量は少ない。このことから、AR 法を併用することでカリガラスとソーダ石灰ガラスを識別できれば、カリガラス内およびソーダ石灰ガラス内の細分は可能と考えられる。さらに、酸化マンガン、酸化銅、酸化コバルト、酸化鉛などの着色剤およびその原料に係る成分についても、風化表面の定量値でグルーピングできると判断した。

註

- 1) 標準ガラスに関する文献は、Society of Glass Technology (1962, 1973), British Glass (1976), National Bureau of Standards (1982) など。
- 2) 蛍光 X 線分析法では、励起用 X 線に連続 X 線が用いられており、珪素やナトリウムなど原子量の小さい元素を主成分とするアルカリ珪酸塩ガラスの測定で高い管電圧を設定すると、バックグラウンドが高くなり、分析精度に影響を与える。そこで、FP 法を用いた定量分析では管電圧を 20 kV に設定した。

引用・参考文献

- 伊藤 彰, 1996, 『一ガラスにおける一炎と色の技術』, アグネ技術センター。
- 大賀克彦, 2003, 「紀元三世紀のシナリオ」, 『風巻神山古墳群』, 72～90 頁。
- 小瀬康行, 1987, 「管切り法によるガラス小玉の成形」, 『考古学雑誌』, 第 73 巻, 第 2 号, 83～95 頁。
- 肥塚隆保, 1995, 「古代珪酸塩ガラスの研究—弥生～奈良時代のガラス材質の変遷—」, 『奈良国立文化財研究所創立 40 周年記念論文集 文化財論叢Ⅱ』, 929～967 頁。
- 肥塚隆保, 1997, 『日本で出土した古代ガラスの歴史的変遷に関する科学的研究』, 博士学位論文。
- 肥塚隆保, 2002, 「鉛バリウムガラスより発見された珪酸銅バリウム (BaCuSi₄O₁₀) について」, 『文化財論叢Ⅲ』, 705～717 頁。
- 肥塚隆保・脇谷草一郎, 2003, 「CR・AR 法を用いた非破壊材質調査の開発研究—古代のガラスの材質判別」, 『日本文化財科学会第 20 回大会研究発表要旨集』, 38～39 頁。

- 日本分析化学会 X 線分析研究懇談会監修, 中井泉編, 2005, 『蛍光 X 線分析の実際』, 朝倉書店。
- 濱口宏夫・平川暁子編, 1988, 『ラマン分光法 (日本分光学会 測定法シリーズ 17)』, 学会出版センター。
- 山根正之, 1989, 『はじめてガラスを作る人のために』, セラミックス基礎講座 4, 内田老鶴圃。
- British Gass (1976), Standard Reference Material Standard Glass., *Glass Technology* Vol.17, No.6.
- Brill, R.H. (1969), The Scientific Investigation of Ancient Glasses. Eighth International Congress on Glass., Society of Glass Technology, London, pp.47-68.
- Lankton, J.W. and Dussubieux L.E. (2006), Glass in Asian Maritime Trade : A Review and an Interpretation of Compositional Analyses., *Journal of Glass Studies*, 48., pp.121-144.
- National Bureau of Standards (1982), Certificate Standard Reference Material 620 Soda-Lime Flat Glass, Office of Standard Reference Material.
- Society of Glass Technology (1962), Certificate of Analysis. *Glass Technology*. Vol.13.
- Society of Glass Technology (1973), The chemical analysis of colorless soda-lime-silica glasses. *Glass Technology*. Vol.14, No.1.,pp.5-13.

第3章 アルカリ珪酸塩ガラス小玉の分類

3-1 分類の手順

本章では、第2章で述べた調査方法でアルカリ珪酸塩ガラス小玉进行分类する。分类の手順は図3-1のとおりである。まず、弥生～古墳時代のガラス小玉をCR法により、アルカリ珪酸塩ガラスと鉛珪酸塩ガラスに分类した。次いで、顕微鏡観察とCR法で、アルカリ珪酸塩ガラスを形態的特徴から分类し、それぞれの製作技法を推定した。このとき、異なる種類のガラスが混合された可能性のある二次的な生産によるガラス小玉は、化学組成の取り扱いに注意し、一次的な生産によるガラス小玉との単純な比較はおこなわないこととした。一次的な生産によるガラス小玉は、AR法でカリガラスとソーダ石灰ガラスを識別した。また、AR法による調査と並行して蛍光X線分析を実施し、カリガラスおよびソーダ石灰ガラスを、基礎ガラス成分の含有量から細分した。蛍光X線分析結果からは、主要な着色要因の推定もおこなった。さらに、主要な着色剤成分が同じものについては、着色剤原料の不純物に由来する成分の含有量によって分類を試みた。

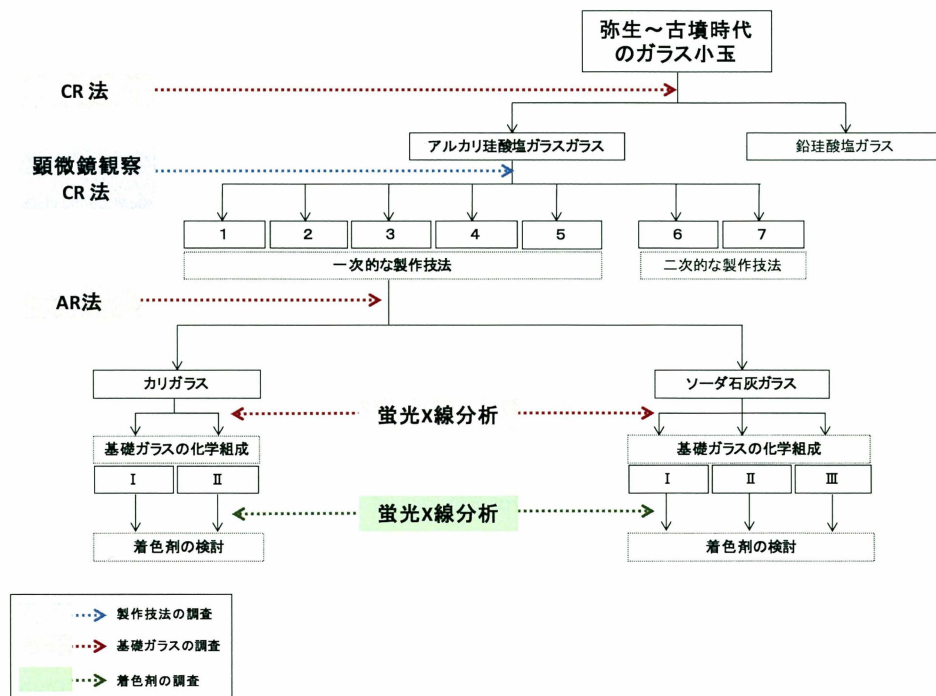


図3-1 アルカリ珪酸塩ガラス小玉の分類手順

3-2 製作技法

弥生～古墳時代のガラス小玉を、外形と孔の形状、気泡の形状と配列の方向、腐食形態などの特徴から、7種類（1～7類）に大別した。以下、各類型の形態的特徴と、そこから推定される製作技法について述べる。記述にあたり、ガラス小玉の各部の名称を図3-2に示しておく。

3-2-1 形態的特徴

1類 孔壁面が平滑で、孔と平行方向に並ぶ気泡列、または両端面を貫く気泡筋が認められるのが最大の特徴である。側面に孔と平行方向の縞状の色むらがあるものもある。これらを、気泡の形状や腐食形態、外形の特徴から3種類（1a類、1b類、1c類）に分類した。

1a類は、球形の気泡が孔と平行方向に並ぶもので、壁厚の半分以上を占めるような大きな気泡を含むこともある。この大きな気泡は、表面とつながっていることもある（図3-3）。多数の微細な気泡が直線状に並ぶものや、大きな気泡が孔と平行方向に引き伸ばされて楕円体になるものもあるが、両端面を貫く気泡筋が形成されることは少ない。ただし、扁平なものには気泡筋が見られることもある（図3-4c～d）。気泡筋の断面は円形もしくは楕円形など様々である。風化の進行したものは、表面に半透明被膜状の風化層が形成され、この風化層には亀甲状の亀裂が入ることがある（図3-5）。一方で、端面に小瀬（1987）の指摘するような同心円状の蝕像は見られない。色むらは、側面では孔と平行方向に並ぶ（図3-4a～b）が、端面（断面）では不規則で同心円状を示さない。1a類には、アルカリ珪酸塩ガラス小玉のほぼすべての色調がそろそろ。直径が6 mmを超えない、典型的なインド・パシフィックビーズに相当する。

1b類には、両端面を貫く気泡筋が特徴的に認められる（図3-6a～b）。孔壁面が1類のなかでも極めて平滑である。気泡筋の断面は円形ではなく、孔の同心円にそって湾曲する。風化の進んだものは、端面に孔と同心円状の蝕像が認められる（図3-6c～d）。側面には孔と平行に走る溝状の蝕像が多数生じている。インド・パシフィックビーズの範

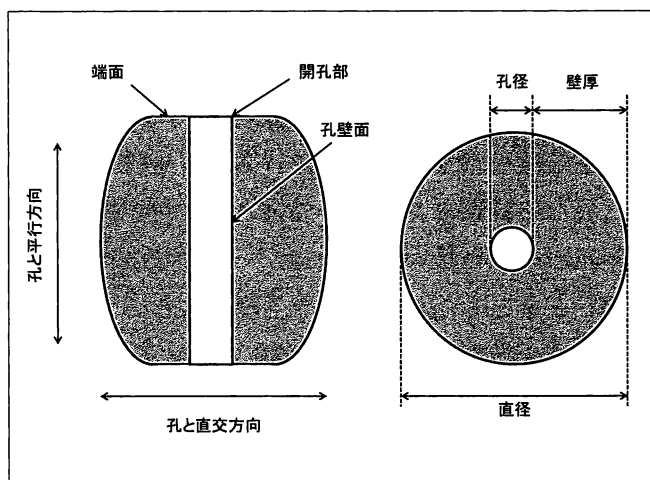


図3-2 ガラス小玉の各部名称

疇から外れるような、直径が6 mmを超える大型品が多い。色調は紺色透明のものにほぼ限られる。

1c 類は、一方の端面の角が丸みをもち、両端面が非対称となる特徴的な形状を呈する(図 3-7a~b, 図 3-8a~c)。丸みの強い端面側の開孔部周辺に気泡が集中していることが多い(図 3-7d)。孔壁面がやや荒れているものも存在する。両端面を貫く気泡筋が認められ、風化の進行した資料には端面に孔と同心円状の蝕像が生じている(図 3-8e)。これらの点は1b 類と共通する。紺色透明のものが最も多いが、緑色透明や紫褐色透明など、1a 類および1b 類には一般的でない色調が多い。黄色不透明、黄緑色不透明など、1a 類と共通の色調のものもある。

2 類 外形は、丸みが非常に強く、孔の開孔部周辺に破断面が残る¹⁾(図 3-9~図 3-11)。破断面周辺には針金で縛ったような皺状の痕跡をもつものが多い(図 3-9a)。開孔部からガラス玉表面の曲線に沿って放射状に伸長したレンズ状の気泡が認められる(図 3-9b-2)。レンズ状の気泡が孔と平行に伸びる個体と、斜交する個体がある(図 3-9a, 図 3-10b-2)。孔の形状は、外形の丸みに沿って湾曲することが多い。2 類のガラス小玉には、単層のものと二層構造になっているものがあり、前者を2a 類、後者を2b 類とした。

2a 類には、直径が1 cm 前後の大型品(図 3-9)と、3 mm 前後の小型品(図 3-10)がある。大型品には紺色透明のものが最も多く、その他に濃青色透明、淡緑色透明などがある。小型品は青色透明のものがほとんどである。

2b 類は、二層構造をもつ特殊例である(図 3-11)。内側と外側のガラスの間に空間が存在し、内側のガラスに金属箔を被せる場合がある。金属箔には、金または銀が用いられる。箔を挟まないものは、外側に気泡が少なく透明感の高いガラス、内側に気泡の多いガラスを用いることで、箔を挟んだものと類似の視覚的効果を得たと考えられる²⁾(図 3-11b-2)。いわゆる「重層ガラス玉」(大賀 2002)や「ゴールドサンドウィッチガラス」(福島 1985)、「金層ガラス玉」(高橋 1992)などと呼ばれるガラス小玉である。色調は、無色透明~半透明、または黄褐色透明である。

3 類 外形は丸みが強い。孔の開孔部の形状が両端面で大きく異なるのが特徴であり、一方の端面が歪な形を呈するのに対し、他方は比較的整っている。ここでは便宜上、歪な面を上面、比較的整った面を下面と呼ぶ。側面の形状が下面近くでやや屈曲するものがある。上面の開孔部には、向かい合う2箇所には皺状の窪みが認められる。気泡の配列方向は一定でなく、側面では外形に沿って孔と平行に並ぶ傾向が認められる(図 3-12a)。ただし、下面の開孔部周辺については、気泡の並び方が上面とは異なり、孔を取り巻くように細長く伸びた気泡が認められる場合もある。直径が6 mmを超える大型品がほとんどである。側面の向かい合う2箇所にガラスが軟化した状態で、何らかの物体に触れたような痕跡のある個体が多い(図 3-12b-1)。色調は、紺色透明が大半であるが、濃青

色透明もわずかに存在する。紺色のものは、気泡が少なく透明感が高い。

4類 両端面の形態に明瞭な差異が存在し、一方の端面の開孔部が大きく、歪であるのに対し、他方の端面の開孔部は小さく、丸い整った形を呈する（図 3-13）。3類と同様に、前者を上面、後者を下面と呼ぶ。上面は、やや突出する部分が存在する一方で、向かい合う2箇所には皺状の窪みが認められる。気泡は孔に直交して³⁾ 直線状に並ぶことが多いが、孔の周辺では孔を避けるように気泡列が湾曲している（図 3-13c-2）。下面の開孔部周辺では孔を取り巻くように気泡が伸長する（図 3-13c-3）。隅丸方形の例が多いのも特徴である。扁平なものと、やや厚みがあり算盤玉状を呈するものがある。やや厚みのある個体には、上面の孔から下面に向かって放射状に気泡が並ぶものもある（図 3-13b）。側面にガラスが軟化した状態で、何らかの物体が触れたような痕跡をもつ個体が存在する（図 3-13d）。上述の3類と類似する特徴が多い。ただし、3類が丸みの強い球形であるのに対し、このタイプは扁平であり、外形が異なる。色調には、紺色透明と青色透明がある。

5類 扁平な環状を呈する（図 3-14）。外径に対して孔径が非常に大きい。気泡は孔を取り巻くように並ぶ。大きな気泡は、孔を取り巻くように細長く伸びる。また、両端面には破断面が残る。連珠状に連なるものも存在するが、いずれかが破損していて完全な連珠になっている例はない。色調は紺色透明に限られる。

6類 外形は丸みが強い。10 mm 前後の大きなガラス玉である。孔に直交する方向に複数の明瞭な境界が認められる。孔と平行に並ぶ気泡列が認められることもあるが、これらの境界を越えては連続せず（図 3-15）、境界を超えると色調がやや異なる。色調は全体として紺色を呈するものが多い。

7類 大小の気泡が不規則に散在し、孔壁面や開孔部に凹凸が多い（図 3-16）。不規則な色むらが認められ、色むらには境界が不明瞭なものと、境界が明瞭なブロック状のものがある。多くの場合、外面にガラスが付着した突起があり、こうした突起は一方の端面側に集中することが多い。直径は、2～3 mm の微細なものから、6 mm 前後の比較的大きなものもある。全体として青色～紺色を呈する例が多いが、色むらが著しい。黄色不透明、黄緑色不透明、黒色不透明などの色調もあり、これらは色むらが比較的少ない。

その他 上記以外にも棗玉や四角柱玉、六角柱玉、涙形を呈する玉など、特殊な形態のアルカリ珪酸塩ガラス小玉を少数確認した（図 3-17）。それら少数の事例についてはとくに分類単位を設けず、必要に応じて個別に論じる。

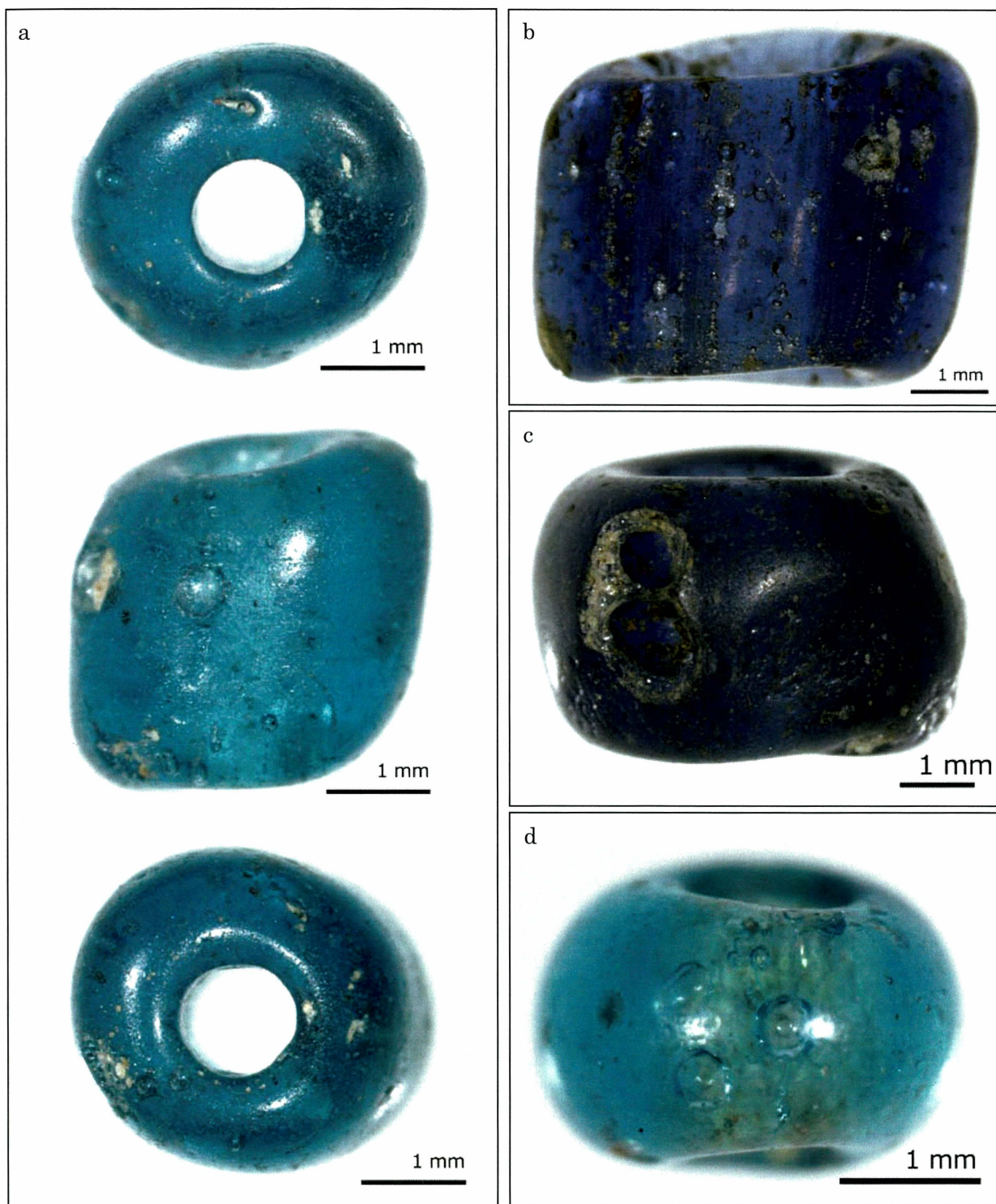


図 3-3 1a 類の諸例①

a : 上狛天竺堂 1 号墳（京都府木津川市） b : 田端西台通遺跡（東京都北区），
c : 東谷 15 号方形周溝墓（千葉県木更津市）， d : 円山古墳（滋賀県野洲市）

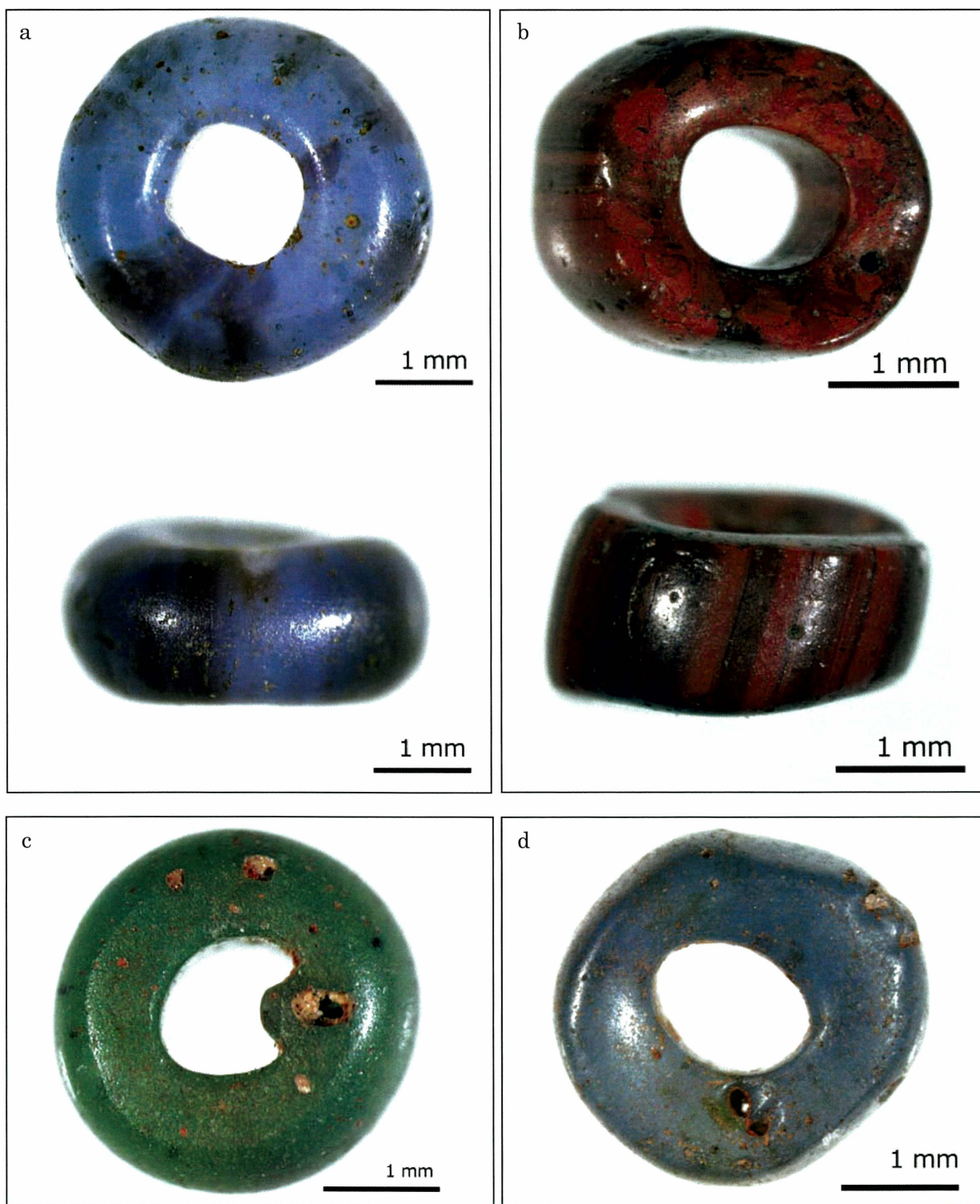


図 3-4 1a 類の諸例②

a : 宮の前 1 号箱式石棺墓 (福岡県福岡市), b : 八幡小学校遺跡 8 号墓 (大分県玖珠町)

c : 宮の前 1 号箱式石棺墓 (福岡県福岡市), d : 八幡小学校遺跡 8 号墓 (大分県玖珠町)

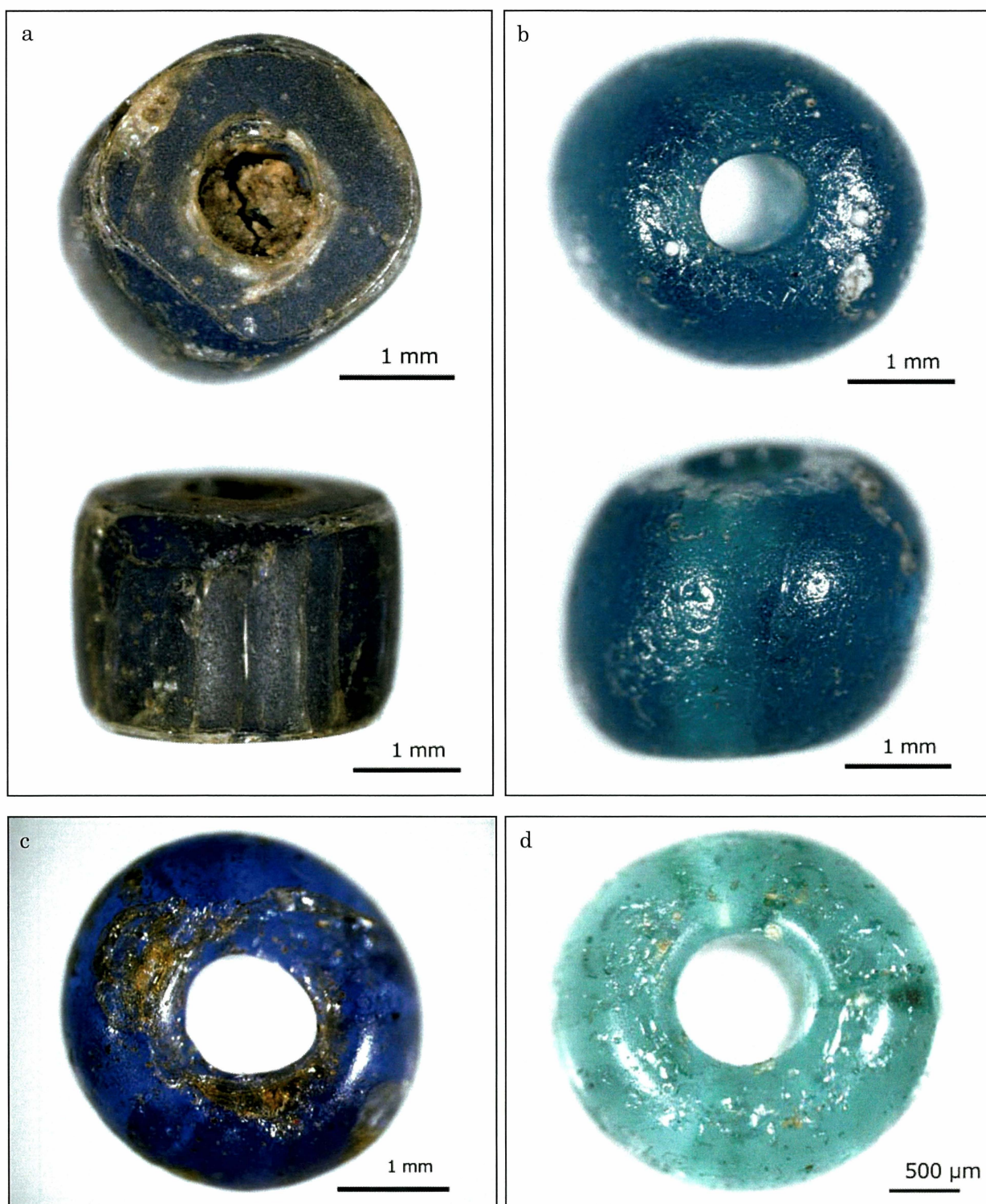


図 3-5 1a 類の諸例③

a : 塩鶴 2 号甕棺墓 (佐賀県唐津市), b : 見野古墳 6 号東石室 (兵庫県姫路市), c : 宮の前 1 号箱式石棺墓
d : 見野古墳 6 号東石室 (兵庫県姫路市)

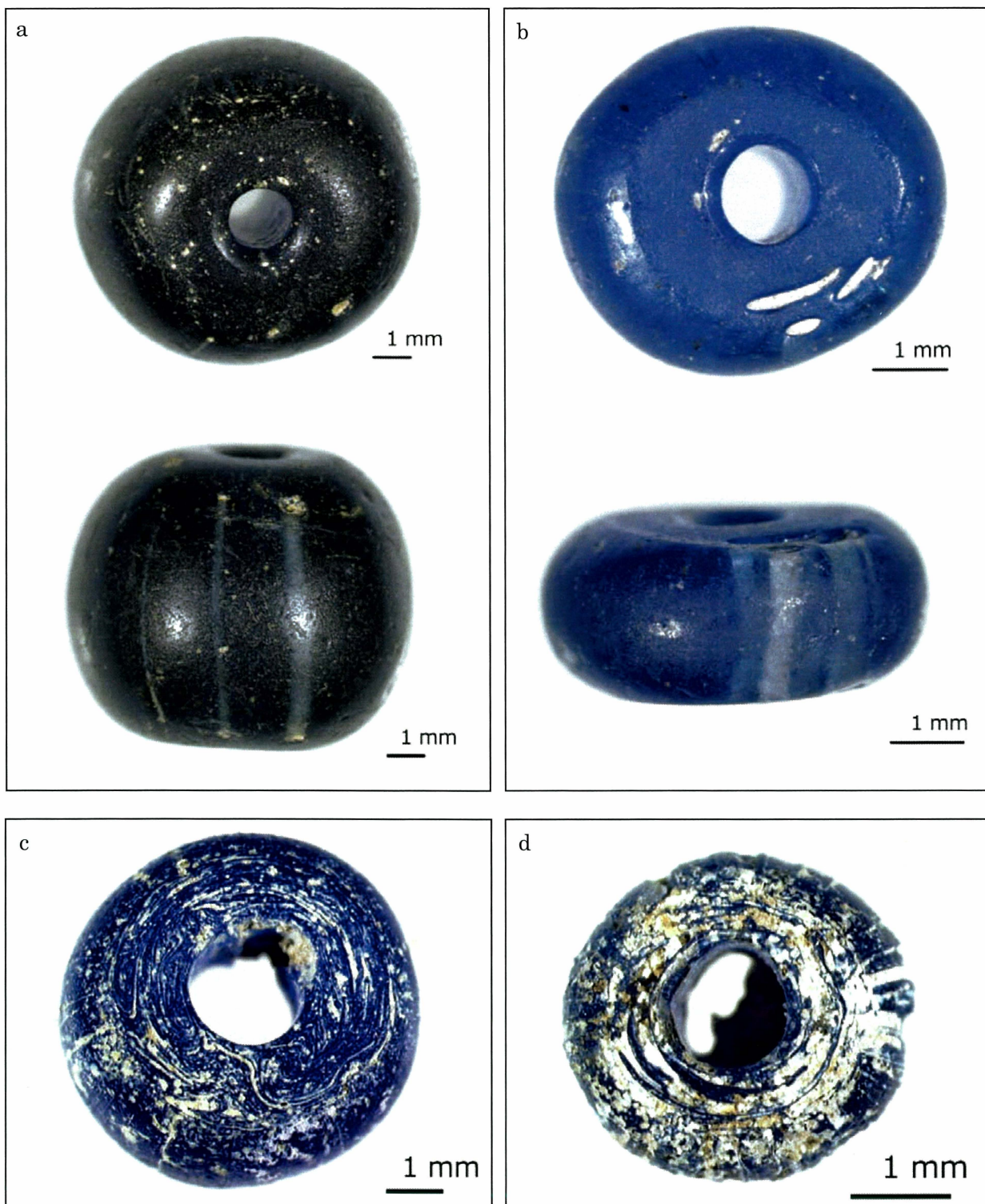


図 3-6 1b 類の諸例

a : 飛山 1 号墳 (福岡県福岡市), b : 見野古墳 6 号東石室 (兵庫県姫路市), c~d : 山脇 2 号横穴墓 (静岡県掛川市)



図 3-7 1c 類の諸例①

a : 半田山G支群 8-KF03 (静岡県浜松市), b : 東大寺金堂 (奈良県奈良市)

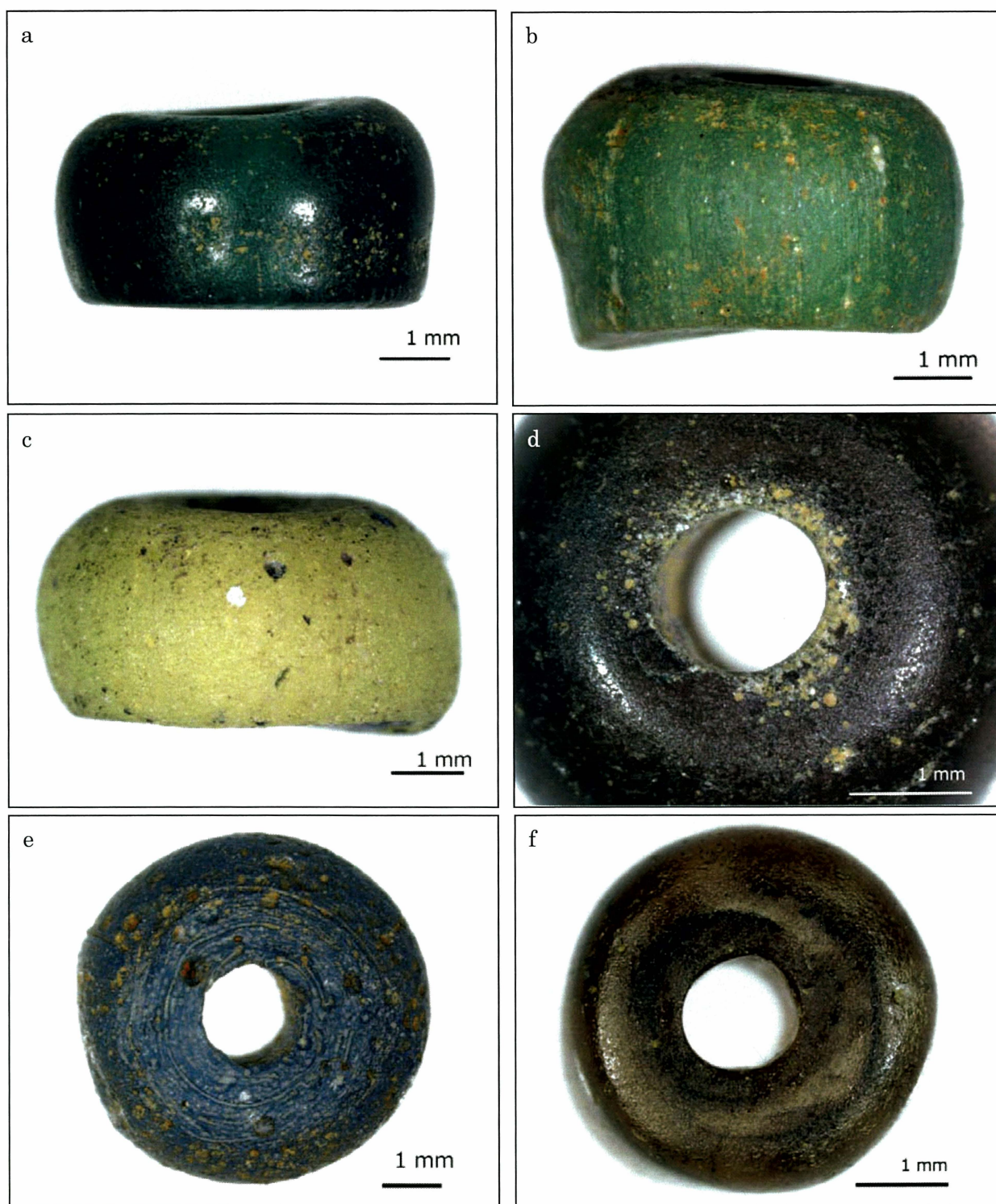


図 3-8 1c 類の諸例②

a～b：半田山G支群8－KF03（静岡県浜松市），c：飛鳥寺塔芯礎（奈良県明日香村），
d：半田山G支群8－KF03（静岡県浜松市），e：田端西台通 SK75 土坑（東京都北区），
f：半田山G支群8－KF03（静岡県浜松市）

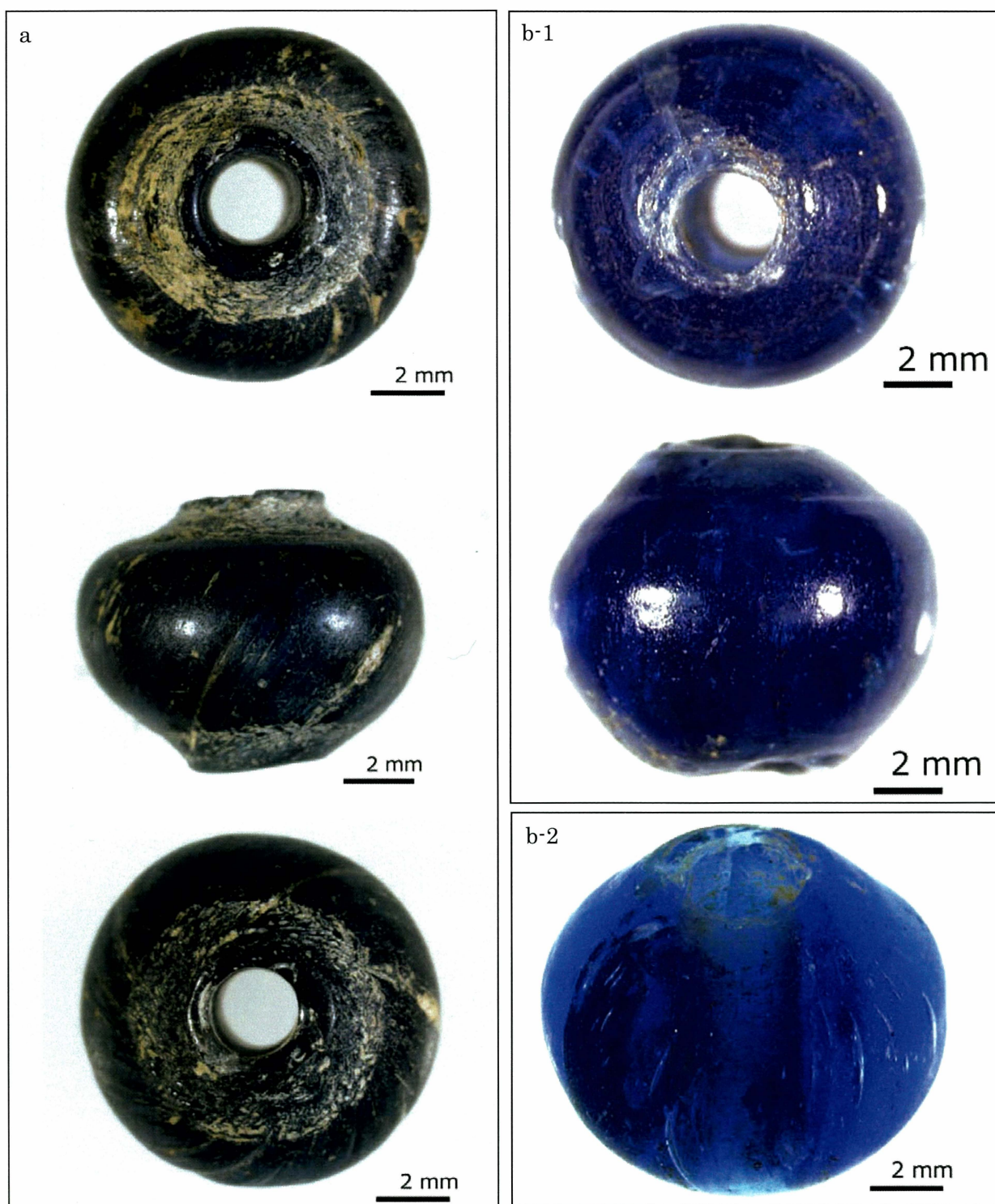


図 3-9 2a 類の諸例（大型品）

a：宝満尾古墳（福岡県福岡市），

b-1～b-2：風吹山古墳（大阪府岸和田市），b-2 は b-1 を透過光下で撮影したもの

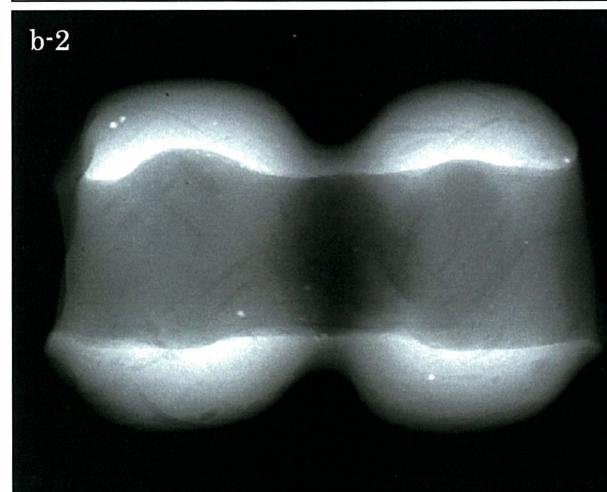
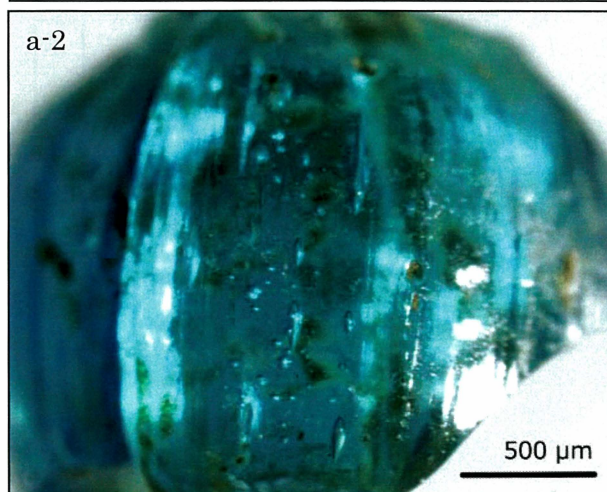
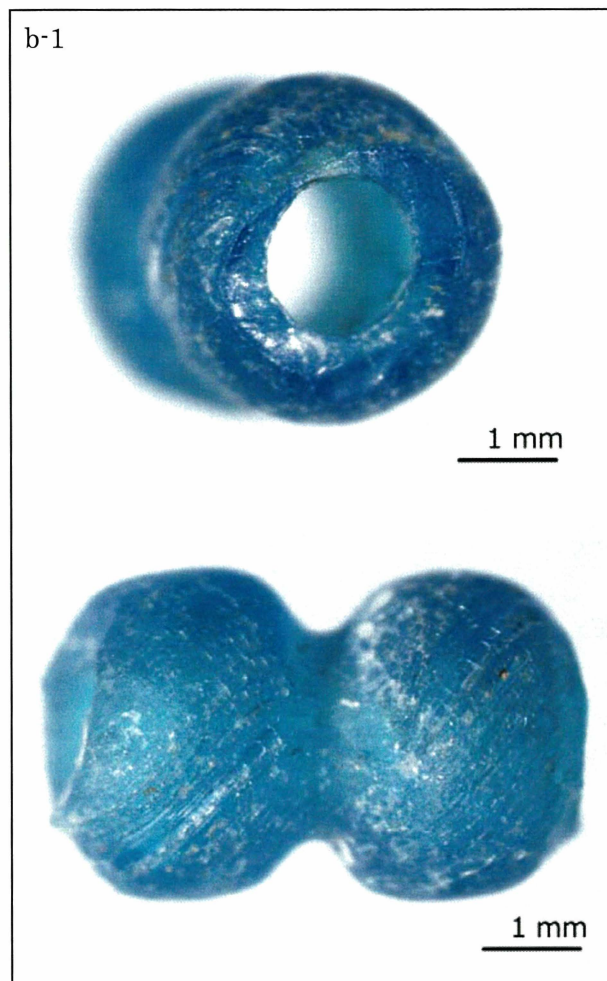
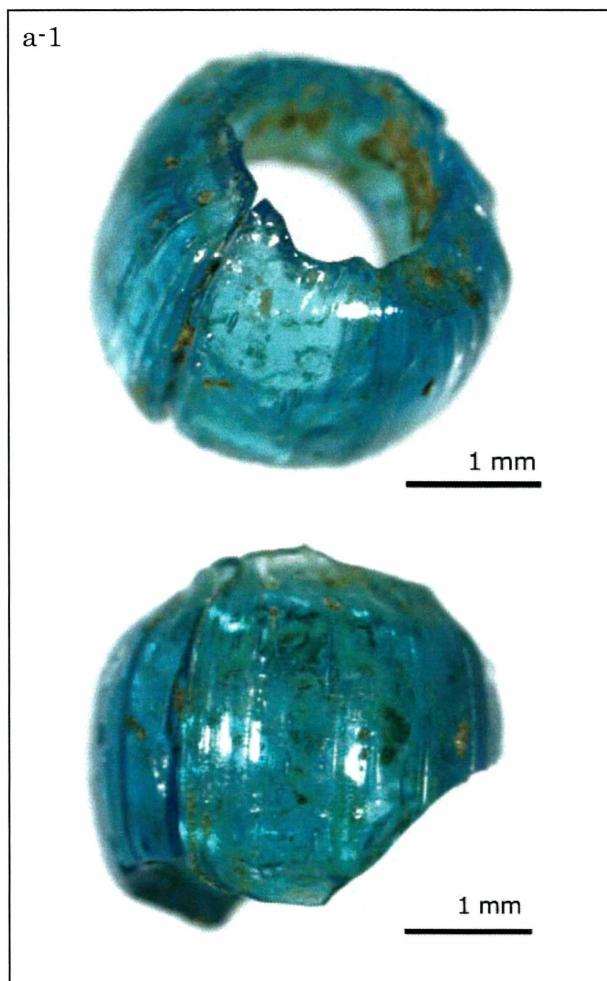


図 3-10 2a 類の諸例（小型品）

a-1～a-2：塩鶴 2 号甕棺墓（佐賀県唐津市），

b-1：藤崎（第 3 次） 3 号方形周溝墓（福岡県福岡市），b-2：b-1 の CR 画像

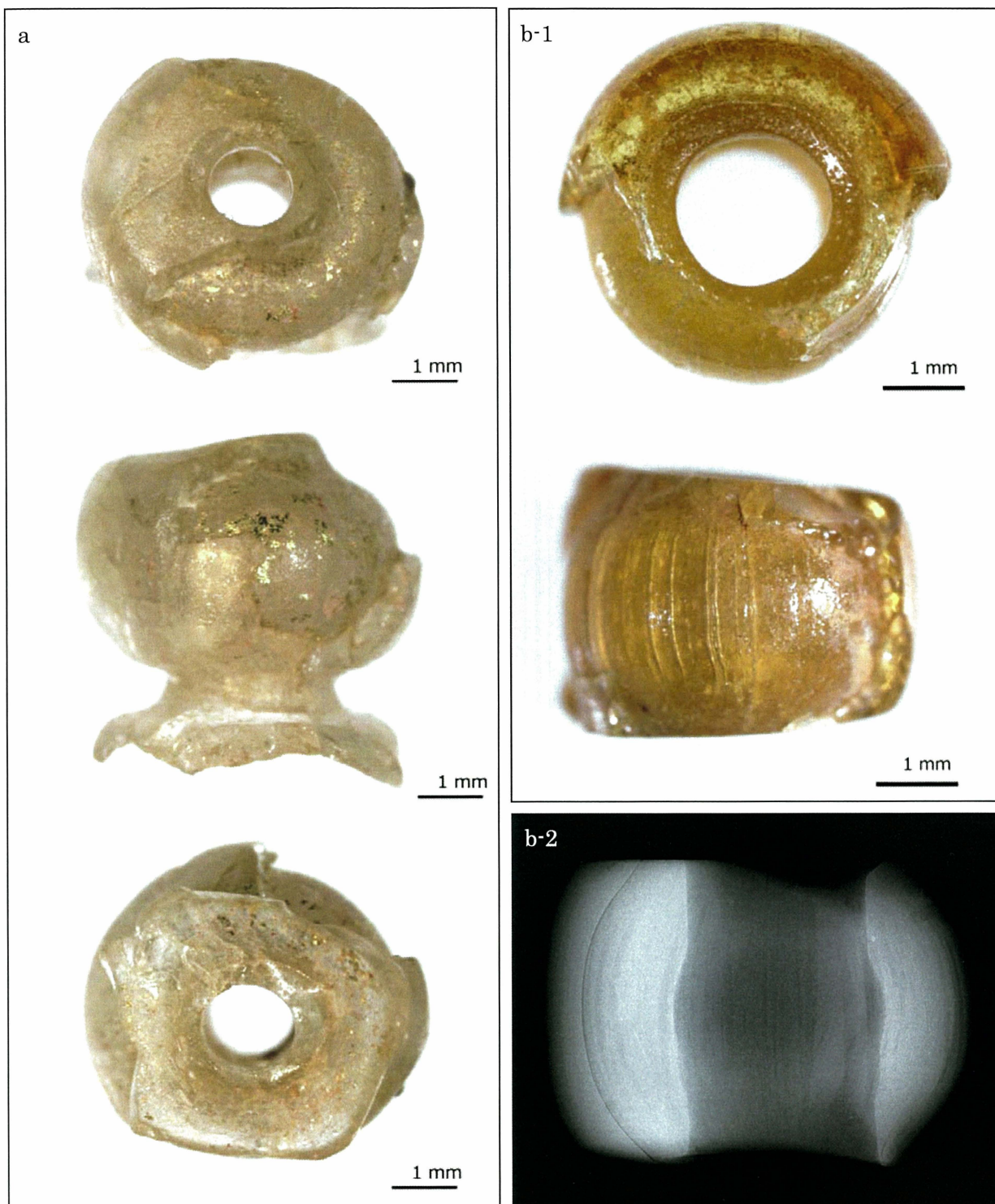


図 3-11 2b 類の諸例

a : 宇津久志 1 号墳（京都府長岡京市）

b-1 : 半田山 G 支群 8 - KF07（静岡県浜松市），b-2 : b-1 の CR 画像

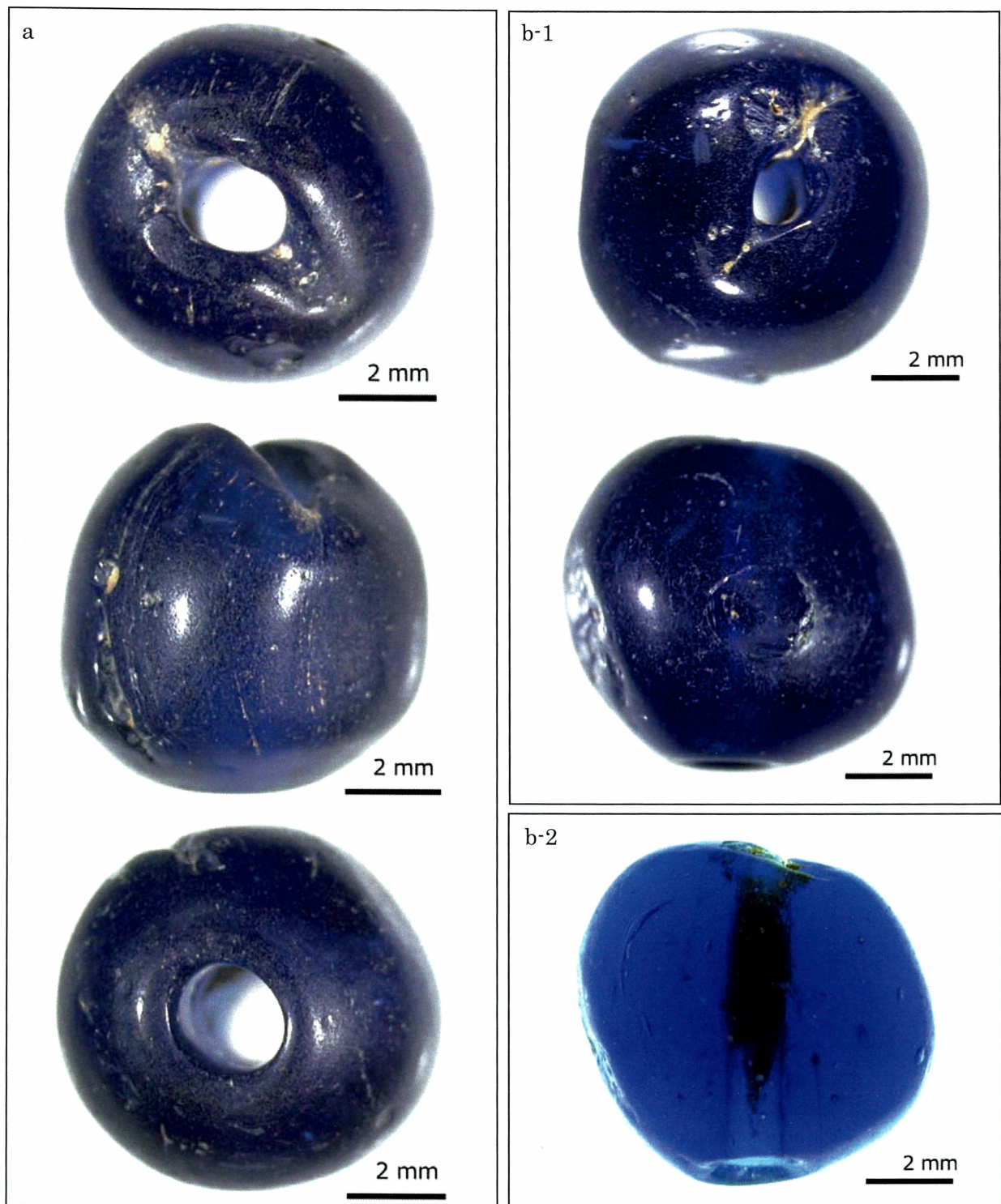


図 3-12 3 類の諸例

a～b-2：風吹山古墳（大阪府岸和田市），b-2 は b-1 を透過光下で撮影したもの

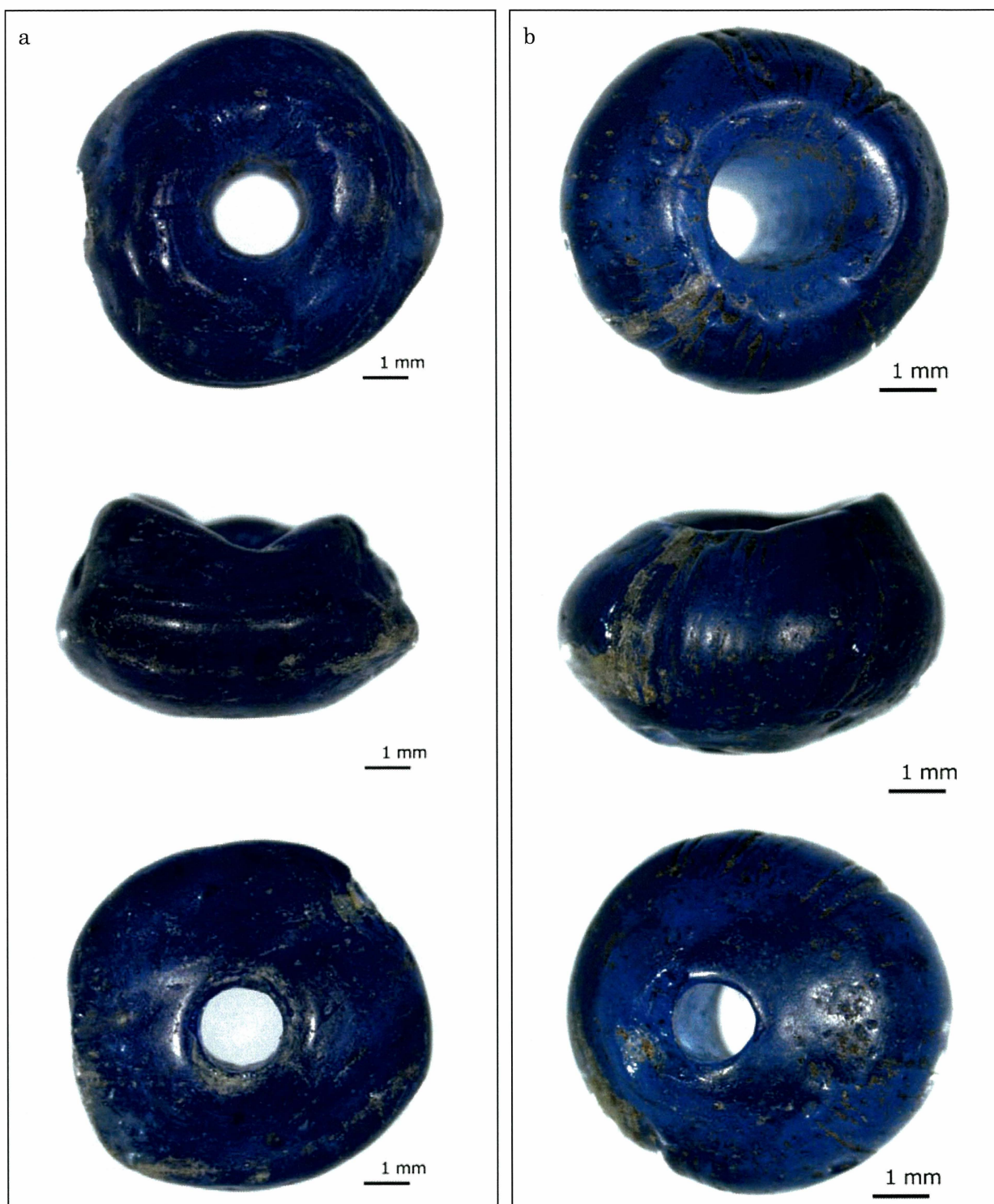


図 3-13 4類の諸例①

a : 東谷 16 号方形周溝墓 (千葉県木更津市), b : 東谷 45 号方形周溝墓 (千葉県木更津市)

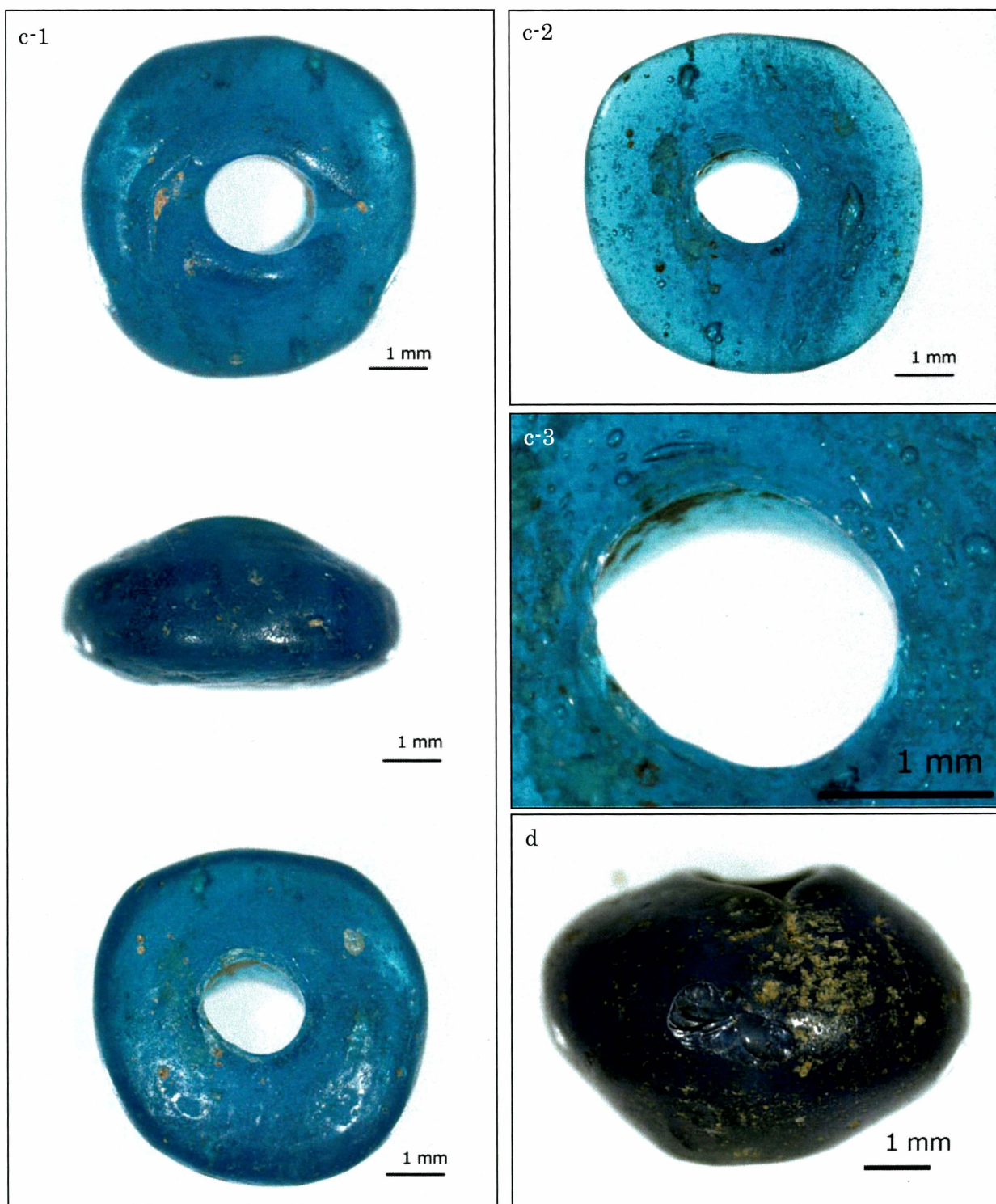


図 3-13 4 類の諸例②

c-1～c-3：尾ノ上古墳（広島県福山市），c-2 は c-1 を透過光で撮影したもの，c-3 は c-2 の開孔部周辺の拡大画像。

d：東大寺金堂（奈良県明日香村）

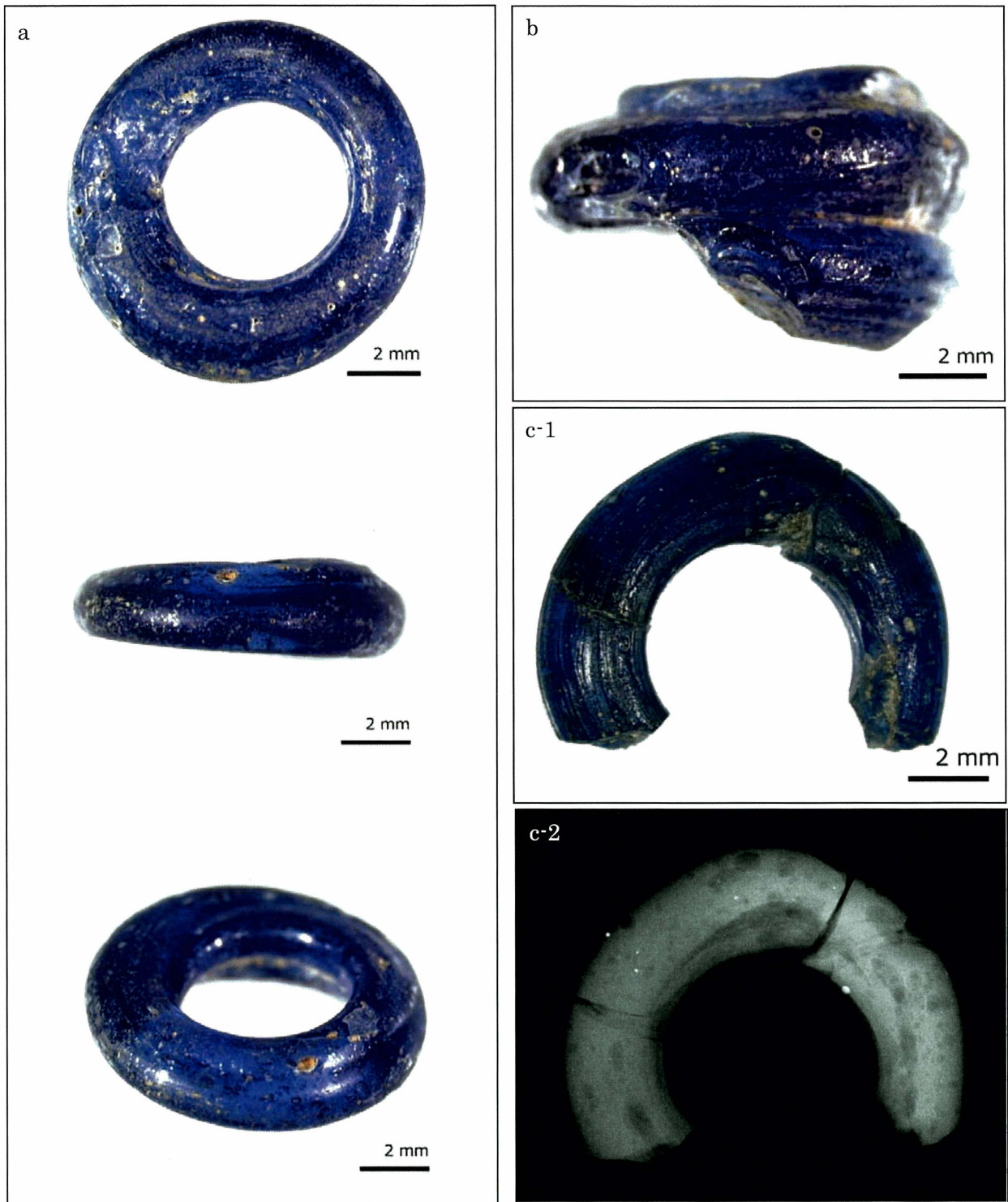


図 3-14 5 類の諸例

a～b：風吹山古墳（大阪府岸和田市）

c-1～c-2：宇津久志 1 号墳（京都府長岡京市）、c-2 は c-1 の CR 画像。

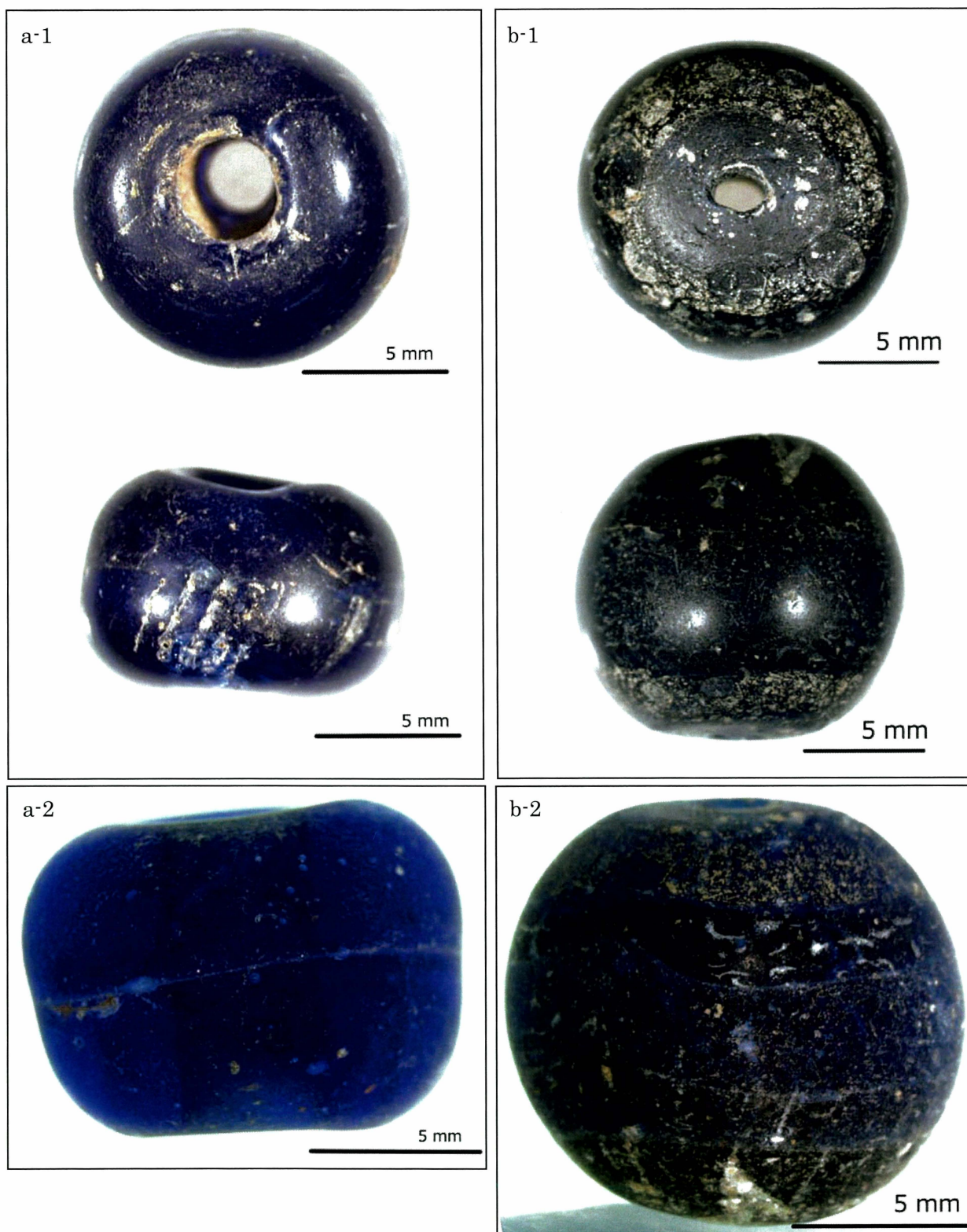


図 3-15 6類の諸例

a-1～a-2：風吹山古墳（大阪府岸和田市），a-2はa-1を透過光下で撮影したもの。

b-1～b-2：本村 A4 号横穴墓（静岡県掛川市），b-2はb-1を透過光下で撮影したもの。

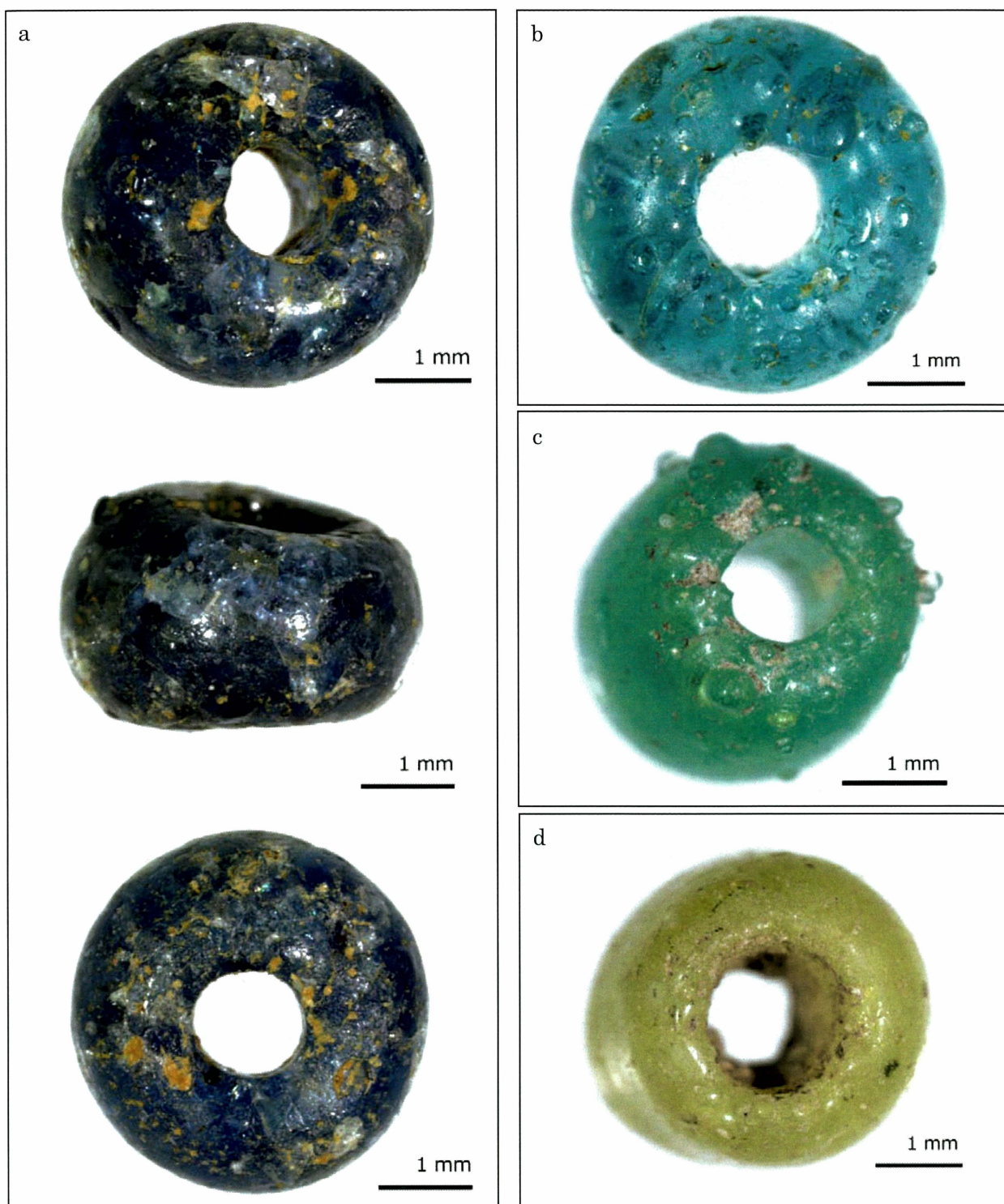


図 3-16 7 類の諸例

a～b：半田山G支群 8－KF03（静岡県浜松市），c～d：大塚山古墳（滋賀県野洲市）

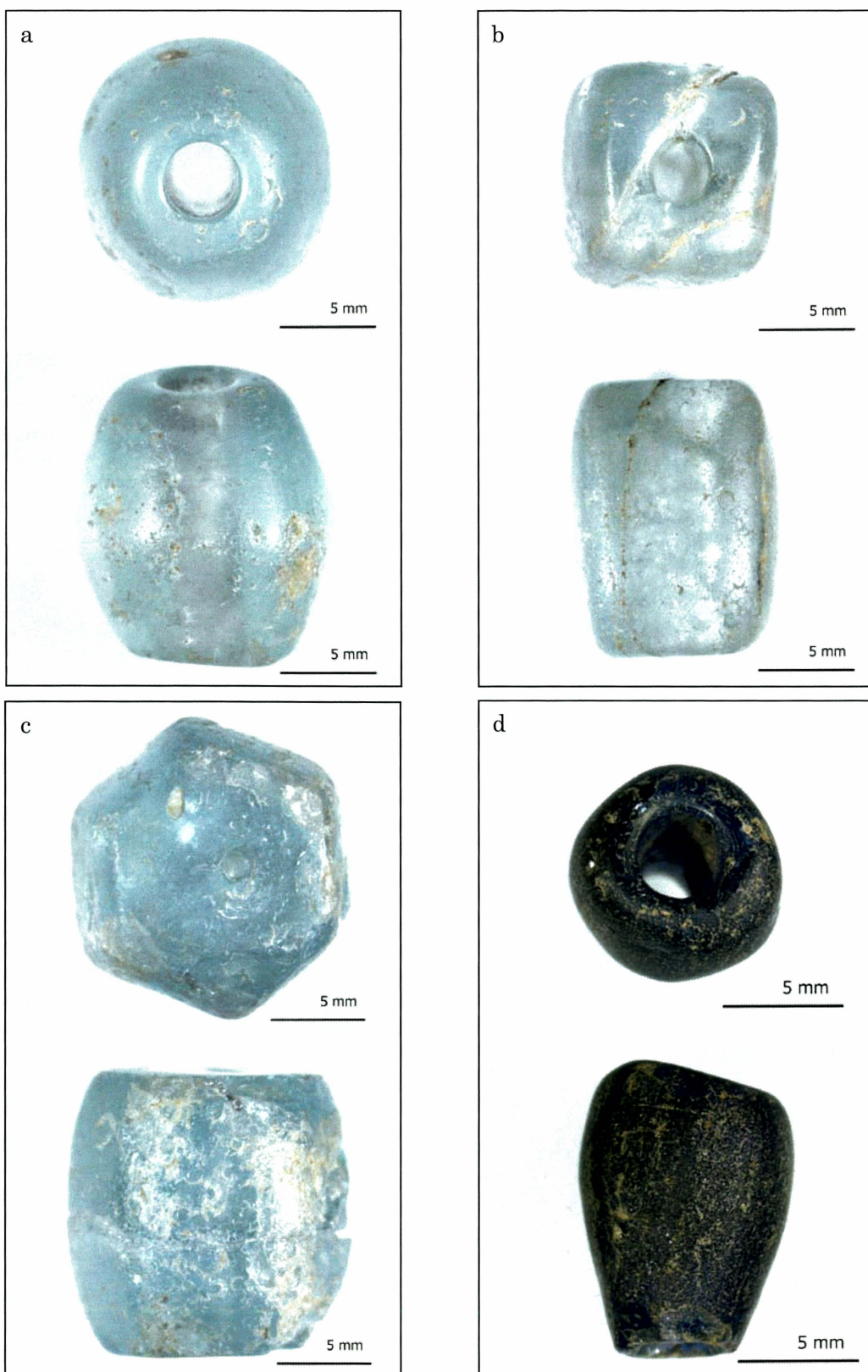


図 3-17 その他のガラス小玉

a : 棗玉 (三苦 B8 号墳 (福岡県福岡市)), b : 四角柱玉 (同左), c : 六角柱玉 (同左)

d : 涙形 (柏原 C-6 号墳 (福岡県福岡市))

3-2-2 製作技法の推定

上述した形態的特徴から、各類型の製作技法を推定する。なお、ガラス小玉の製作技法については、これまでも詳細な分類が提示されているので「(大賀 2002, 福島 2006 など)、先行研究との対応関係を表 3-1 に示す。

形態的特徴から 1 類としたものは、孔壁面が平滑であることや、孔と平行方向に配列する気泡列や気泡筋が見られることから、軟化したガラスを引き伸ばしてガラス管を製作し、それを分割して小玉を作ったと推定できる。ガラス小玉の端面に破断面が残存するものは少なく、丸みを帯びている場合が多いことから、分割後に加熱整形したと考えられる。既往研究で「管切り法」(朝比奈・小田 1954 など)や「引き伸ばし法」(大賀 2002)と呼ばれる製作技法に相当する。本研究では、引き伸ばし法と呼び、これら引き伸ばし法で製作されたガラス小玉を 1a 類～1c 類に細分した。

引き伸ばし法によるガラス小玉の細分では、蝕像の差異が極めて重要な観点となる。ガラス管を切断して小玉を製作する場合、前段階としてまずガラス管を製作する工程が必要となる。吹き技法によるガラス管を使用してガラス小玉を成形する実験をおこなった小瀬康行(1987)は、薬品によって強制的に劣化させた試作品に、古墳から出土するガラス小玉と同じ蝕像ができることを確認した。このことから、古墳時代に流通した「管切り法」によるガラス小玉は、吹き技法によるガラス管を使用したと推定している。

小瀬は、ガラス小玉に認められる蝕像の特徴を「小口面の同心円状あるいは螺旋状⁴⁾に走る条痕」と「胴部に孔と平行方向に走る条痕」(小瀬 1987, p.83, ll.13～15)と表現する。また、とくに端面に同心円状の蝕像ができる理由については、吹き技法の場合は吹竿に軟化したガラスを何度も巻き付ける。この時できた質のぼらつきがガラスを膨らませる際にガラスの膨らむ方向に引き伸ばされる。さらに、吹竿と反対側をつまんで細長く引き伸ばしてガラス管を作成することにより、質のぼらつきがガラス管の断面に残るとしている。

吹き技法によるガラス管製作の模式図を図 3-18 に示す。何重にも巻いたガラスを吹いて膨らませることによって、層状になった質のぼらつきがガラス管の断面に残り、風化に伴って蝕像として現れたと考えられる。

一方、吹き技法を利用することなくガラス管を引き伸ばして小玉を製作する方法が、紀元前 3 世紀頃までには南インドにおいて成立したと考えられている。紀元前 1 世紀中頃～紀元前後とされる吹き技法の発明以前から流通したインド・パシフィックビーズは、特殊なラダ技法で製作されたと推定されている。この技法を紹介したフランシスの論考 (Fransis 1990) を参照して作成したガラス管製作を、図 3-19 に模式的に示す。ラダ技法では、この作業を特殊な炉 (図 3-20) の中でおこなう。ラダ技法の場合も、溶けたガラスを鉄管 (ラダ) に巻きとった可能性はあるが、膨らまさないため、吹き技法のよう

に質のばらつきが層状に薄くのばされることはない。

以上のことから、1a類と、1b類および1c類の形態的特徴の差異は、小玉製作用のガラス管の製作技法の差異によるものと認められる。1a類は、吹き技法以外の方法によって製作したガラス管を使用したものであり、典型的なインド・パシフィックビーズに相当することから、ラダ技法が有力な候補となる。日本列島に最初に流入するガラス小玉は1a類であり、流入時期は弥生前期末～中期初頭とされる（藤田 1994, 富樫・富沢 1995, 大賀 2002 など）。弥生時代前期～中期の実年代については議論が分かれるが、いずれの場合も吹き技法の成立（紀元前1世紀中頃～紀元前後）よりも古いことは、1a類が吹き技法を用いない方法で製作されたという推定と整合的である。1a類の製作技法を、引き伸ばし法(L)⁵⁾とする。

一方、1b類および1c類は、吹き技法によって製作したガラス管を用いたと考えられる。1b類は、大賀の論考（大賀 2002）でも、気泡筋が特徴的に認められる大型品が多い一群として認識され、このような特徴のガラス小玉は古墳時代中期後半以降に出現することが指摘されている。古墳時代中期後半は5世紀に相当し、すでに吹き技法が確立されている。1b類の製作技法を、引き伸ばし法(B)⁶⁾とする。

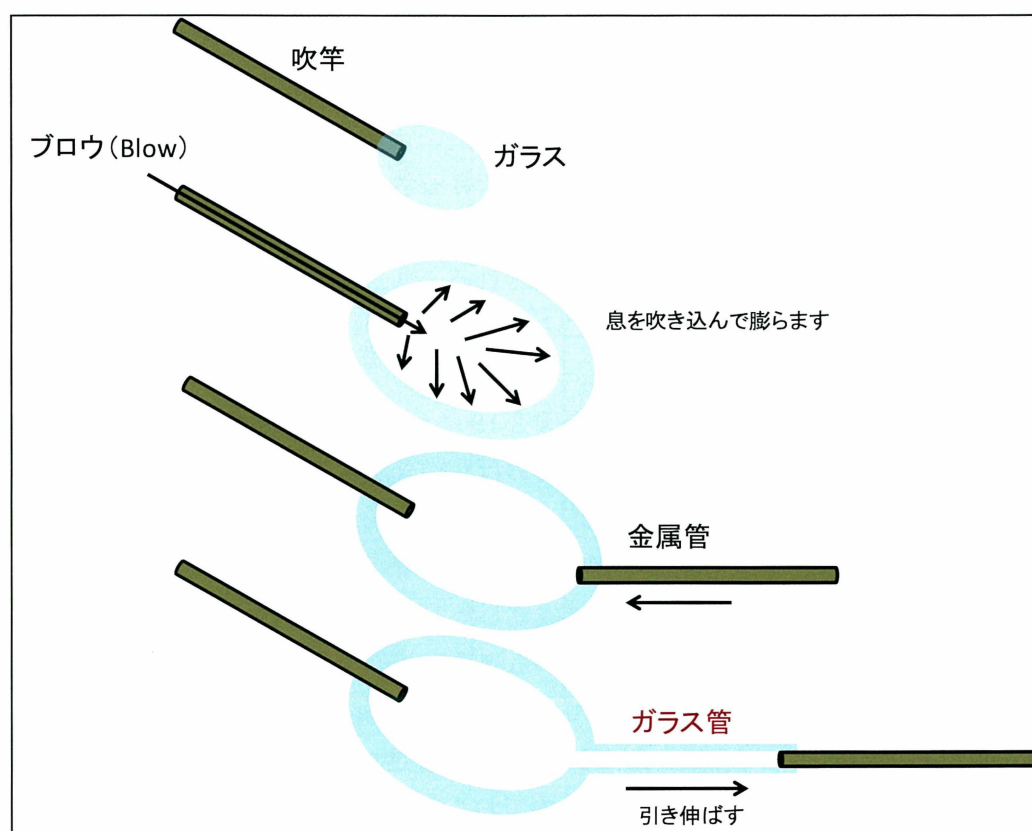


図 3-18 吹き技法によるガラス管の製作

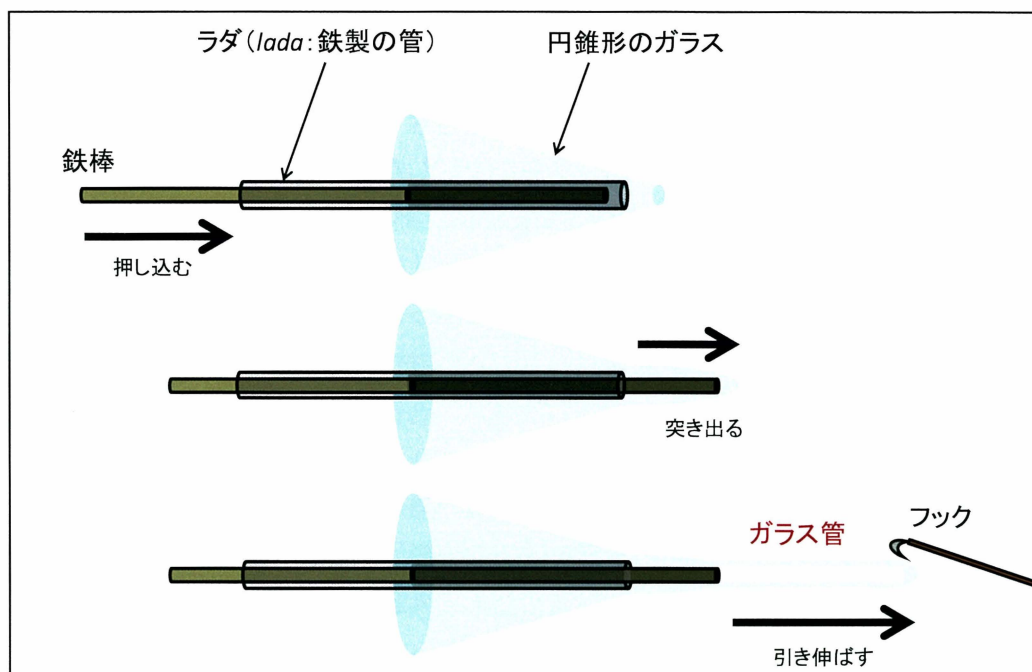


図 3-19 ラダ技法によるガラス管の製作

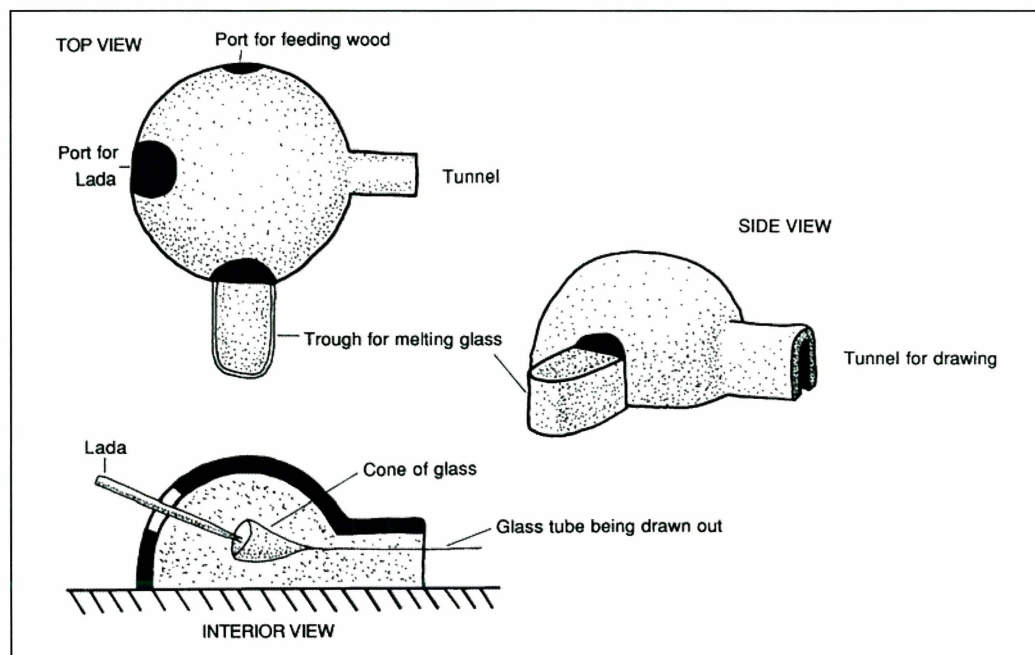


図 3-20 ラダ技法によるガラス管の製作に用いる特殊な炉 (Fransis 1990 より抜粋)

1c 類も、吹き技法で製作されたガラス管を利用したものである。このような形態的特徴をもつガラス小玉は古墳時代後期末（須恵器編年 TK209 期）に出現することが指摘されているため（大賀 2009）、吹き技法によるガラス管を利用したと推定しても矛盾はない。ただし、その特殊な形状から、ガラス管を分割したものを加熱整形する方法が、1b 類とは異なると考えられる。丸みの強い端面や開孔部周辺に気泡が集中することや、孔壁面がやや荒れていることから、浅いくぼみの上で孔に芯棒を通した状態で加熱された可能性もある。詳細な製作技法の復元には至らなかったものの、吹き技法で製作したガラス管を分割する方法の一種と言える。1c 類の製作技法を、引き伸ばし法(変 B)とする。

2 類としたものは、ガラス管を加熱してくびれを入れた後に分割して小玉を得る方法である。端面に破断面が残ることから、分割後は加熱整形されない。1 類との違いは、ガラス管を分割する前に加熱するか、分割後に加熱整形するかという点である。孔が潰れてしまわないように、芯棒を入れた状態でくびれを入れる。芯棒の直径がガラス管の孔径よりもかなり細い場合には、孔の形状が外形に沿って湾曲する。一方、芯棒の直径とガラス管の孔径にあまり差がない場合には、孔の形状は比較的直線的になる。くびれを入れる際に、気泡が引っ張られてレンズ状に伸びる。気泡が孔に対して斜交するものは、芯棒にガラスを巻き付けて製作した「巻き技法」に含める見解（福島 2006）もあるが、気泡が孔に直交することはないことから、くびれを入れる際にひねった痕跡と考える。先行研究で、「連玉法」（杉本 1988）や「連珠法」（大賀 2002）と呼ばれる方法に相当する。本研究では、単層の 2a 類の製作技法を、連珠法と呼ぶ。

2b 類は二層構造をもつものである。これらは、径の異なる大小のガラス管を被せ、加熱して熔着し、くびれを入れた後に、切断・研磨して製作したものと推定される（図 3-21）。金属箔は内面のガラス管に付着していることから、金属箔を挟む場合は、内側のガラス管に金属箔を被せる。2b 類の製作技法を、重層連珠法と呼び、2b 類のガラス小玉をとくに重層ガラス小玉と呼ぶ。

これら 2 類についても、小玉の製作に用いたガラス管をどのような方法で作ったかが問題となる。しかし、2 類はガラス管にくびれを入れて分割するため、端面に相当する領域が非常にせまく潰れてい

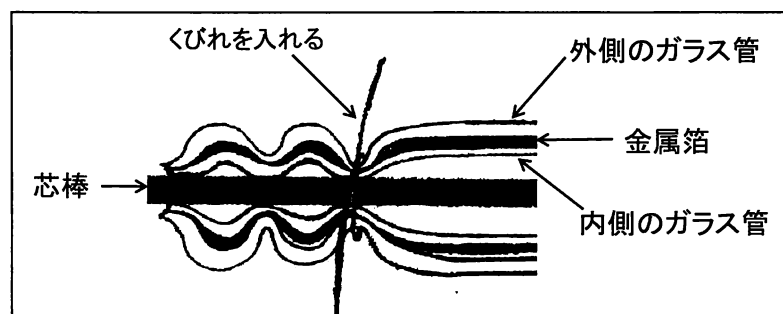


図 3-21 2b 類の製作技法の推定

（Jönsson and Hunner 1995 を参考に筆者作成）

る。そのため、気泡の断面形態や蝕像を観察することができず、ガラス管の製作方法の推定には至らなかった。

3類は、軟化したガラス片に芯棒を鉛直方向に挿し、芯棒をガラスで包み巻いて成形する方法と推定した（図 3-22）。下面が比較的滑らかな曲面をもつことや、側面の曲線が下面近くでやや屈曲することから、下面部分を浅いくぼみに押しつけながら成形したと考えられる。側面に見られる、ガラスが軟化した状態で何らかの物体に触れたような痕跡は、芯棒をガラスで包み巻く際に横方向からつまんだ痕跡の可能性もある。気泡の並ぶ方向は、素材として利用するガラス片の気泡の並び方に依存する。ガラス素材の気泡列に直交して芯棒を刺した場合、下端面は孔と直交方向に気泡が並び、側面は孔と平行方向に外形の曲面に沿って並ぶ。これらは、3類のガラス小玉の観察結果とも矛盾しない。下面の開孔部周辺の気泡が孔を取り巻くように伸長するのは、芯棒を回転させながら引き抜いたためである。

3類の製作技法を推定するうえで注目すべき資料が存在する。ベトナムのオケオ（Oc-Eo）遺跡から出土したガラス小玉（マルレ・コレクション）である。これを詳細に観察した平野裕子は、型当てで成形したガラス小玉と推定した（平野 2010）（図 3-23）。このガラス小玉は、一方の開孔部の向かい合う2箇所に皺状の切れ込みがあることや、もう一方の開孔部は比較的整った円形をしている点など、3類のガラス小玉と共通点が多い。模様の配置を見ると、下面では縞状の模様が孔と直交して走るのに対し、側面では

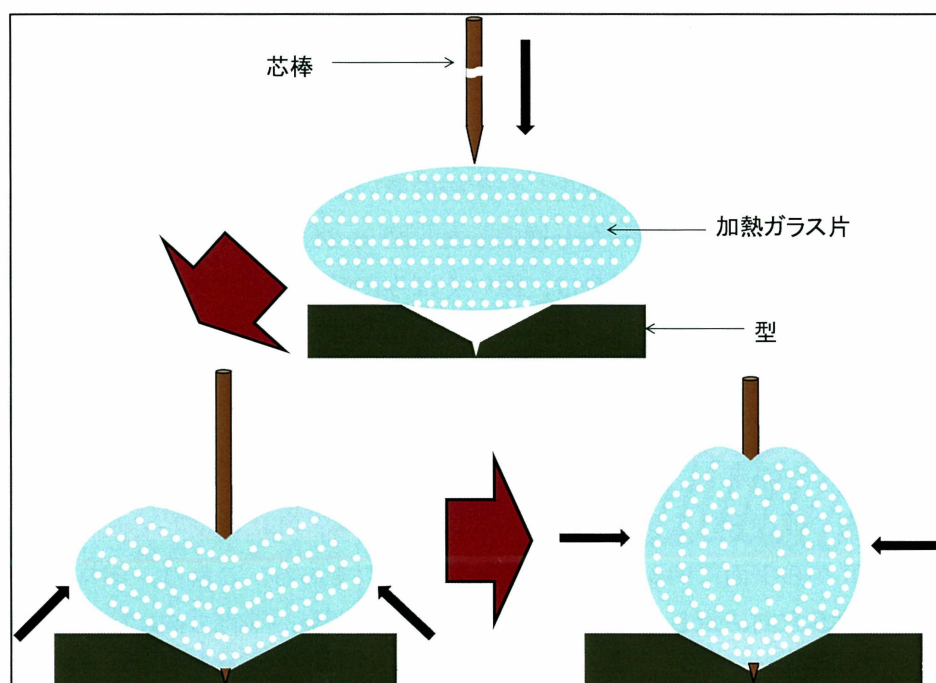


図 3-22 3類の製作技法の推定

下から上へ外形の曲面に沿って立ち上がっている。平野は、「管切り法」で製作したガラス玉を断面半円形の型に当てて成形したとするが、模様が1方向に平行に並ぶガラス片を軟化させ、型に当てながら模様に対して直交方向に芯棒を刺したのち、芯棒をガラスで包み巻いて成形したと考えられる。また、平野は、開孔部の切れ込みについて、徐冷時に芯棒を運動させたため、孔が断裂したとしているが、模様の配列から見ると、芯棒を包み巻いた際に両側のガラスが熔着した痕跡である可能性が高い。このオケオ出土のガラス小玉は、模様が入っていることで、製作工程が明確に示される点が重要であり、日本列島で出土する3類のガラス小玉と共通の製作技法によるものと言える。

3類の製作技法は、大賀が「軟化したガラスの小片を軸上で包み巻いた」(大賀 2002, p.136, ll.19-20)と推定し、「巻き付け法」と呼称している製作技法に相当する。一方、大賀(2002)は、軟化した紐状のガラスを芯棒に巻き付ける方法も巻き付け法と呼んでいる。両者は明らかに異なる製作技法のため、同一の名称を用いるのは適切でない。ここでは、型に押し当てながら芯棒を包み巻く工程を重視して、型当て包み巻き法と呼ぶ。

4類については、浅いくぼみに軟化した比較的薄いガラス片を押し当てながら、芯棒を鉛直方向に刺して孔を作り出したと推定した(図 3-24)。これは、3類と近縁な関係にある製作技法である。3類の場合は、深いくぼみに厚手のガラス片を押し当てながら芯棒を刺した後、芯棒を包み巻くように全体の形状を丸く整えているのに対し、4類は芯棒を刺して引き抜くという工程のみからなる。芯棒を回転させながら引き抜くために下面の孔周辺は気泡が孔を取り巻くように伸長する。隅丸方形のものは、素材ガラス片が方形であったことを示す。

4類は、気泡の並び方に大きく二通りある。すなわち、孔に直交して直線状に並ぶものと、上面の孔から下面に向かって放射状に並ぶものである。これは、素材としたガラス片の気泡の並ぶ方向に対して、芯棒を直交方向に刺すか、平行方向に刺すかによると推察される。大賀(2002)が「加熱貫入法」と呼んだ製作技法であり、ここでは型当て貫入法と呼ぶ。



図 3-23 オケオ遺跡出土ガラス小玉
(平野 2010 より抜粋)

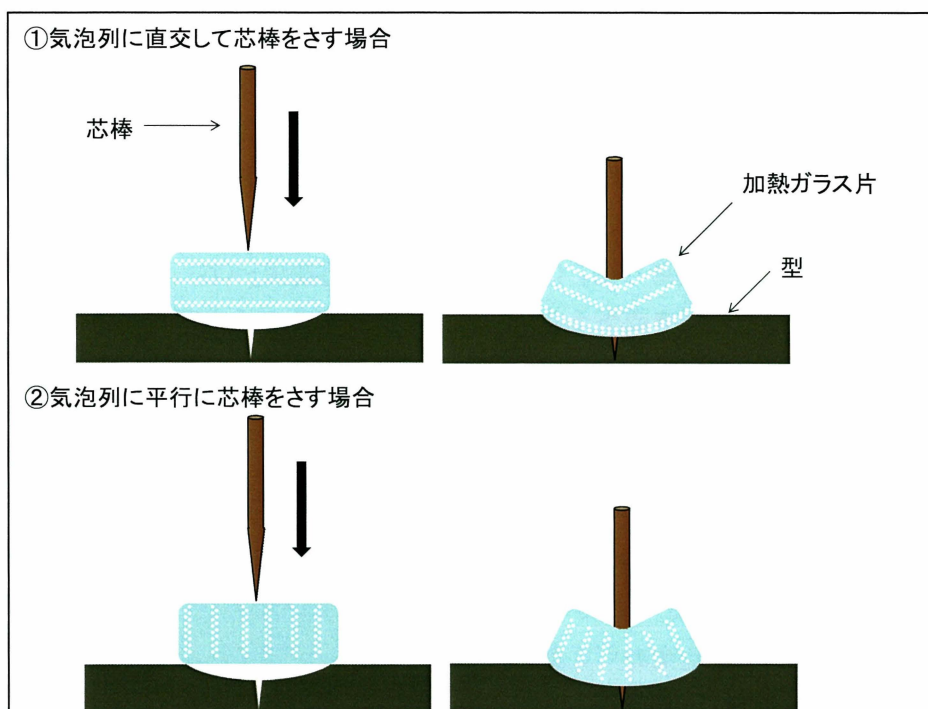


図 3-24 4 類の製作技法の推定

5 類は、軟化した細いガラスを芯棒にコイル状に巻きつける方法で製作したと推定できる (図 3-25)。この方法は、芯棒に軟化したガラスを巻き付ける点で、鉛珪酸塩ガラスに一般的な「巻き付け法」(大賀 2002) と類似する。しかし、鉛珪酸塩ガラスに適用される巻き付け法が、比較的細い芯棒に軟化したガラスを何度も巻き付けて、丸みの強い小玉を 1 点ずつ製作するのに対し、比較的太い芯棒に紐状のガラスを緊密なコイル状に巻きつけた後、冷却状態で分割することにより小玉を製作したとみられる。紐状のガラスを 1～2 回巻きつけたものが小玉 1 個分となる。ここでは、一般的な巻き付け法と区別して、環状巻き付け法と呼ぶ。

6 類は、比較的大きな複数のガラス片を加熱して互いに熔着して 1 個の玉としたものである。ガラス片を 2 片熔着したものの中には、境界面で孔が屈曲する個体がある。このことから、単なるガラス片を熔着した後に孔

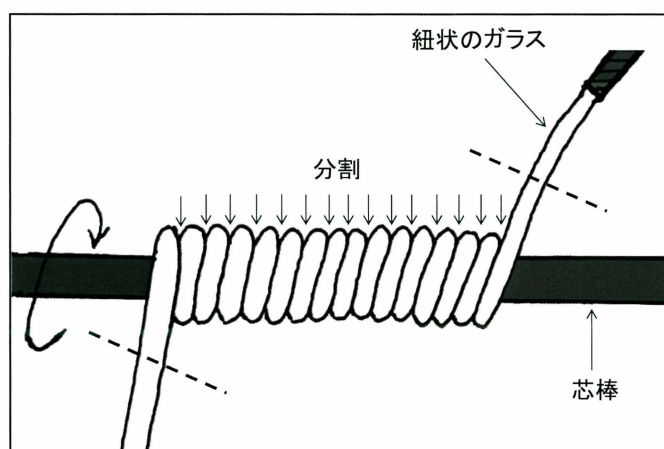


図 3-25 5 類の製作方法の推定

を作り出したのではなく、もともと孔の開いていたガラス玉を素材として利用した可能性がある。ここでは、熔着法と呼ぶ。

7類は、多量の微細なガラス片を熔着して製作したものである。朝鮮半島や日本列島で出土する「ガラス小玉鋳型」(清水 1992),「小玉製作用鋳型」(川越 1993),「たこ焼き型鋳型」(肥塚 2002, 田中 2007) などと呼ばれる鋳型(図 3-26)を用いて製作する方法である。これまでは,「型造り法」(山内 1991),「鋳造技法」(谷一 1999),「鋳型法」(大賀 2002) などと呼ばれてきた。

一般に,「鋳型」を用いる「鋳造」は,熔融して液体状になった物質を鋳型に流し込んで製作する方法(Casting)(図 3-27)をさす。ガラス勾玉を製作する方法はこの方法である(大賀 2010)。一方, 7類のガラス小玉は, 芯棒を立てた鋳型の型穴に微細なガラス破砕片を充填し, 鋳型ごと加熱してガラス破砕片どうしを熔着する(Sinter casting)。表面に付着した突起状のガラス片や孔周辺の凹凸, および表面にブロック状の色むらとして観察されるのは, いずれもガラス破砕片が熔融しきらずに残ったものである。そこで, 液体状の物質を鋳型に流し込んで製作する一般的な鋳型法と区別して, 7類のガラス小玉の製作技法を, 鋳型熔着法と呼ぶ。

以上, 形態的特徴から7種類に分類した小玉のそれぞれの製作技法を推定した。これらは, 大きく4種類に集約できる。すなわち, ガラス管を分割する方法(1類, 2類), ガラス片を加熱して型に当てながら成形する方法(3類, 4

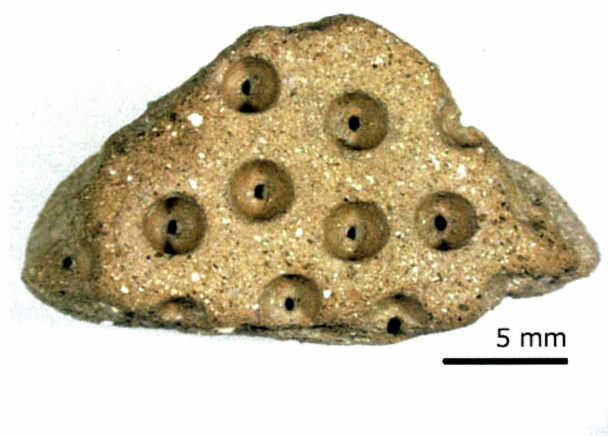


図 3-26 ガラス小玉製作用鋳型

難波宮跡東谷区(大阪府大阪市)

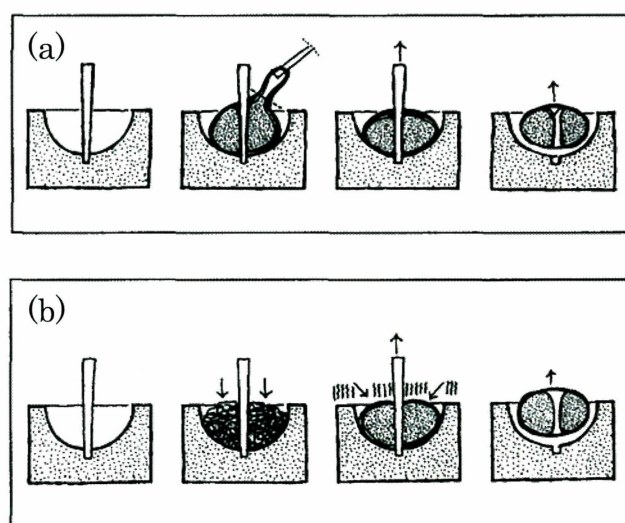


図 3-27 鋳型を利用した小玉製作の2つの方法

(a) 鋳型法(casting), (b) 熔着鋳型法(sinter casting)

(Küçükerman 1995 より抜粋)

類)、芯棒に紐状のガラスを巻き付ける方法(5類)、ガラス片を加熱熔着する方法(6類、7類)である。

このうち、6類と7類は明らかに二次的な生産に伴うものであり、異なる種類のガラスが素材として利用されている可能性がある。そのため、これらのガラス小玉は、化学組成の相違による基礎ガラスや着色剤の分類はおこなわず、限定的な考察にとどめることとした。同様に、1～5類のガラス小玉についても、種類の異なるガラスが混合されている可能性を否定することはできないが、異なる種類のガラスが混合された可能性を積極的に示す根拠がないことから、基本的には一次的な生産によるものとして考察する。ただし、同一遺構から出土したガラス小玉で、同一の着色剤が用いて、同一の製作技法で製作されているにもかかわらず、基礎ガラスに関係する成分にばらつきが大きい種類に関しては、基礎ガラスの混合の可能性を考慮しなければならないと考える。

また、ガラス素材の研磨と穿孔によって小玉を製作する方法が存在する。「分割研磨法」(大賀 2002)などと呼ばれる技法で、これにはガラス小玉を使用する場合と、未加工のガラス塊を使用する場合がある。アルカリ珪酸塩ガラス製のものは、すべてガラス小玉を分割したものである。これらのガラス小玉は、京都府奈具岡遺跡で製作跡とみられる遺構が発見されており、「引き伸ばし法」によるガラス小玉を素材として日本列島内で加工したと考えられている(大賀ほか 2005)。この場合の「引き伸ばし法」によるガラス小玉は、本論の1a類に相当する。本論文は、ガラス小玉の化学組成と製作技法の組み合わせから、ガラスの生産地や日本列島への流入経路を考察することを目的とするため、日本列島内で加工したこれらのガラス小玉は、1a類に含めて論じることとした。

表 3-1 形態的特徴と製作技法との対応関係

形態的特徴	先行研究(大賀2002)	製作技法(筆者)	
1a類	引き伸ばし法	引き伸ばし法(L)	ガラス管分割
1b類		引き伸ばし法(B)	
1c類		引き伸ばし法(変B)	
2a類	連珠法	連珠法	
2b類		重層連珠法	
3類	巻き付け法	型当て包み巻き法	型当て
4類	加熱貫入法	型当て貫入法	
5類	巻き付け法	環状巻き付け法	巻き付け
6類	融着法	熔着法	熔着
7類	鋳型法	鋳型熔着法	
その他			

3-3 基礎ガラスの特徴

蛍光 X 線分析をおこなったアルカリ珪酸ガラスの酸化ナトリウムと酸化カリウムの含有量の関係を図 28 に示す。アルカリ酸化物の含有量から、酸化カリウム含有量が多く酸化ナトリウム含有量が少ないグループと、酸化ナトリウムが多く酸化カリウムが少ないグループに分かれる。前者がカリガラス、後者がソーダ石灰ガラスに相当する。風化表面の蛍光 X 線分析の定量値では、酸化ナトリウムと酸化カリウムの含有量がどちらも少なく、カリガラスとソーダ石灰ガラスを判断できないものも多いが、AR 法の結果を併用することによって両者の識別は可能であった（図 3-28）。以下、カリガラスおよびソーダ石灰ガラスについて、基礎ガラスの化学組成の特徴を述べる。

3-3-1 カリガラス

カリガラスは、アルカリ珪酸塩ガラスのうち、酸化カリウムを融剤としたものである。日本列島で出土するカリガラスは、酸化カリウムと二酸化珪素を主成分とし、酸化アルミニウム、酸化カルシウム、酸化ナトリウムなどを少量ともなう単純な組成のガラスである。二酸化珪素の供給源には石英礫または石英粒子を多く含む砂（珪砂）を想定できるが、酸化アルミニウム、酸化カルシウム、酸化ナトリウムが少量含まれることから、珪砂を利用したと考えられる。カリガラスに含まれるこれらの成分は、珪砂の長石類

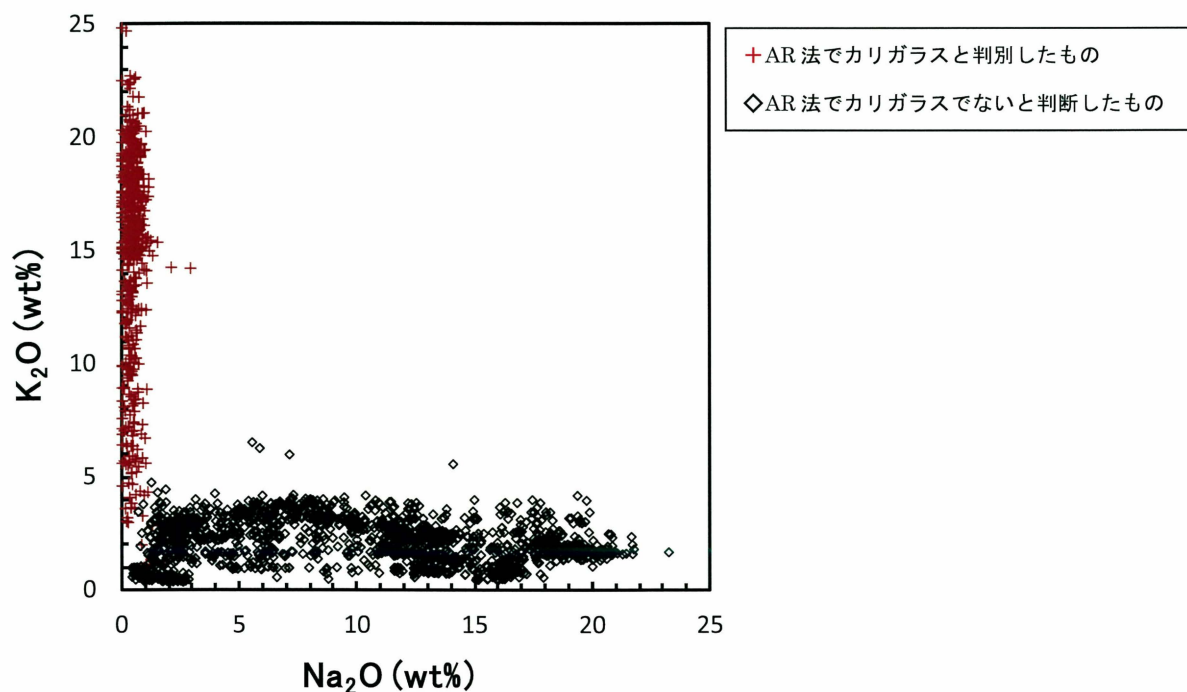


図 3-28 弥生～古墳時代のアルカリ珪酸塩ガラスの Na_2O - K_2O 含有量

($(\text{Na,K,Ca})\text{Al}(\text{Al,Si})\text{Si}_2\text{O}_8$) や方解石 (CaCO_3) に由来する可能性が考えられる。

酸化カリウムの供給源には鉍物と植物灰があるが、日本列島で出土するカリガラスは、酸化マグネシウムの含有量が 1 % 未満であり、不純物の少ないカリ硝石 (KNO_3) などの鉍物を利用したと考えられている (肥塚 1997)。本研究でも同様の結果を得た。カリ硝石は、乾燥地帯では土壌から天然に析出し、多湿環境下では家畜などの排泄物を発酵させることで得られる。

日本列島で出土するカリガラスは、着色成分が異なるだけで基礎ガラスの組成に大きな差異はないと理解されてきた (肥塚 1995)。しかしながら、東南アジアや中国で出土したカリガラスを対象に化学組成による細分をおこなった研究 (Lankton 2006)¹⁹⁾を参照しつつ、日本列島で出土するカリガラスの化学組成を再検討すると、酸化アルミニウムと酸化カルシウムの含有量から大きく二つのグループを認めることができた (図 3-29)。それぞれの代表的な化学組成を表 3-3 に、蛍光 X 線スペクトルを図 3-30 に示す。

一方は、酸化アルミニウム含有量が 2 ~ 4 % 前後、酸化カルシウム含有量が 1 ~ 2.5 % 前後にまとまる一群である。これらのカリガラスをカリガラス I と呼ぶ。他方は、酸化アルミニウムの含有量が 4 ~ 6 % とやや多く、酸化カルシウムの含有量がほぼ 1 % 未満と少ないものである。これらカリガラス II と呼ぶ。ただし、基礎ガラスの化学組成がカリガラス I とカリガラス II の中間的な値を示すものも存在する。

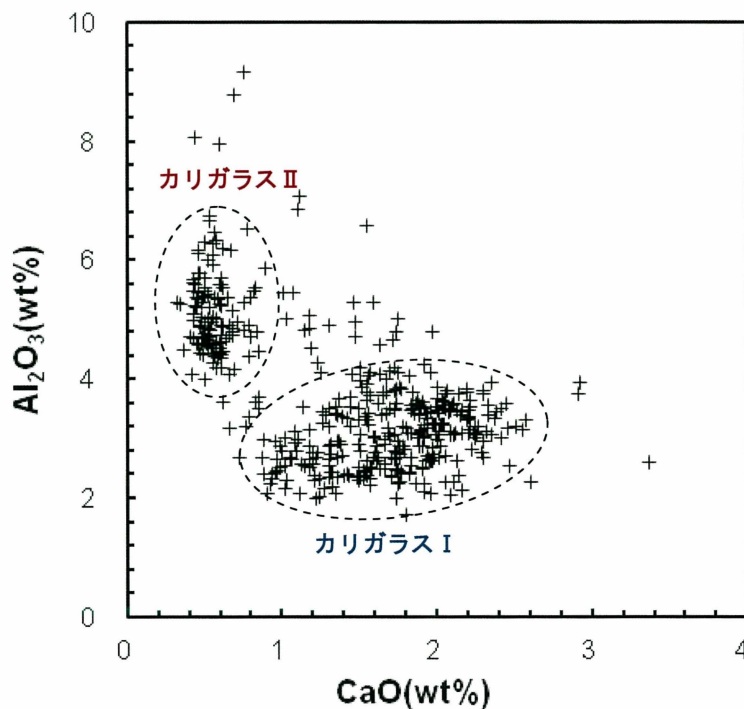


図 3-29 カリガラスの $\text{CaO}\text{-Al}_2\text{O}_3$ 含有量

酸化アルミニウムおよび酸化カルシウムが、前述のように珪砂に付随する成分であることから、これらの成分の含有量の差異は、珪砂原料の差異を示唆している。とすれば、それはガラス製作集団の差異を反映している可能性があり、日本列島で出土するカリガラスには、少なくとも中心となる二つのグループに対応する生産地を想定することができる。

表 3-3(a) 弥生～古墳時代のカリガラスの基礎ガラス成分の分析結果

基礎ガラス	分析数		Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	CaO	TiO ₂
カリガラス I	n=292	平均値(wt%)	0.4	0.6	3.2	1.7	0.29
		標準偏差(wt%)	0.3	0.2	0.7	0.4	0.07
カリガラス II	n=124	平均値(wt%)	0.6	0.5	5.3	0.6	0.17
		標準偏差(wt%)	0.4	0.1	0.8	0.2	0.03

(注) K₂O および SiO₂ は風化の影響による測定値の変動が大きいので、平均値と標準偏差は示さない。

表 3-3(b) 代表的なカリガラスの分析結果

基礎ガラス	No.	重量濃度 (%)											
		Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	CoO	CuO	PbO
カリガラス I	1	1.2	0.6	2.8	71.5	15.5	2.0	0.38	3.52	2.23	0.12	0.07	0.04
	2	0.7	0.4	2.8	69.3	20.5	2.3	0.17	1.85	1.69	0.08	0.05	0.05
	3	1.0	0.6	2.7	67.6	20.3	1.8	0.34	3.21	2.11	0.10	0.06	0.03
	4	0.8	0.6	3.9	70.9	15.1	2.0	0.38	3.61	2.29	0.12	0.06	0.02
	5	0.8	0.6	2.4	69.6	19.3	1.6	0.33	3.10	2.06	0.15	0.05	0.01
カリガラス II	6	0.7	0.4	4.8	71.5	19.4	0.5	0.17	0.02	0.51	0.01	1.74	0.22
	7	0.6	0.4	4.7	71.5	19.5	0.5	0.17	0.04	0.50	0.01	1.67	0.23
	8	1.0	0.3	4.7	71.3	19.5	0.5	0.15	0.01	0.48	0.01	1.71	0.21
	9	0.4	0.3	4.9	72.3	19.0	0.5	0.15	0.02	0.55	0.01	1.60	0.22
	10	0.3	0.3	4.7	71.2	20.2	0.5	0.16	0.02	0.49	0.00	1.75	0.24

(注) 1～10：宮の前1号箱式石棺墓（福岡県福岡市）（1～5：紺色透明，6～10：淡青色透明）

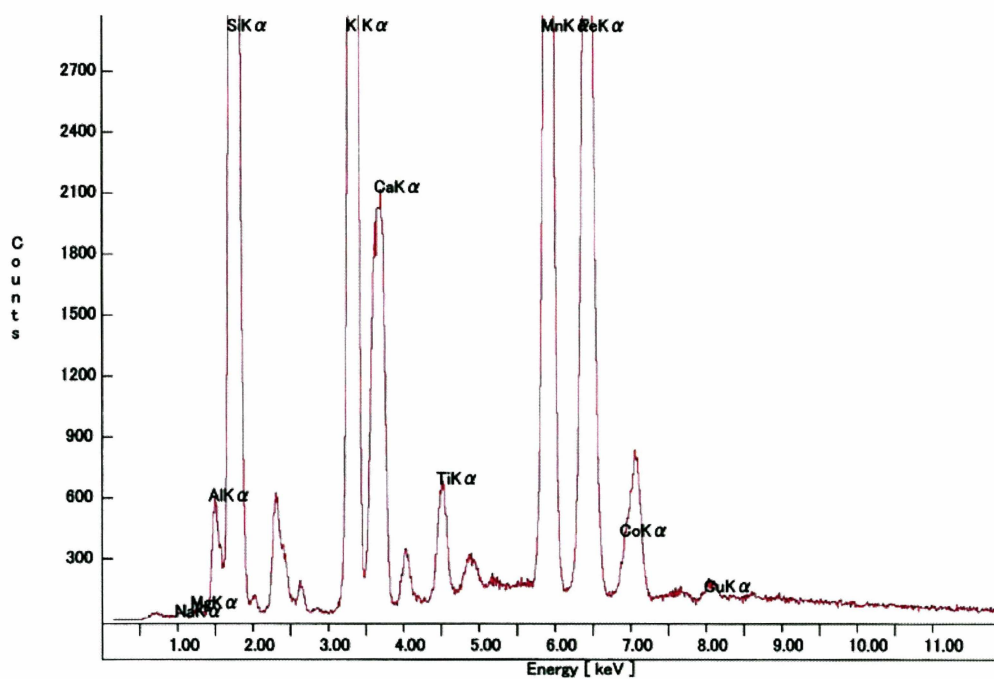


図 3-30(a) カリガラス I の代表的な蛍光 X 線スペクトル(宮の前 1 号箱式石棺墓(福岡県福岡市))

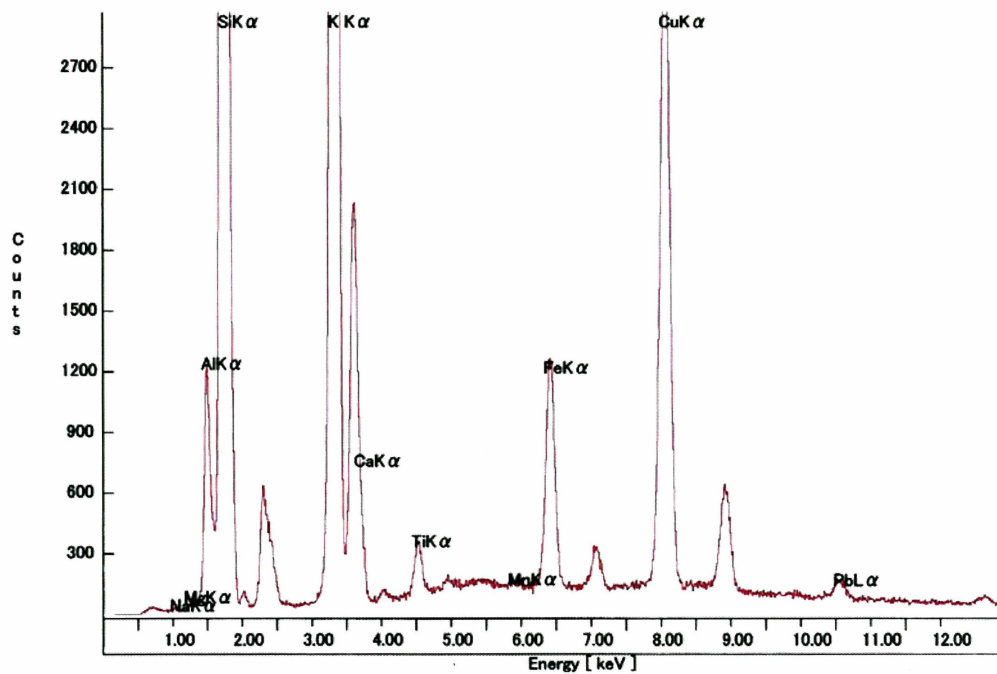


図 3-30(b) カリガラス II の代表的な蛍光 X 線スペクトル(宮の前 1 号箱式石棺墓(福岡県福岡市))

3-3-2 ソーダ石灰ガラス

ソーダ石灰ガラスは、酸化ナトリウムを融剤としたガラスで、化学的耐久性を高める働きをもつ酸化カルシウムを含む。日本列島で出土するソーダ石灰ガラスは、酸化アルミニウムと酸化カルシウムの含有量から大きく二分される（肥塚 1995）。ひとつは、酸化アルミニウム含有量が少なく酸化カルシウム含有量の多いソーダ石灰ガラス（低アルミナソーダ石灰ガラス）で、西アジアから地中海周辺地域で発達した「西のガラス」と呼ばれるものである。もう一方は、酸化アルミニウム含有量が多く酸化カルシウム含有量の少ないソーダ石灰ガラス（高アルミナソーダ石灰ガラス）である。これらは、西アジアや地中海周辺地域には存在せず、南アジア、東南アジア、東アジアに特徴的に分布することから「アジアのガラス」と呼ばれる。高アルミナソーダ石灰ガラスに最初に注目したブリル（Brill）は、酸化アルミニウムが6～10%、酸化カルシウムが1～4%という分析結果のまとまりを提示している（ブリル 1993）。

ソーダ石灰ガラスに含まれる酸化カルシウムは、二酸化珪素源である珪砂に伴う成分と考えられている。大プリニウス（Pliny the Elder）（紀元23～79年）の『博物誌』によると、紀元前後の地中海周辺地域では、現在のイスラエルのアクレ（Acre）付近を流れるベルス川（River Berus）の河口に堆積する「アクレの砂」がガラス作りに盛んに利

表 3-4(a) ベルス川河口の砂（アクレの砂）（現イスラエル）の化学組成（Turner 1956）

Analyst	Heimann and Berl			Turner
Site	1	2	3	
SiO ₂	80.98	80.8	80.16	76.4
Al ₂ O ₃	3.58	3.92	5.27	n.d.
Fe ₂ O ₃	0.12	0.12	0.15	n.d.
CaO	9	8.82	8.6	10.73
Total moisture				0.4
Loss on ign.	6.3	6.6	5.8	7.8

表 3-4(b) インドの川砂の分析結果（Charan 1956）

Site	1	2	3
SiO ₂	81.51	83.08	83.42
Al ₂ O ₃	7.22	6.86	6.83
Fe ₂ O ₃	3.38	2.08	3.25
CaO	2.59	3.8	3.38
MgO	2.12	0.82	1.02

1: River Jamuna (Agra), 2: River Jamuna (Allahabad),

3: River Ganga (Varanasi)

用されたという。ターナーはこのアクレの砂を分析し、二酸化珪素が 76%，酸化カルシウムが約 11%であった⁷⁾と報告している (Turner 1956) (表 3-4(a))。このように、二酸化珪素と酸化カルシウムが適当な割合で混合した砂を、ガラス作りの原料として用いていたことがわかる。さらに、同じくアクレの砂を分析したハインマン (Heinmann) とバール (Berl) の分析では、二酸化珪素と酸化カルシウムに加えて、酸化アルミニウムおよび酸化鉄が少量含まれていることが判明している。

一方、インドの古代ガラスの原料について考察したバードワ (Bhardwai 1979) は、二酸化珪素源として川砂が用いられたと考え、インド各地の川砂の分析値を紹介した (表 3-4(b))。ここでは、上述のアクレの砂に比べて多くの酸化アルミニウムと酸化鉄を含む傾向が示されている。酸化アルミニウムの供給源としては長石類が考えられるが、高濃度の酸化アルミニウムの供給源には、長石類のほかに、ラテライトが関係する可能性がある。ラテライトは、湿潤熱帯気候下で岩石が強い風化を受けて生成された土壌で、アルカリ酸化物や珪酸が溶脱し、鉄やアルミニウムの酸化物や水酸化物が濃集する (土壌物理学編 2002)。南アジア～東南アジアでは、乾燥により硬化したラテライトブロックを建築材料として利用している。参考として、カンボジアのアンコール地域のラテライトの分析値 (日本国政府アンコール遺跡救済チーム (JSA) 1995) を表 3-5 に示す。主要な構成鉱物は、赤鉄鉱 (Fe_2O_3)、針鉄鉱 (FeOOH)、カオリナイト ($\text{Al}_4\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_8$) である。このような風化土壌が形成される地域で採取された珪砂には、高濃度の酸化アルミニウムが伴う可能性がある。これは、高アルミナソーダ石灰ガラスが熱帯に属するインド～東南アジアに多く分布し、生産跡も多数発見されていることとも整合する。

本研究でも、酸化アルミニウムと酸化カルシウムの含有量から、ソーダ石灰ガラスに

表 3-5 カンボジア・アンコール地域のラテライトの分析結果 (ICP-AES) (JSA 1995)

Sample No.	8	12	23	77
SiO_2	39.81	40.43	28.43	24.60
Al_2O_3	14.60	16.01	12.75	20.96
Fe_2O_3	33.21	31.70	46.76	40.34
MnO	0.03	0.02	0.13	0.95
MgO	0.10	0.05	0.11	0.08
CaO	0.18	0.02	0.05	0.03
Na_2O	0.04	0.02	0.03	<0.01
K_2O	0.23	0.09	0.32	0.02
TiO_2	0.45	0.66	0.47	0.82
P_2O_5	0.28	0.25	0.40	0.15
LOI	10.13	9.98	10.60	12.59
Total (%)	99.05	99.23	100.04	100.53

大きく二つのグループを認めることができた (図 3-31(a))。ただし、その境界は明確でなく、中間的な値を示す資料が多い。時期別にみると、古墳時代のものは、高アルミナ低石灰タイプおよび低アルミナ高石灰タイプのそれぞれに対応するグループに離散的に分布するのに対し、弥生後期のものは連続的に分布し、明確に分離できない (図 3-31(b)~(c))。すなわち、ブリル (1993) の提示した酸化アルミニウムと酸化カルシウムの含有量のまともは、古墳時代の資料に対しては有効であるが、弥生時代の資料に関しては必ずしも当てはまるものではないことがわかった。なお、酸化アルミニウム含有量が 6 % を超えるものに限って酸化カルシウムの量を比較すると、弥生時代は平均 $3.5 \pm 0.9\%$ 、古墳時代は平均 $2.3 \pm 0.7\%$ であり、弥生時代は古墳時代に比べて酸化カルシウム含有量が 1 % 前後多い (表 3-6)。代表的な蛍光 X 線スペクトルを図 3-32 に示す。

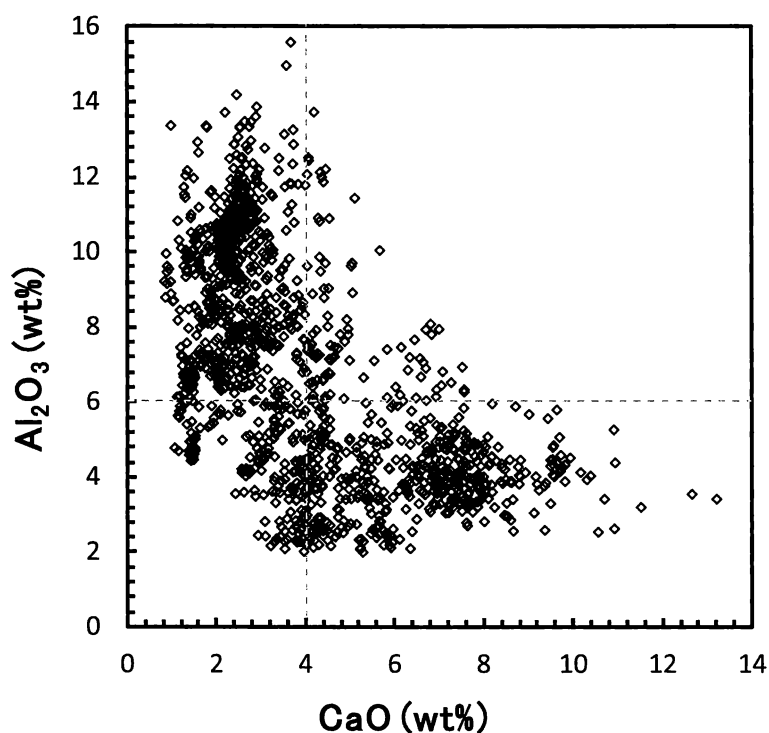


図 3-31(a) ソーダ石灰ガラスの $\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3$ 含有量 (全資料)

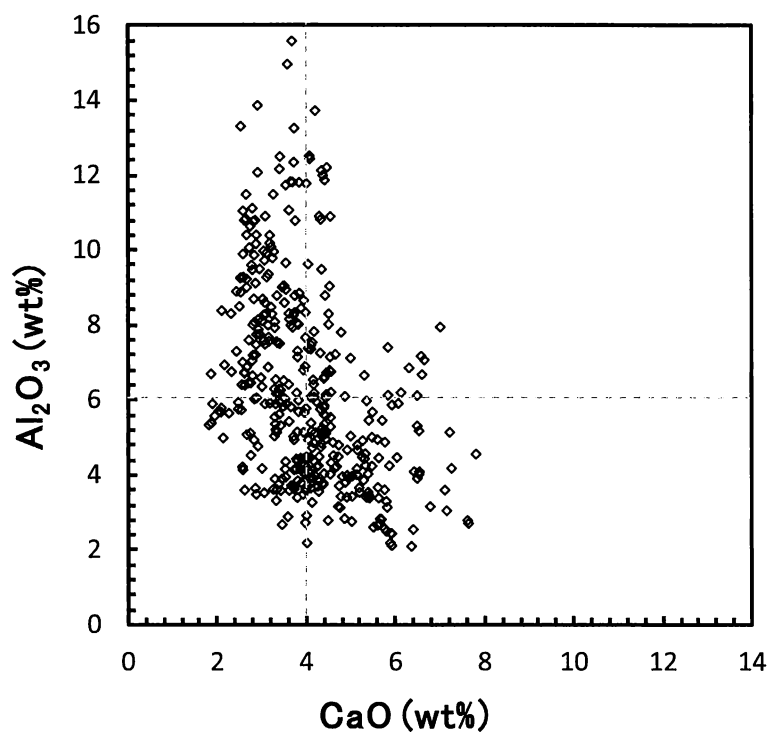


図 3-31(b) ソーダ石灰ガラスの CaO - Al_2O_3 含有量 (弥生時代)

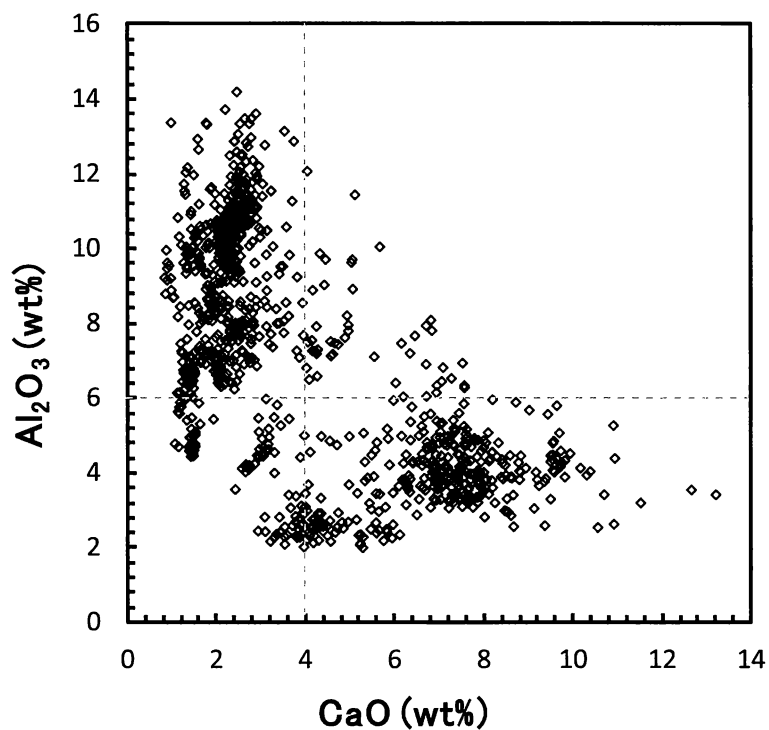


図 3-31(c) ソーダ石灰ガラスの CaO - Al_2O_3 含有量 (古墳時代)

表 3-6(a) 高アルミナソーダ石灰ガラス ($\text{Al}_2\text{O}_3 > 6\%$) の基礎ガラス成分の分析結果

時期	分析数		MgO	Al_2O_3	K_2O	CaO	TiO_2
弥生時代	n=187	平均値(wt%)	1.1	8.6	2.8	3.5	0.29
		標準偏差(wt%)	0.5	2.0	0.8	0.9	0.07
古墳時代	n=725	平均値(wt%)	0.7	9.6	2.1	2.3	0.46
		標準偏差(wt%)	0.3	1.7	0.6	0.7	0.17

(注) Na_2O および SiO_2 は風化の影響による測定値の変動が大きいため、平均値と標準偏差は示さない。

表 3-6(b) 代表的な高アルミナソーダ石灰ガラス ($\text{Al}_2\text{O}_3 > 6\%$) の分析結果

基礎ガラス	No.	重量濃度 (%)												
		Na_2O	MgO	Al_2O_3	SiO_2	P_2O_5	K_2O	CaO	TiO_2	MnO	Fe_2O_3	Ni_2O_3	CuO	PbO
弥生時代	1	6.0	1.4	7.6	67.1	0.4	3.7	4.1	0.18	0.14	1.17	0.04	3.18	4.80
	2	7.3	1.1	6.2	67.5	0.5	3.8	4.5	0.15	0.15	1.17	0.04	3.14	4.46
	3	2.9	1.4	6.3	76.6	0.4	2.0	3.4	0.20	0.10	1.33	0.02	1.82	3.33
	4	5.3	1.3	7.2	68.8	0.4	3.4	4.5	0.21	0.13	1.49	0.03	2.93	4.20
	5	6.3	1.2	6.8	69.5	0.4	3.5	4.4	0.17	0.12	1.24	0.03	2.97	3.39
古墳時代	6	13.4	1.4	10.2	65.3	-	2.0	2.8	0.56	0.18	3.05	-	0.56	0.46
	7	12.0	1.0	11.1	67.0	-	2.2	2.6	0.42	0.08	2.65	-	0.30	0.48
	8	11.9	1.0	10.8	67.4	-	2.3	2.5	0.42	0.09	2.70	-	0.40	0.42
	9	12.8	1.2	10.8	66.1	-	2.3	2.6	0.42	0.07	2.43	-	0.35	0.79
	10	12.2	1.1	10.7	67.0	-	2.3	2.5	0.47	0.12	2.63	-	0.39	0.42

(注) 1～5：宮の前1号箱式石棺墓（福岡県福岡市），6～10：円山古墳第6区中層（滋賀県野洲市）

（1～5：黄緑色不透明，6～10：黄緑色半透明）

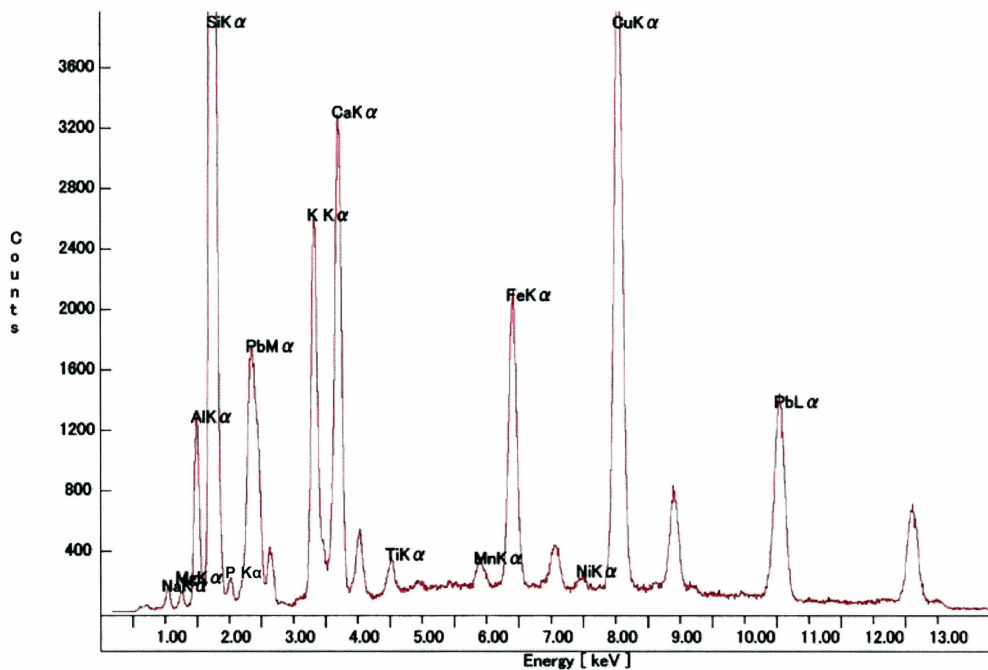


図 3-32(a) 弥生時代の高アルミナソーダ石灰ガラスの代表的な蛍光 X 線スペクトル
(宮の前 1 号箱式石棺墓 (福岡県福岡市))

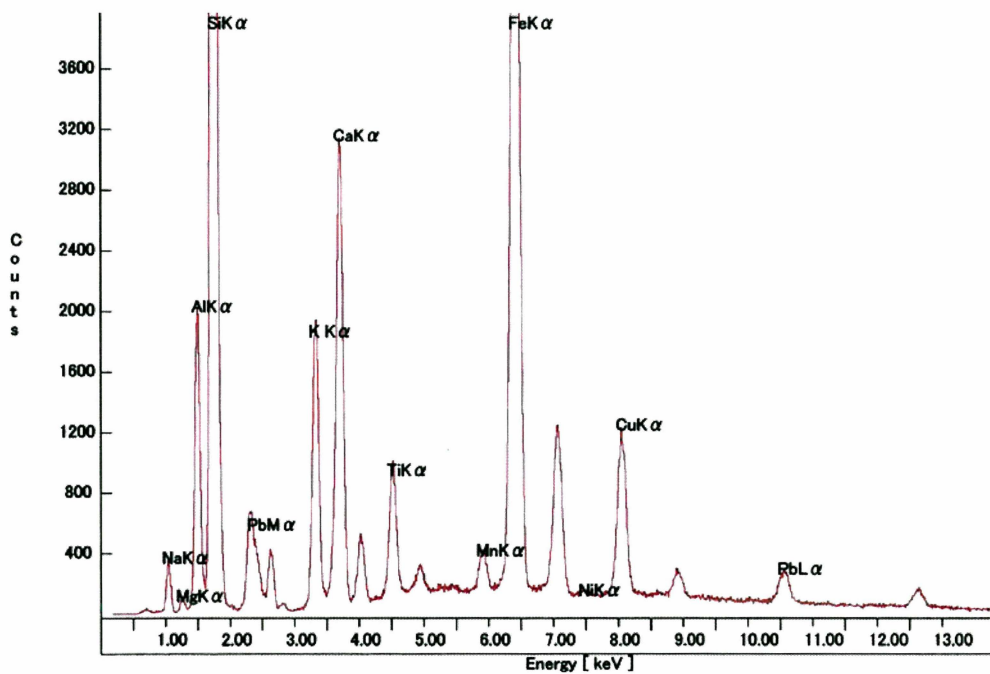


図 3-32(b) 古墳時代の高アルミナソーダ石灰ガラスの代表的な蛍光 X 線スペクトル
(円山古墳第 6 区中層 (滋賀県野洲市))

さらに、弥生時代と古墳時代の高アルミナソーダ石灰ガラス小玉($\text{Al}_2\text{O}_3 > 6\%$)では、酸化チタン含有量にも明確な差異が認められた(図 3-33)。古墳時代の高アルミナソーダ石灰ガラス小玉は酸化チタンを 0.5%前後またはそれ以上含有するものが多いのに対し、弥生時代後期のものは 0.1~0.4%程度しか含有しない。元素としてのチタンは、チタン鉄鉱のほか、黒雲母や輝石などの有色鉱物に含まれており、二酸化珪素源である珪砂に伴う不純物と考えられる。

以上のことから、高アルミナソーダ石灰ガラスでも、弥生時代と古墳時代では珪砂に由来すると考えられる成分に差異があることが明らかとなった。

次に、ソーダ原料にかかわる酸化マグネシウムと酸化カリウムの含有量を検討する。古代のガラス製品の化学組成の分析を進めたセイヤは、地中海周辺地域や西アジアで発見されるソーダ石灰ガラスは、酸化マグネシウムと酸化カリウムの含有量が多いものと少ないものに大別でき、これらはソーダ原料の差異に起因すると指摘した(Sayre & Smith 1961, 1974 など)。

ソーダ原料には鉱物と植物灰があり、鉱物ソーダ原料としては、エジプトなどの塩湖で蒸発塩として産出されるナトロンと、インドやパキスタンの湖沼に産出するアルカリ華を含む土壌から得られるレ(reh)(または, sajji matti)が知られる。それぞれの分析値を表 3-7 に示す。ナトロンについては、ナトルーンの谷(Wadi Natrun)で現在採れるものとツタンカーメン(Tutankhamun)(エジプト第 18 王朝)の王墓から出土したものを、ルカス(Lucas 1962)が分析している。reh については、北インドの 2 箇所のもをバードワ(Bhardwaj 1979)の報告から引用した。いずれも炭酸ナトリウムおよび炭酸水素ナトリウムを主成分とする。ただし、reh は、ナトロンに比べて不溶性の不純物成分が多い。ナトロンは、ナトルーンの谷で採れる天然ナトロンと比較して、ツタンカーメン王墓出土品は不純物成分が少なく、ソーダ成分(ナトリウム化合物)の純度が高い。このことから、第 18 王朝期にはすでに天然ナトロンの精製がおこなわれていたと推定されている(丸山 1973)。

植物灰は、ナトリウムを主成分とするものと、カリウムを主成分とするものに大きく分かれる。ターナー(Turner 1956)による代表的な植物灰の化学組成を表 3-8 に示す。植物灰のナトリウムとカリウムの含有量は、主に生育環境に依存し、海岸に生育する塩性植物や海藻、または塩分の多いシリアの砂漠地帯の植物などにはナトリウムが多く、内陸の森林地帯に生育する植物にはカリウムが多い(Turner 1956)。ソーダ石灰ガラスには、塩性植物や海藻または砂漠地帯の植物などが用いられた可能性が高い。これらの植物灰には、ナトリウム化合物以外に、カリウム化合物、カルシウム化合物、マグネシウム化合物などが含まれる。したがって、植物灰をソーダ原料としたソーダ石灰ガラスは、鉱物を利用したものに比べて、酸化カリウムおよび酸化マグネシウム含有量が多く

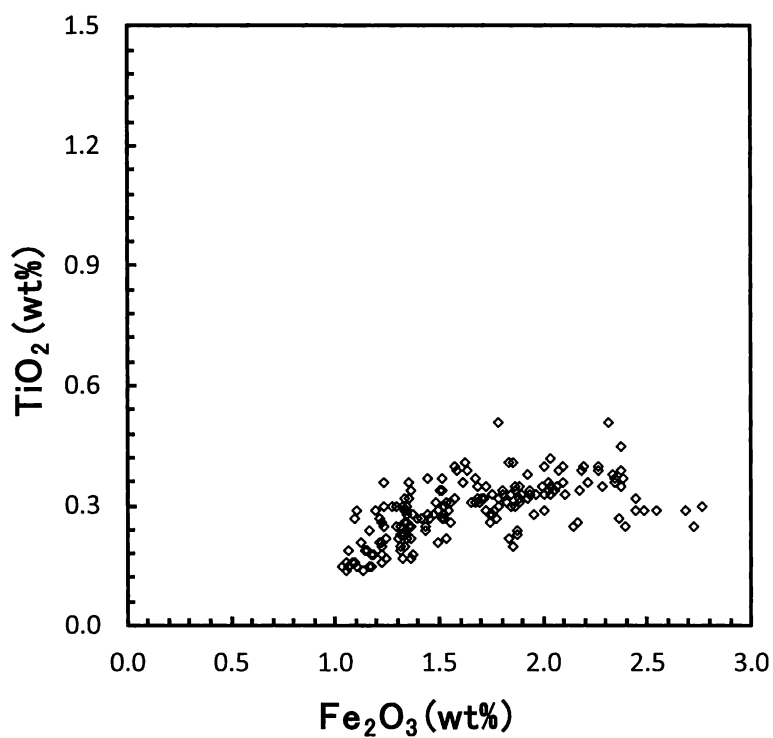


図 3-33(a) 高アルミナソーダ石灰ガラス ($\text{Al}_2\text{O}_3 > 6\%$) の $\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3$ 含有量 (弥生時代)

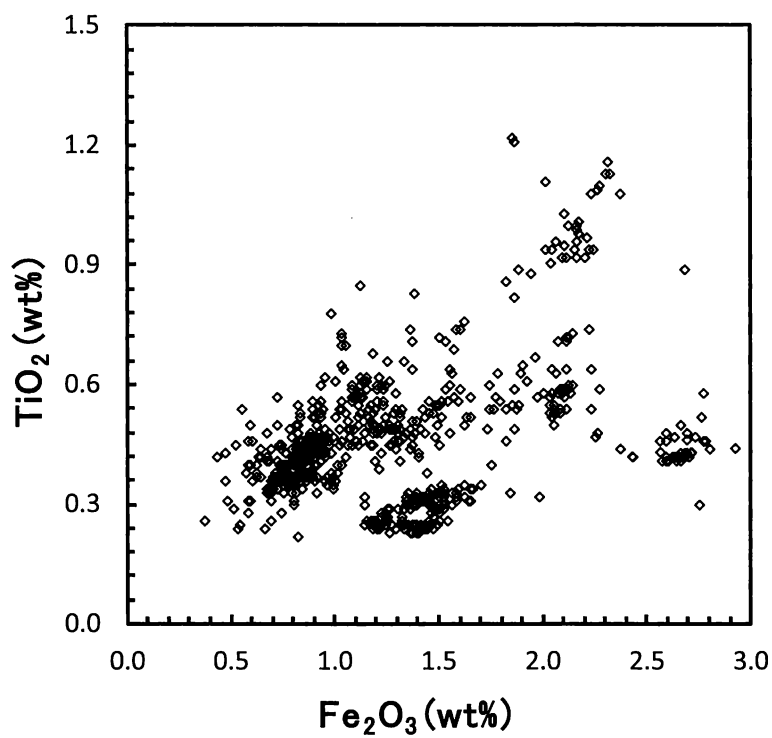


図 3-33(b) 高アルミナソーダ石灰ガラス ($\text{Al}_2\text{O}_3 > 6\%$) の $\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3$ 含有量 (古墳時代)

表 3-7(a) ナトロンの分析値 (Lucas 1962)

Location	Wadi natrun (n=14)	Tomb of Tutankhamun (n=4)
Na ₂ CO ₃	22.4-75.00	35.7-94.0
NaHCO ₃	5.00-32.40	
NaCl	2.20-26.80	0.5-39.5
Na ₂ SO ₄	2.30-29.90	5.5-24.8
Water	1.90-20.00	-
Insoluble	tr -31.10	-

表 3-7(b) reh の分析値 (Bhardwaj 1979)

Location	Maradabad	Meerut
Na ₂ CO ₃	9.66	3.81
NaHCO ₃	8.55	4.12
NaCl	1.92	3.25
Na ₂ SO ₄	8.6	1.7
Water	-	-
Insoluble	balance	balance

表 3-8(a) イギリスオークニー諸島に生育するケルプ (海藻) 灰の化学組成 (Turner 1956)

100 parts contain 6.8 of water, 63.4 soluble material, 29.7 insoluble			
K ₂ SO ₄	4.5	CaCO ₃	6.4
Na ₂ SO ₄	3.6	Ca ₃ (PO ₄) ₂	10.5
CaSO ₄	0.3	CaSO ₄	1.1
MaSO ₄	0.9	MgCO ₃	6.8
Na ₂ SO ₃	0.8	Sand	1.6
Na ₂ S ₂ O ₄	0.5	Al ₂ O ₃	0.1
Na ₂ CO ₃	5.3	Organic matter	2.87
NaCl	26.5		
KCl	19.3		
CaCl ₂	0.2		
MgI ₂	0.3		
Na ₂ S	1.6		
Na ₃ PO ₄	0.5		

表 3-8(b) シリアの砂漠地帯に生育する植物の灰の化学組成 (Turner 1956)

Parts per 1000			
Part soluble in water	600	Part insoluble in water	400
Na_2CO_3	450	CaCO_3	340
NaOH	25	$\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$	40
KCl	45	MgCO_3	10
K_2S	30	Carbon	10
Other inorganic matter and water	50		

表 3-8(c) 内陸性植物の灰の化学組成の一例 (Turner 1956)

ブナ(幹)灰の化学組成(%)	
SiO_2	5.4
CaO	56.4
MgO	10.9
Na_2O	3.6
K_2O	16.4
P_2O_5	5.4
SO_3	1.8

なることから、これら成分の含有量が両者を識別する指標となる。なお、カリウムの多い内陸性植物（ブナなど）は、中世以降のヨーロッパで盛んとなるカリ石灰ガラスの原料として利用されたと考えられている。

以上をふまえて、ここではまず、低アルミナソーダ石灰ガラスと高アルミナソーダ石灰ガラスが比較的明確に分離された古墳時代のソーダ石灰ガラスについて、酸化マグネシウムと酸化カリウムの含有量を検討する。

古墳時代の低アルミナソーダ石灰ガラスの酸化カリウムと酸化マグネシウムの含有量を図 3-34 に示す。酸化マグネシウムと酸化カリウム含有量がともに少ないグループと、両者がともに多いグループに大きく分かれることが明らかである。低アルミナソーダ石灰ガラスは、地中海周辺や西アジアで発達した「西のガラス」であり、これらの地域で発見される低アルミナソーダ石灰ガラスは、酸化マグネシウムと酸化カリウムの両成分の含有量が、1.5～2%よりも少ないものはナトロンを使用し、多いものは植物灰を使用したと推定されている (Sayre 1963, Brill 2009 など)。

本研究の分析でも、これらの先行研究と整合する結果が得られた。すなわち、古墳時代の低アルミナソーダ石灰ガラスには、ナトロンをソーダ原料としたものと植物灰をソ

ーダ原料としたものの両方が存在していたことがわかる。ここでは、前者をソーダ石灰ガラスⅠ，後者をソーダ石灰ガラスⅡと呼ぶ。それぞれの代表的な化学組成を表 3-9 に、蛍光 X 線スペクトルを図 3-35 に示す。

一方、高アルミナソーダ石灰ガラスの酸化マグネシウムと酸化カリウムの含有量は、低アルミナソーダ石灰ガラスとは異なる分布傾向を示した（図 3-36(a)）。すなわち、これら両成分がともに多い個体はほとんど存在せず、両成分が少ないもの（1%前後）から酸化カリウムの含有量のみが多い（4%前後）ものまで連続的に分布する。これら両成分が2%より少ないものに関しては、鉍物系のソーダ原料が用いられた可能性が考えられる。ただし、両成分がともに少ないものから酸化カリウムのみが多いものまで連続的に分布する傾向は、同一遺構で出土したガラス玉でも認められる。こうした傾向は、ナトロンを用いた低アルミナソーダ石灰ガラスとは明らかに異なる。

インドで出土するガラスを分析したバードワは、そのソーダ原料には鉍物系の reh が用いられた可能性を指摘するとともに、酸化カリウムを多く含むガラスには植物灰が併用された可能性があるとした（Bhardwaj 1979）。しかし、酸化カリウムの多い（4%前後）ものでも、酸化マグネシウムの含有量が2%を超えることはなく、両者の含有量に相関も認められない点で、低アルミナソーダ石灰ガラスに見られるような植物灰ガラスとは異なる。高アルミナソーダ石灰ガラスに含まれる酸化カリウムは、珪砂や窯に使用された耐熱材料など、植物灰以外から供給された可能性も考慮する必要がある⁸⁾。いずれにしても、高アルミナソーダ石灰ガラスは、低アルミナソーダ石灰ガラスのように、

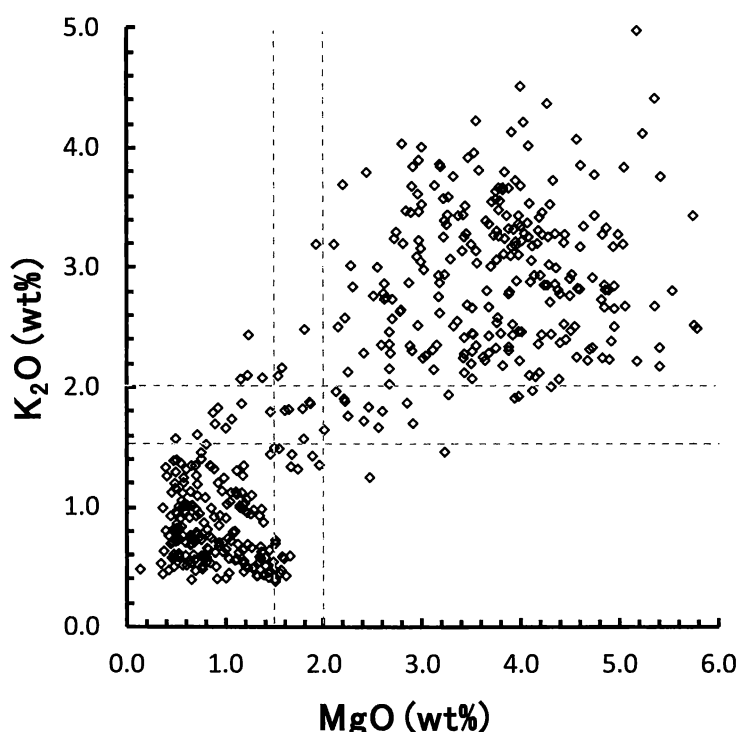


図 3-34 低アルミナソーダ石灰ガラス ($\text{Al}_2\text{O}_3 < 6\%$) の MgO - K_2O 含有量 (古墳時代)

ソーダ原料の種類によって明確に分類できないことから、本研究では高アルミナソーダ石灰ガラスをまとめてソーダ石灰ガラスⅢと呼ぶこととする。

弥生時代のソーダ石灰ガラスは、高アルミナソーダ石灰ガラスと低アルミナソーダ石灰ガラスが明確に区別できないため、すべてのソーダ石灰ガラスの酸化マグネシウムと酸化カリウムの含有量をまとめて図 3-36(b)に示す。ほとんどのものが、これら両成分の含有量が少ないか、もしくは酸化カリウムは多いが酸化マグネシウムは少ない領域に分布する。ただし、一部に両成分の含有量が多い資料も認められた。弥生時代のソーダ石灰ガラスについては、3-4 で製作技法や色調（着色剤）の組み合わせから考察する。

表 3-9(a) 低アルミナソーダ石灰ガラスの基礎ガラス成分の分析結果（古墳時代）

時期	分析数		MgO	Al ₂ O ₃	K ₂ O	CaO	TiO ₂
ソーダ石灰ガラスⅠ	n=102	平均値(wt%)	1.1	3.9	0.7	8.4	0.18
		標準偏差(wt%)	0.3	0.9	0.2	1.5	0.08
ソーダ石灰ガラスⅡ	n=280	平均値(wt%)	3.6	4.5	2.8	7.2	0.20
		標準偏差(wt%)	1.0	1.1	0.7	0.9	0.07

(注) Na₂O および SiO₂ は風化の影響による測定値の変動が大きいため、平均値と標準偏差は示さない。

表 3-9(b) 代表的な低アルミナソーダ石灰ガラスの基礎ガラス成分の分析結果（古墳時代）

基礎ガラス	No.	重量濃度 (%)											
		Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	CoO	CuO	PbO
ソーダ石灰ガラスⅠ	1	14.3	1.0	2.5	72.8	0.6	6.8	0.11	0.04	1.15	0.05	0.25	0.22
	2	14.1	0.9	2.9	71.9	1.0	7.0	0.12	0.06	1.38	0.07	0.28	0.28
	3	16.0	0.9	2.5	71.4	0.6	6.8	0.16	0.08	0.98	0.05	0.18	0.16
	4	17.3	1.1	2.5	69.4	0.5	6.7	0.14	0.05	1.33	0.07	0.36	0.35
	5	13.4	1.0	2.4	73.8	0.6	7.0	0.12	0.05	1.01	0.05	0.21	0.19
ソーダ石灰ガラスⅡ	6	10.2	3.8	5.2	69.1	3.3	5.8	0.24	0.32	1.59	0.08	0.10	0.07
	7	10.3	3.5	4.8	68.8	3.1	6.7	0.25	0.38	1.64	0.09	0.11	0.05
	8	12.9	2.7	4.0	65.8	2.0	10.3	0.23	0.40	1.31	0.07	0.12	0.07
	9	12.7	2.6	3.8	68.8	1.8	8.2	0.11	0.35	1.25	0.09	0.12	0.06
	10	12.3	3.4	3.6	69.0	2.4	6.6	0.30	0.15	1.71	0.07	0.15	0.08

(注) 1～5：国成古墳（広島県福山市），6：女池ヶ谷 25 号墳（静岡県藤枝市），

7：西ノ宮 3 号墳（静岡県藤枝市），8～10：山脇 2 号横穴墓（静岡県掛川市）（すべて紺色透明）

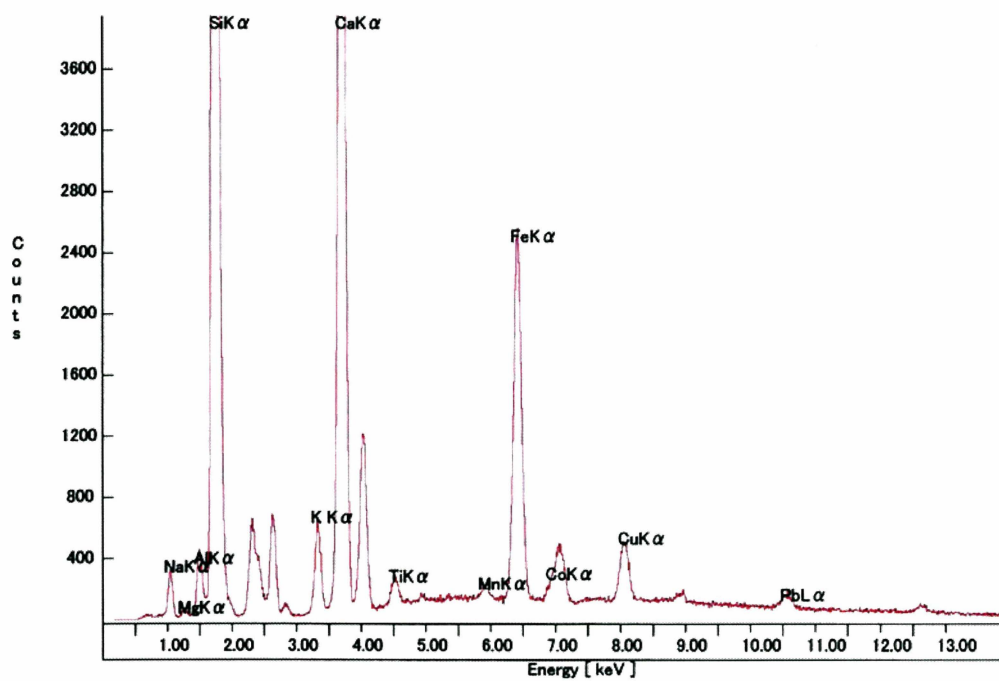


図 3-35(a) ソーダ石灰ガラス I の代表的な蛍光 X 線スペクトル (国成古墳 (広島県福山市))

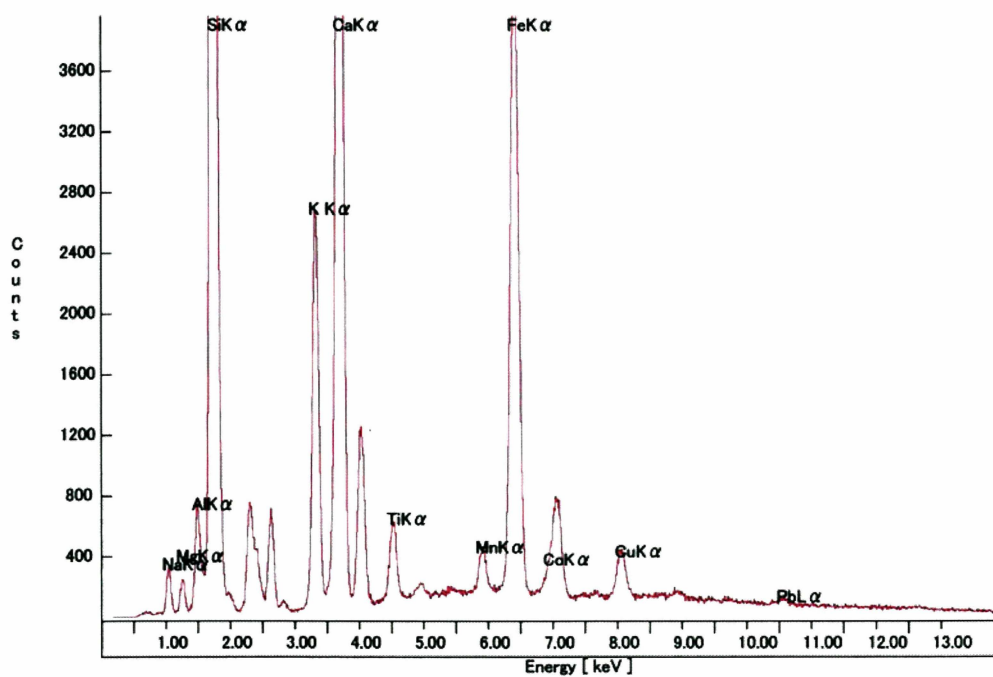


図 3-35(b) ソーダ石灰ガラス II の代表的な蛍光 X 線スペクトル (山脇 2 号横穴墓 (静岡県掛川市))

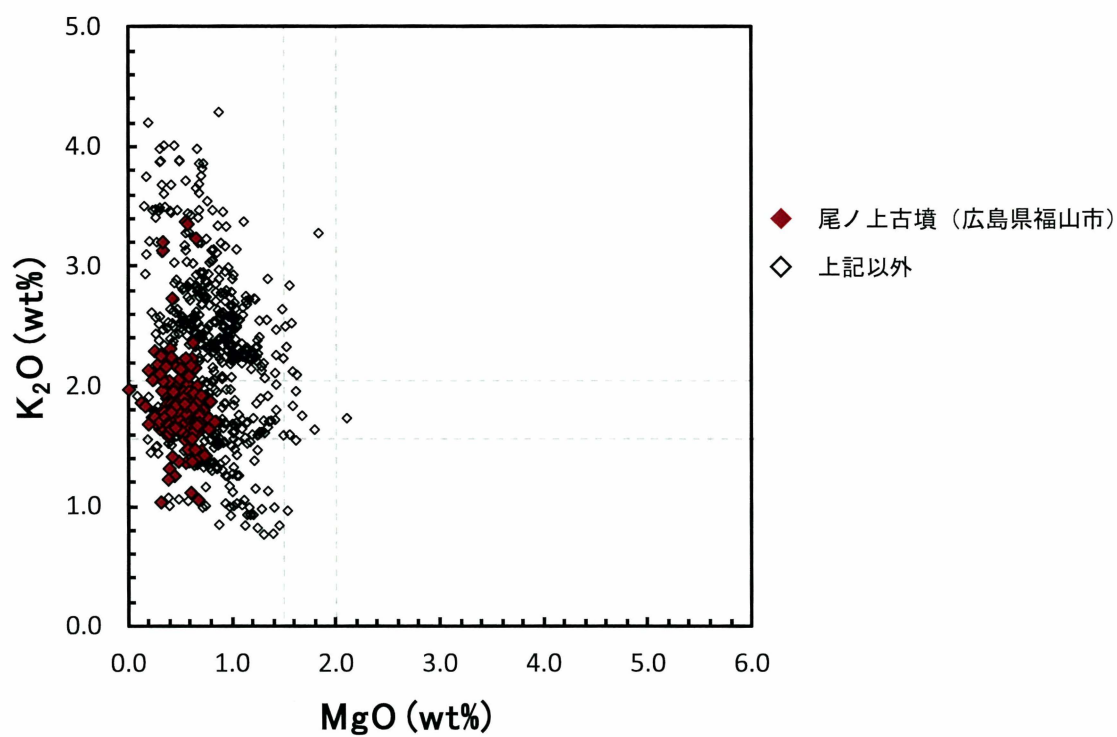


図 3-36(a) 高アルミナソーダ石灰ガラス ($\text{Al}_2\text{O}_3 > 6\%$) の MgO - K_2O 含有量 (古墳時代)

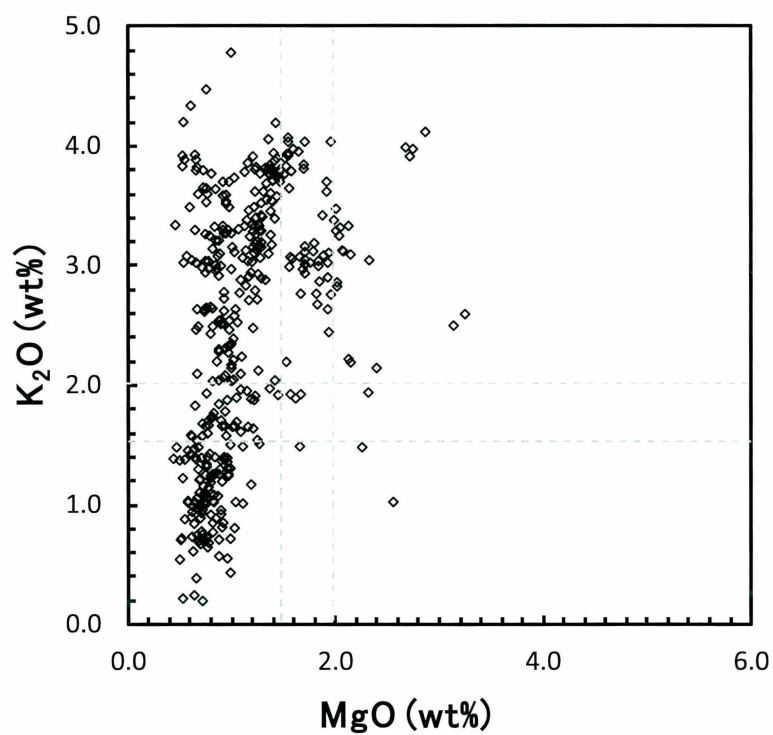


図 3-36(b) 高アルミナソーダ石灰ガラス ($\text{Al}_2\text{O}_3 > 6\%$) の MgO - K_2O 含有量 (弥生時代)

3-3-3 小結

本研究では、弥生～古墳時代のアルカリ珪酸塩ガラスを、基礎ガラスの化学組成から5種類に分類した。本研究の分類と先行研究の分類との対応関係を表3-10に示す。

まず、アルカリ酸化物の種類からカリガラスとソーダ石灰ガラスに分類し、珪砂に由来する成分とアルカリ原料に由来する成分によって細分した。その結果、これまで1種類のみが流通したと考えられてきたカリガラスには、珪砂に由来すると考えられる酸化アルミニウムと酸化カルシウムの含有量の異なる2種類（カリガラスⅠ，カリガラスⅡ）が存在することがわかった。一方、アルカリ原料については、どちらのカリガラスも酸化マグネシウム含有量が1%未満であり、植物灰ではなく、カリ硝石などの鉱物を利用したと推定される。

ソーダ石灰ガラスは、特に古墳時代の資料において、酸化アルミニウムと酸化カルシウムの含有量から、低アルミナソーダ石灰ガラスと高アルミナソーダ石灰ガラスに分類できた。これは、従来の研究結果と一致するが、本研究では、ソーダ原料に由来する酸化マグネシウムと酸化カリウムの含有量を検討した結果、低アルミナソーダ石灰ガラスには鉱物（ナトリウム）を利用したもの（ソーダ石灰ガラスⅠ）と、植物灰を利用したもの（ソーダ石灰ガラスⅡ）が流通していたことがわかった。一方、高アルミナソーダ石灰ガラスは、詳細なソーダ原料の推定には至らなかったものの、酸化マグネシウム含有量が2%前後以下、酸化カリウム含有量が0.5～1%の領域にまとまって分布することから、ソーダ原料に由来する成分では細分せず、まとめてソーダ石灰ガラスⅢとした。

表 3-10 基礎ガラスの分類と先行研究との対応関係

アルカリの種類	珪砂に由来する成分	アルカリ原料に由来する成分		本論文での分類	従来の分類(肥塚1995)
K ₂ O	低Al ₂ O ₃ , 高CaO	低MgO	鉱物(カリ硝石)	カリガラスⅠ	カリガラス(K ₂ O-SiO ₂ 系)
	高Al ₂ O ₃ , 低CaO	低MgO	鉱物(カリ硝石)	カリガラスⅡ	
Na ₂ O	低Al ₂ O ₃ , 高CaO	低MgO, 低K ₂ O	鉱物(ナトリウム)	ソーダ石灰ガラスⅠ	低アルミナソーダ石灰ガラス (Na ₂ O-SiO ₂ -CaO系)
		高MgO, 高K ₂ O	植物灰	ソーダ石灰ガラスⅡ	
	高Al ₂ O ₃ , 低CaO	低MgO, 低～高K ₂ O	鉱物,または 鉱物+植物灰?	ソーダ石灰ガラスⅢ	高アルミナソーダ石灰ガラス (Al ₂ O ₃ -Na ₂ O-SiO ₂ -CaO系)

3 - 4 着色方法と着色剤の特徴

古代ガラスの着色方法には、遷移金属イオンによる着色と、金属コロイドによる着色および結晶物質（顔料）を混合して着色する方法がある。ここでは、着色方法ごとに、主要な着色因子とそれぞれに対応する色調について述べる。また、着色剤に由来する成分から、着色剤原料の特徴を考察する。

3 - 4 - 1 遷移金属イオンによる着色

ガラス中に遷移金属イオンが存在すると、ガラスに光（白色光）を当てたとき、特定の波長の光が吸収される。吸収される波長が可視光域の場合、その補色がガラスの色として見える（伊藤 1996）。弥生～古墳時代のガラスに含まれる遷移金属元素の主なものは、コバルト、銅、鉄、マンガンであり、これらの元素がイオン状態で着色に関与していると考えられる。以下、それぞれについて詳述する。

3 - 4 - 1 - 1 コバルトイオン

酸化コバルトを 0.1% 前後含有し、青紺色、紫紺色、淡紺色を呈するものは、コバルトイオンが主要な着色因子と推定される。コバルトイオンは、ガラス中で Co^{2+} の状態で存在し、配位数 4 ($\text{Co}^{2+}/\text{O}_4$) のときに非常に着色力が強く、20 ppm 程度で青紺色の着色が可能である（伊藤 1996）。コバルトイオンによって着色された代表的なガラスを図 3-37 に示す。

コバルト着色のガラスには、酸化マンガンを 1 % 以上含むものが存在する（表 3-10）。とくにコバルト着色のカリガラスは、常に酸化マンガンの含有量が多く、一部に紫色味の強い色調（紫紺色）のものがある。紫紺色の発色には、 Co^{2+} とマンガンイオン (Mn^{3+}) が複合的に関与すると考えられる。ソーダ石灰ガラスにも酸化マンガンの含有量が多いものがあるが、紫紺色に発色する例はない。 Mn^{3+} はソーダ石灰ガラスよりもカリガラス中で赤味が強くなると言われている（伊藤 1996）。また、酸化マンガンを多く含むカリ



図 3-37 コバルトイオンによる着色（a：青紺色，b：紫紺色，c：淡紺色）

a：見野古墳 6 号東石室（兵庫県姫路市），b：岸高Ⅱ遺跡 33 号甕棺墓（佐賀県唐津市），

c：源ヶ谷 1 号墳（静岡県掛川市）

ガラスでも青味の強い色調もあることから、青紺色と紫紺色の違いは着色剤の差異によるのではなく、酸化条件によって Mn^{3+} が多く存在すると紫紺色になると考えられる。

弥生～古墳時代のコバルト着色のガラスは、酸化マンガン以外に、酸化銅や酸化鉛などをわずかに含有する。これらの成分は、コバルト原料の不純物とみられる。コバルト着色のガラスに酸化マンガン含有量の多いものと少ないものがあることは、これまでも指摘されており（肥塚 1995）、本研究でも同様の結果が得られた（図 3-38）。コバルト原料には、輝コバルト鉱（ $CoAsS$ ）などの鉱石や、コバルトを含むマンガン堆積物などが想定され、酸化マンガン含有量が多いものは後者を利用した可能性がある。

さらに、酸化マンガン含有量が多いものは、一部を除いてバリウムが検出されることが明らかとなった¹⁰⁾（図 3-39）。バリウムは、基礎ガラスが異なるコバルト着色のガラスからも検出される一方、基礎ガラスは同じでもコバルト着色でないガラスからは検出されない。したがって、バリウムは基礎ガラスに伴うものではなく、着色剤としてのコバルト原料に伴う成分と考えられる。

また、バリウムが検出されるグループは、酸化銅および酸化鉛が極めて少ない領域にまとまる傾向にあるが、バリウムを含まない一群はこれらの成分がやや多い領域に分布することもわかった（図 3-40）。すなわち、マンガン含有量が多いグループは、さらに2種類に分かれる可能性が高い¹¹⁾。

表 3-10 代表的なコバルト着色によるガラスの分析値

No.	色調	重量濃度 (%)												Ba
		Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	CoO	CuO	PbO	
1	青紺色	0.7	0.6	3.8	71.4	17.8	1.7	0.22	2.06	1.53	0.06	0.03	0.05	検出
2	青紺色	0.4	0.6	3.8	81.2	9.5	1.3	0.16	1.58	1.13	0.05	0.03	0.04	検出
3	紫紺色	0.2	0.7	2.8	74.6	16.1	1.7	0.26	2.12	1.21	0.08	0.04	0.04	検出
4	紫紺色	0.3	0.5	3.5	76.4	13.3	1.3	0.22	2.57	1.52	0.09	0.04	0.03	検出
5	青紺色	16.3	0.5	6.4	68.7	1.4	2.6	0.33	1.58	1.93	0.08	0.04	0.02	検出
6	青紺色	17.9	0.9	10.8	60.1	2.3	3.7	0.31	1.78	1.82	0.08	0.01	0.03	検出
7	青紺色	18.8	1.4	2.7	67.0	0.5	5.9	0.27	1.20	1.57	0.09	0.24	0.27	-
8	青紺色	20.3	1.2	2.4	65.8	0.5	6.2	0.20	1.14	1.60	0.09	0.26	0.23	-
9	青紺色	14.3	1.0	2.5	72.8	0.6	6.8	0.11	0.04	1.15	0.05	0.25	0.22	-
10	青紺色	14.1	0.9	2.9	71.9	1.0	7.0	0.12	0.06	1.38	0.07	0.28	0.28	-
11	淡紺色	12.9	2.7	4.0	65.7	2.0	10.3	0.23	0.40	1.31	0.07	0.12	0.07	-
12	淡紺色	12.7	2.6	3.8	68.7	1.8	8.2	0.11	0.35	1.25	0.09	0.12	0.06	-

(注) 1～2：釣瓶落 11 号墳（静岡県藤枝市），3～4：女池ヶ谷 25 号墳（静岡県藤枝市），
5～6：小倉原田 3 号土坑墓（福岡県春日市），7～8：宇津久志 1 号墳（京都府岸和田市），
9～10：国成古墳（広島県福山市），11～12：山脇 2 号横穴墓（静岡県掛川市）

一方、酸化マンガン含有量の少ないグループは、酸化銅および酸化鉛の含有量がやや多い領域に広く分布する。これらは、製作技法や基礎ガラスごとにまとまって分布する傾向があり、さらに細分できる可能性がある。製作技法と基礎ガラスおよび着色剤との対応関係は 3-4 で考察する。

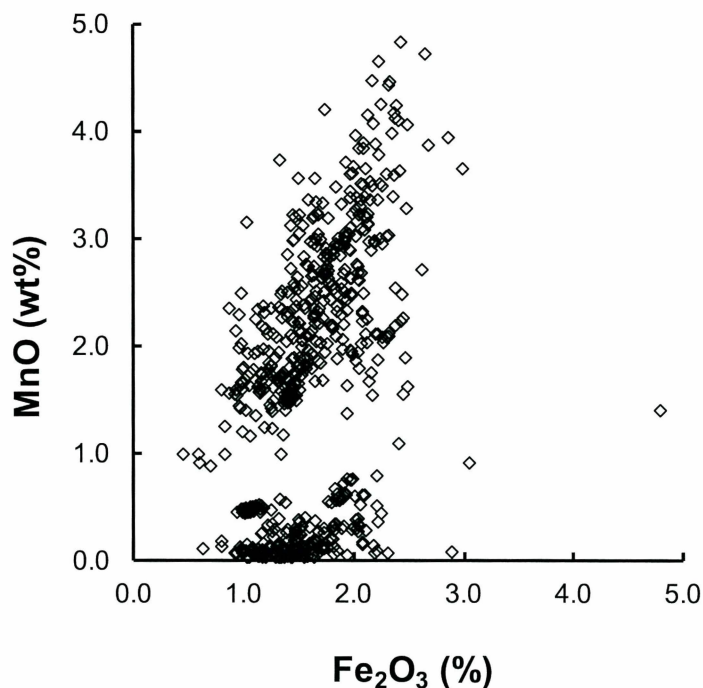


図 3-38 コバルト着色のガラスに含まれる Fe_2O_3 - MnO の含有量

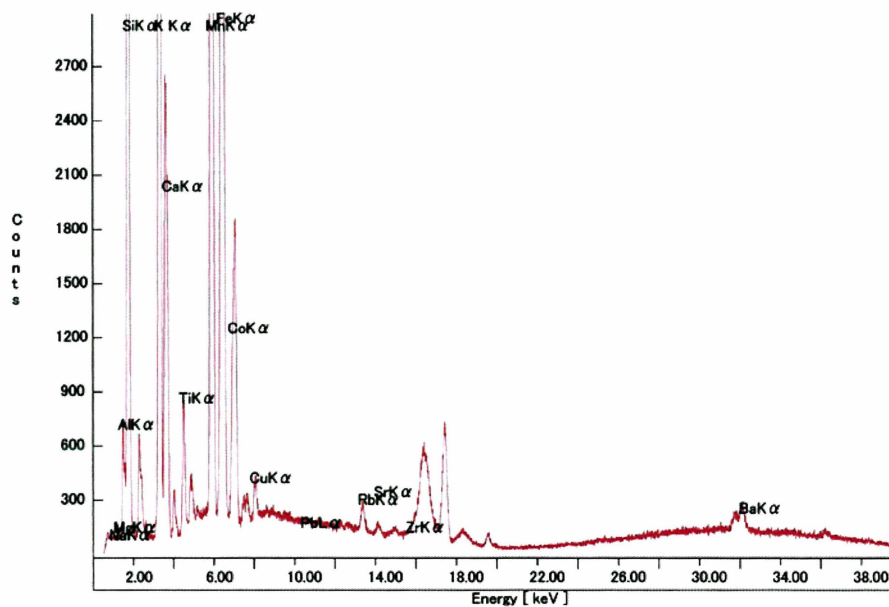


図 3-39 MnO 含有量の多いコバルト着色のガラスに含まれるバリウム (Ba)

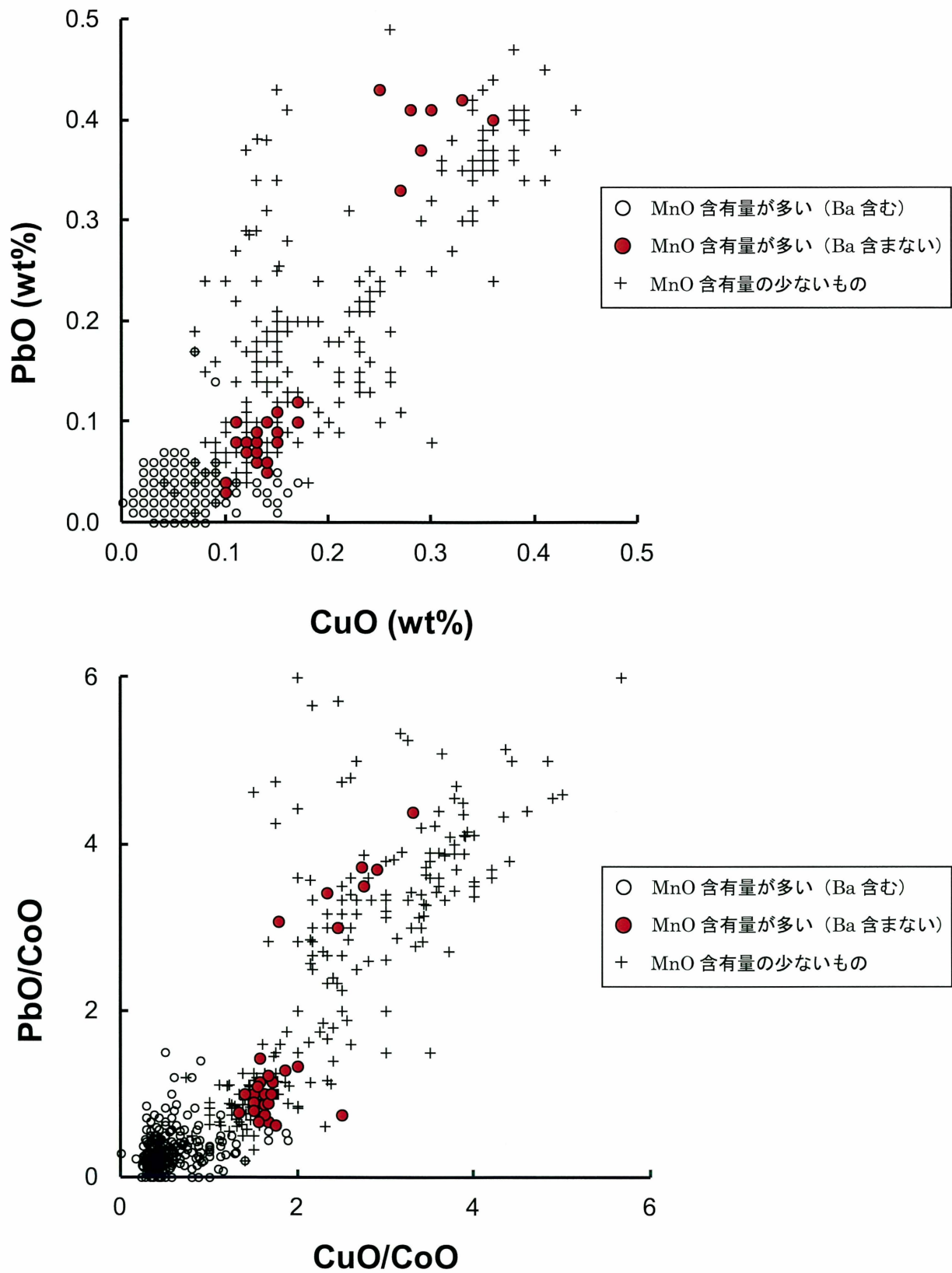


図 3-40 コバルト着色のガラスに含まれる CuO-PbO 含有量 (上) と含有量比 (下)

3-4-1-2 銅イオン

淡青色、青色、濃青色、濃緑色を呈するものは、酸化銅を 0.5～1 % 前後含有しており、銅イオンが主要な着色因子と推定される（表 3-11）。銅イオンによって着色されたガラスを図 3-41 に示す。銅イオンは酸化雰囲気中で Cu^{2+} として存在し、ガラスは青色に着色する（伊藤 1996）。淡青色や青色を呈するガラスは、 Cu^{2+} が主な着色因子と考えられる。これらのガラスには、微量の酸化鉛および酸化錫を含むものと含まないものがあり、着色剤として利用した銅原料が異なる可能性がある。とくに前者は、着色剤として青銅が用いられた可能性が指摘されている（肥塚 1995）。

濃青色のガラスは、酸化銅以外に、酸化マンガンを含む場合によっては 1 % 以上含有する特徴がある。酸化マンガンの含有量がとくに多いものでは、暗い灰色から黒色に近い色調となる場合もある（図 3-41(d)）。 Cu^{2+} の主要な透過帯である 500 nm 前後の波長域に Mn^{2+} の吸収帯が存在することから（井原・山本 1958, 村田ほか 1997）， Mn^{2+} が多量に存在すると Cu^{2+} の青色が目立たなくなる一方、可視光域の全透過率が低下し、灰色から黒色になると考えられる。なお、これら濃青色～黒色のガラスからは錫は検出されない。

濃緑色を呈するガラスは、酸化銅以外に酸化鉛を 0.3～1 % 程度含有する。酸化鉛の含有量が多いと、銅イオンは濃緑色を呈する $\text{Cu}^{2+} - \text{O} - \text{Cu}^+$ 結合子を生成すると言われて

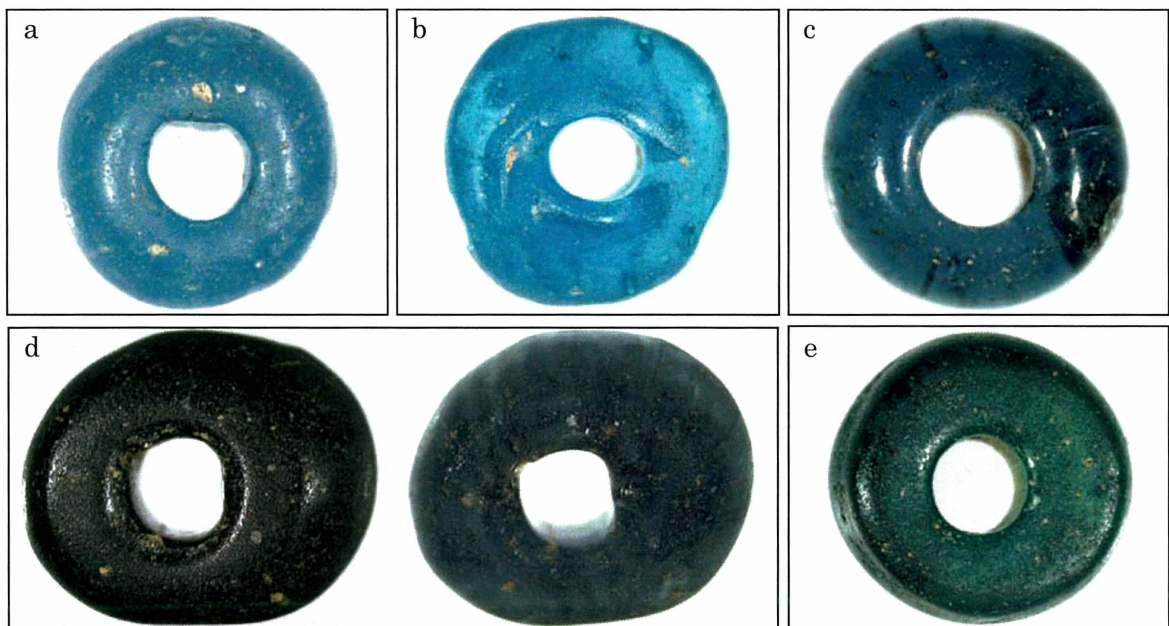


図 3-41 銅イオンによる着色

(a：淡青色，b：青色，c：濃青色，d：黒色に近い濃青色（左：落射光，右：透過光），e：濃緑色）

a～b：尾ノ上古墳（広島県福山市），c：円山古墳 6 区中層（滋賀県野洲市），

d：竈門寺原 1 号墳（熊本県和水町），e：半田山 G 支群 8・KF03（静岡県浜松市）

おり（伊藤 1996），鉛と銅イオンによって複合的に着色したとみられる。わずかに錫が検出される。

表 3-11 銅イオンによって着色されたガラスの代表的な分析値

No.	色調	重量濃度 (%)													Sn
		Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	P ₂ O ₅	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	CoO	CuO	PbO	
1	淡青色	0.7	0.4	5.2	76.9	-	13.7	0.6	0.16	0.02	0.60	-	1.51	0.14	検出
2	淡青色	0.5	0.2	4.9	77.6	-	13.6	0.5	0.16	0.02	0.47	-	1.70	0.20	検出
3	淡青色	18.0	0.5	10.3	64.3	-	2.2	2.1	0.40	0.04	0.83	-	0.86	0.20	検出
4	淡青色	17.0	0.3	10.1	65.6	-	1.7	2.2	0.60	0.11	1.22	-	0.88	0.15	検出
5	青色	13.8	2.1	4.4	69.3	1.2	3.4	2.9	0.23	0.12	1.02	-	1.41	0.02	-
6	青色	14.9	2.0	4.2	69.0	1.3	3.2	2.6	0.21	0.12	0.99	-	1.37	0.03	-
7	濃青色	11.7	0.9	7.6	72.4	-	1.7	2.5	0.29	0.42	1.50	-	0.95	0.02	-
8	濃青色	12.0	0.9	7.0	72.8	-	1.7	2.4	0.30	0.41	1.46	-	0.92	0.07	-
9	濃青～黒色	11.5	1.1	9.7	62.9	-	3.5	6.1	0.58	0.87	1.75	-	1.20	0.06	-
10	濃青～黒色	9.9	0.8	12.2	62.1	-	3.6	6.0	0.61	0.94	1.87	-	1.27	0.04	-
11	濃緑色	6.9	3.9	4.1	71.7	-	3.1	8.4	0.12	0.05	0.91	-	0.43	0.30	検出
12	濃緑色	10.8	4.3	3.4	68.3	-	3.0	8.2	0.12	0.05	0.76	-	0.65	0.44	検出

(注) 1～2：加茂倉田 SK87（広島県福山市），3～6：尾ノ上古墳（広島県福山市），
7～8：竈門寺原 1 号墳（福岡県春日市），7～8：宇津久志 1 号墳（京都府岸和田市），
9～10：国成古墳（熊本県和水町），11～12：半田山 G 支群 8・KF03（静岡県浜松市）

3-4-1-3 鉄イオン

黄褐色を呈するガラスは，酸化鉄を 2～6 % 含有しており，鉄イオンが主要な着色因子と推定される（表 3-12）。鉄イオンは，Fe³⁺が配位数 4 のとき（Fe³⁺/O₄），黄褐色を呈する（伊藤 1996）。褐色が強く，黒色に近い色調を呈するものもある（図 3-42(a)）。古代ガラスには，基礎ガラスの不純物成分として酸化鉄が常に含まれているが，黄褐色から黒色ガラスは，他の色調のものに比べて酸化鉄の含有量が多く，意図的に添加された可能性がある。前述の銅イオンとマンガンイオンによる黒色に近い濃青色ガラス（図 3-41(d)）と，落射光下で判別するのは困難である。

アクアマリンブルーおよび淡緑色を呈するガラス（図 3-42(d)(e)）は，少量の酸化鉄（0.4～0.9%）以外に着色に関与する成分が含まれないことから，鉄イオンによる着色である。ただし，酸化鉄の含有量が他の色調のガラスに比べてとくに多いとは言えず，基礎ガラスの不純物成分として少量含まれる鉄によって着色された可能性がある。

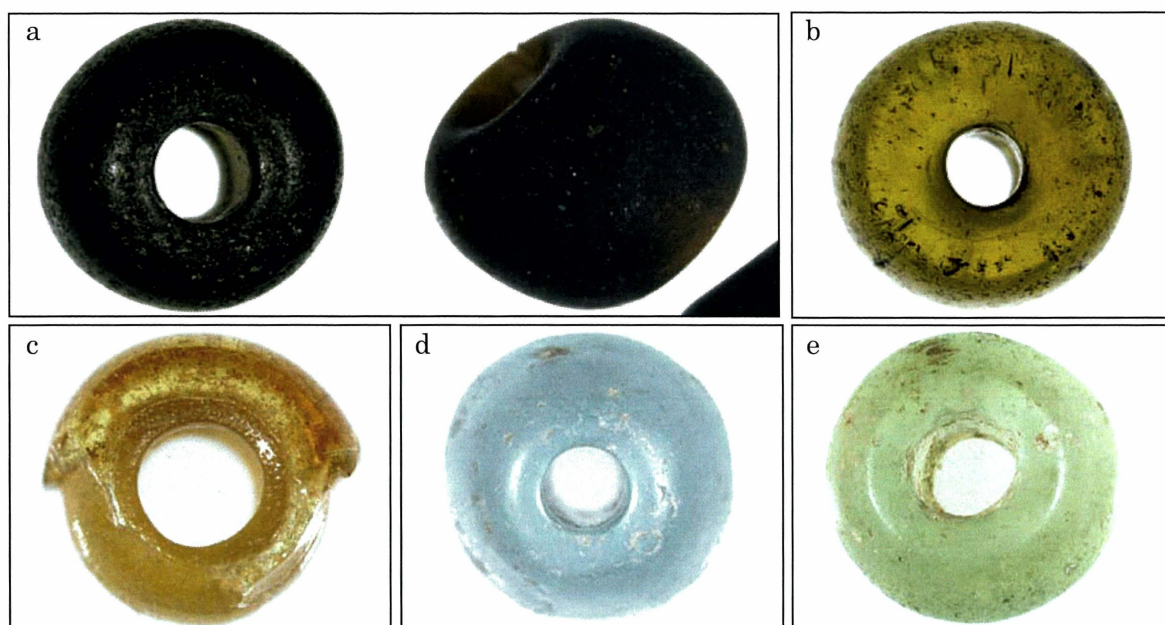


図 3-42 鉄イオンによる着色

(a : 黒色に近い褐色 (左 : 落射光, 右 : 透過光), b～c : 黄褐色, d : アクアマリンブルー, e : 淡緑色)

a : 飛鳥寺塔芯礎埋納物 (奈良県明日香村), b : 柏原 C-6 号墳 (福岡県福岡市),

c : 半田山 G 支群 8-KF07 (静岡県浜松市), d : 柏原 C-6 号墳 (福岡県福岡市),

e : 若王子 21 号墳 (静岡県藤枝市)

表 3-12 鉄イオンによって着色されたガラスの代表的な分析値

No.	色調	重量濃度 (%)											
		Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	CoO	CuO	PbO
1	褐色～黒色	14.9	1.3	10.6	64.8	2.1	2.1	0.75	0.16	3.10	-	0.02	0.02
2	褐色～黒色	12.2	1.2	11.6	65.9	2.3	3.2	0.58	0.10	2.77	-	0.03	0.01
3	黄褐色	12.5	5.2	5.2	60.9	5.0	8.4	0.25	0.13	2.30	-	0.02	0.04
4	黄褐色	3.1	4.7	5.2	69.1	3.8	7.4	0.22	0.26	5.99	-	0.05	0.01
5	アクアマリンブルー	0.2	0.6	2.3	84.4	10.2	1.6	0.05	0.02	0.38	-	0.01	0.03
6	アクアマリンブルー	0.6	0.9	2.4	84.6	9.2	1.8	0.06	0.02	0.37	-	0.01	0.01
7	淡緑色	1.8	3.0	5.2	79.1	4.0	5.7	0.15	0.04	0.90	-	0.02	0.03
8	淡緑色	8.7	4.3	3.8	70.2	3.7	8.3	0.10	0.06	0.71	-	0.01	0.04

(注) 1～2 : 三苦 B8 号墳 (福岡県福岡市), 3 : 柏原 C-6 号墳 (福岡県福岡市),

4 : 半田山 G 支群 8-KF07 (静岡県浜松市), 5～7 : 柏原 C-6 号墳 (福岡県福岡市),

8 : 若王子 21 号墳 (静岡県藤枝市)

3-4-1-4 マンガンイオン

前述したように、マンガンはコバルト着色や銅着色のガラスで複合的に発色に関与することもあるが、マンガンが単独で着色剤として利用されたと考えられるものもある。マンガンイオンは、酸化状態において Mn^{3+} として存在し、ガラスを紫色に着色する。マンガンイオンで着色されたガラスの色調は、基礎ガラスによりやや異なり、カリガラスでは赤紫色、ソーダ石灰ガラスでは紫褐色を呈する(図 3-43)。酸化マンガンを 0.4～6 % 含有する(表 3-13)。



図 3-43 マンガンイオンによる着色 (a: 赤紫色, b～c: 紫褐色)

a: 三雲・井原遺跡ヤリミゾ地区 15 号甕棺墓 (福岡県糸島市), b: 円山古墳 8 区 (滋賀県野洲市), c: 半田山 G 支群 8-KF03 (静岡県浜松市)

表 3-13 マンガンイオンによって着色されたガラスの代表的な分析値

No.	色調	重量濃度 (%)											
		Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	CoO	CuO	PbO
1	赤紫色	0.3	0.5	4.5	70.1	19.5	0.5	0.19	3.48	0.81	-	0.01	0.04
2	赤紫色	0.4	0.4	4.2	69.6	20.0	0.6	0.20	3.70	0.80	-	0.01	0.01
3	紫褐色(淡い)	12.1	0.9	9.0	70.3	2.5	2.3	0.77	0.37	1.54	-	0.03	0.04
4	紫褐色(淡い)	12.3	1.0	9.2	69.7	2.5	2.3	0.81	0.36	1.54	-	0.08	0.05
5	紫褐色	11.0	3.6	4.6	66.6	3.4	5.9	0.18	3.03	1.04	-	0.03	0.41
6	紫褐色	11.3	4.3	4.4	66.4	2.9	7.1	0.14	2.26	0.99	-	0.05	0.01

(注) 1～2: 三雲・井原遺跡ヤリミゾ地区 15 号甕棺墓 (福岡県糸島市),

3～4: 円山古墳 9・10 区 (滋賀県野洲市), 5～6: 半田山 G 支群 8-KF03 (静岡県浜松市)

3-4-2 金属コロイドによる着色

金・銀・銅などの金属元素をコロイド状態でガラス中に分散させて着色する方法で、それぞれ金赤、銀黄、銅赤と呼ばれる。弥生～古墳時代に流通した赤褐色不透明ガラス（図 3-44(a)）は、金属銅（Cu）のコロイドによる着色と推定されている（山崎 1987）。本研究で分析した資料でも、酸化銅を 1～2%前後含有することが確認された（表 3-14）。このような赤褐色不透明のガラス小玉は、インドネシア語で「偽真珠」を意味するムチサラ（Mutisalah）と呼ばれ、南インドや東南アジアに広く分布することが知られている（Fransis2002, 大賀 2001 など）。

この赤褐色不透明ガラスと着色技法が近似するものとして、橙色不透明ガラスがある（図 3-44(b)）。奈良県藤ノ木古墳で出土した橙色ガラス小玉からは、酸化第一銅（Cu₂O）の微細な結晶が検出され（村瀬 1993）、酸化第一銅のコロイド着色と考えられる。橙色不透明のガラスは、酸化銅の含有量が上述の赤褐色不透明ガラスと比べて多く、10%前後含まれる（村瀬 1993）。



図 3-44 金属コロイドによる着色（a：赤褐色（Cu コロイド）、b～c：橙色（Cu₂O コロイド））

a：甲山古墳玄室 7 区（滋賀県野洲市），b：藤ノ木古墳（奈良県斑鳩町）

表 3-14 金属コロイドによって着色されたガラスの代表的な分析値

No.	色調	重量濃度 (%)											
		Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	CoO	CuO	PbO
1	赤褐色	11.0	1.6	10.2	67.2	2.8	2.3	0.48	0.08	1.30	-	1.47	0.12
2	赤褐色	10.8	1.5	9.1	68.0	2.2	2.4	0.47	0.09	2.25	-	1.75	0.12
3	橙色*	13.7	0.5	9.0	57.2	1.8	2.8	0.5		3.3		10.0	0.7 Cl:0.5
4	橙色*	13.9	0.8	8.6	57.7	1.4	2.4	0.5		3.3		10.4	0.4 Cl:0.6

（注） 1：甲山古墳玄室 5 区（滋賀県野洲市）， 2：甲山古墳玄室 7 区（滋賀県野洲市），

3～4：藤ノ木古墳（奈良県斑鳩町）*村瀬（1993）より抜粋

3-4-3 結晶物質（顔料）の混入による着色

ガラス中に存在する結晶物質によって着色する方法もある。これには、結晶物質が熔融過程でガラス中に溶け込まずに分散するものと、熔融過程では溶け込むが冷却過程で微粒子として析出するものがある。

日本列島で出土する黄色および黄緑色ガラスには、顕微鏡下で微細な黄色不透明粒子が観察できる（図 3-45）。これらの粒子は大きさが不揃いで、一部に濃集していることも多く、顔料がガラス中に溶け込まずに残ったものと考えられる。熊本県小田良古墳出土の黄緑色ガラス小玉からは、人工黄色顔料である錫酸鉛（ PbSnO_3 ）が検出されている（白瀧ほか 2010）。本研究でも、飛鳥寺塔芯礎埋納物の黄色不透明ガラス小玉のラマン分光分析によって、ガラス中の黄色不透明粒子のラマンスペクトルを取得し、文献値（Welter *et al.* 2006）と比較した結果、 PbSnO_3 系の顔料であることを示す結果が得られた（図 3-46）。

なお、黄緑色ガラスの場合は、淡青色～緑色の透明ガラスの中に黄色不透明粒子が散在する。鉛と錫のほかに銅が検出され、錫酸鉛の黄色と銅イオンの青色によって複合的に着色したと推察される（表 3-15）。また、ガラス中に含まれる錫酸鉛の微粒子は丸みを帯びているものが多く、一部がガラスに溶け込んでいると考えられる。そのため、顔料粒子周辺ではガラス中の鉛の存在量が多くなり、銅イオンが $\text{Cu}^{2+} - \text{O} - \text{Cu}^+$ 結合子を生成する（伊藤 1996）ことで、ガラス自体も緑味が強く発色しているとみられる。

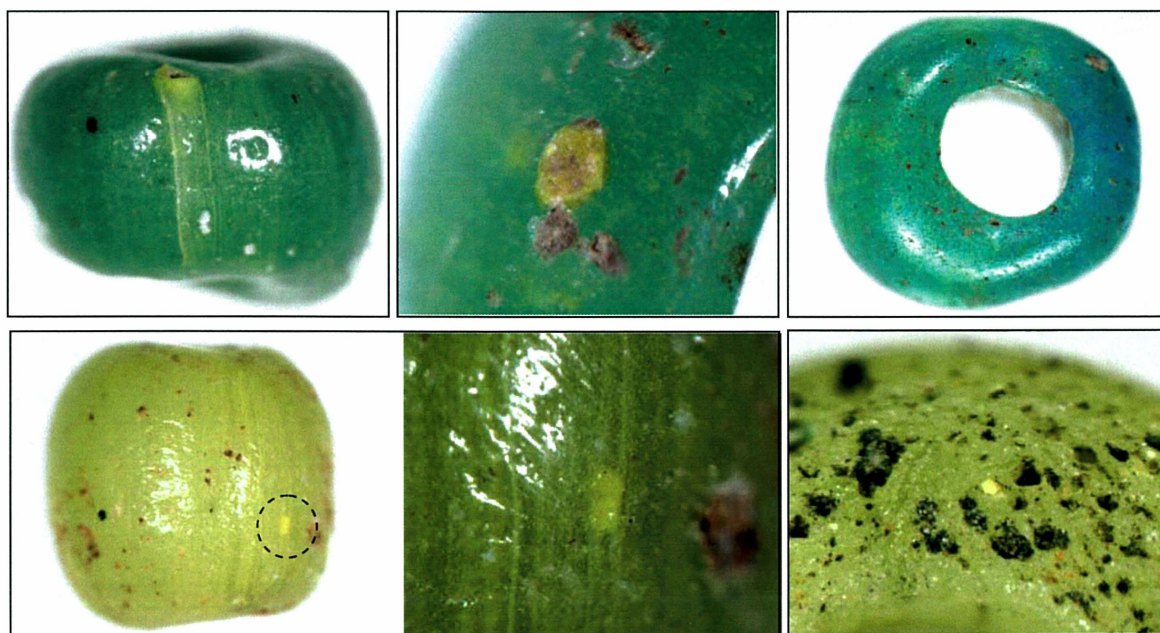


図 3-45 顔料の混入による着色

（a～b：黄緑色ガラス中の黄色顔料，c：青味が強い黄緑色，d～e：黄色ガラス中の黄色顔料）

a～b：甲山古墳玄室7区（滋賀県野洲市），c：宮の前1号箱式石棺墓（福岡県福岡市），

d：甲山古墳石棺北側流入土（滋賀県野洲市），e：飛鳥寺塔芯礎埋納物（奈良県明日香村）

表 3-15 顔料の混入によって着色されたガラスの代表的な分析値

No.	色調	重量濃度 (%)												Sn
		Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	CoO	CuO	PbO	
1	黄緑色	13.4	1.4	10.2	65.3	2.0	2.8	0.56	0.18	3.05	-	0.56	0.46	検出
2	黄緑色	12.0	1.0	11.1	67.0	2.2	2.6	0.42	0.08	2.65	-	0.30	0.48	検出
3	黄色	13.1	1.1	11.5	66.1	2.6	2.7	0.33	0.04	1.35	-	0.02	1.01	検出
4	黄色	13.0	1.0	11.5	66.4	2.7	2.4	0.32	0.04	1.39	-	0.02	1.02	検出
5	黄色	11.8	4.2	2.5	66.7	3.3	7.5	0.09	0.05	0.64	-	0.10	2.87	検出
6	黄色	12.3	4.9	2.7	63.3	3.3	8.0	0.12	0.04	0.65	-	0.06	4.41	検出

(注) 1～4：円山古墳6区中層（滋賀県野洲市），5～6：飛鳥寺塔芯礎埋納物（奈良県明日香村）

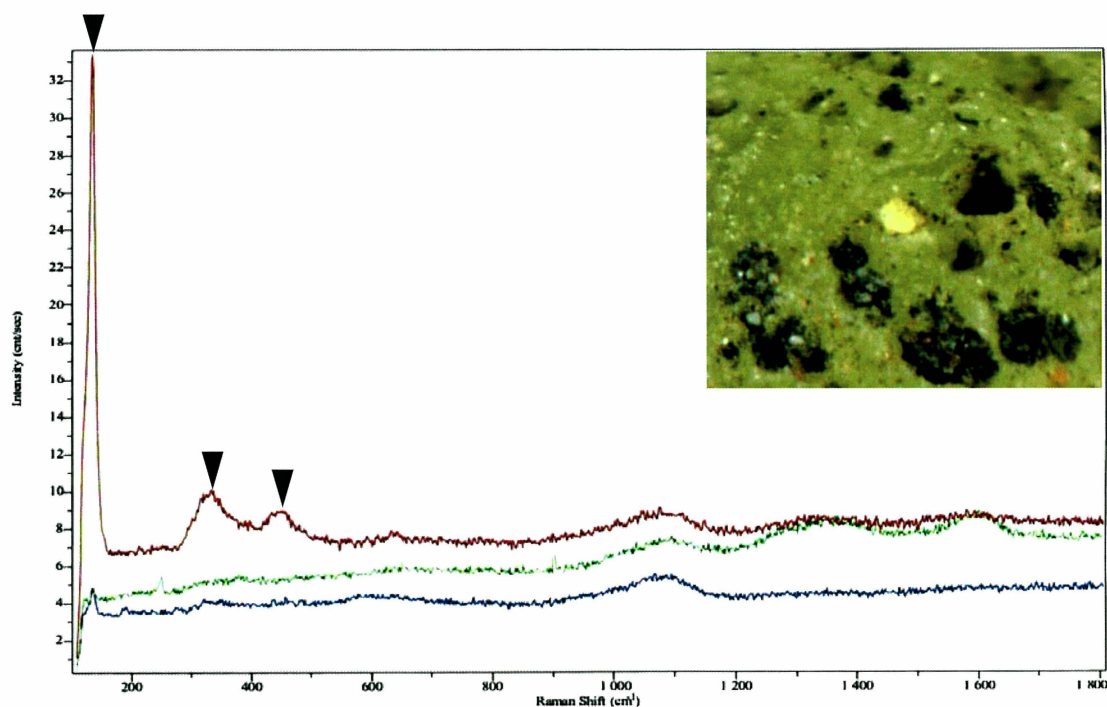


図 3-46 黄色不透明ガラス中に含まれる黄色粒子のラマンスペクトル（赤色スペクトル）（表 3-15 No.6）
140cm⁻¹，320 cm⁻¹，440 cm⁻¹付近にピークを観測した（▼）。青色および緑色スペクトルはガラス部分。

3-5 製作技法 - 基礎ガラス－着色剤の対応関係

ここでは、3-2～3-4で明らかにした弥生～古墳時代のアルカリ珪酸塩ガラスの製作技法と、基礎ガラスおよび着色剤の対応関係について考察する。

3-5-1 カリガラスの製作技法と着色剤

カリガラス製のガラス小玉は、引き伸ばし法(L)で製作されたコバルトイオンを用いた青紺色～紫紺色のものと銅着色の淡青色のものが大半を占め、その他の製作技法によるものや、これ以外の色調をもつものは極めて少ない。

本研究では、カリガラスを酸化アルミニウムと酸化カルシウムの含有量から、カリガラスⅠとカリガラスⅡに分類した(3-3-1)。基礎ガラス成分による分類と着色剤との関係をみると、カリガラスⅠはコバルトイオンで着色した青紺～紫紺色ガラス小玉に、カリガラスⅡは銅イオンで着色した淡青色ガラス小玉に対応することがわかった(図3-47)。コバルト着色によるカリガラスⅠの着色剤は、例外なく酸化マンガンが多く、バリウムが検出されるタイプである。また、銅着色のカリガラスⅡの着色剤は、すべて微量の鉛および錫が検出されるタイプであった。

カリガラスの中には、基礎ガラスの化学組成、着色剤、製作技法、製品としての形状のいずれかの点に関して、上記の2種類とは異なるものが存在する。それらは極めて少量であるが、生産地の所在を検討するうえでは注目される。このような事例を図3-48に示した。

まず、製作技法が特殊なものとして、型当て貫入法および型当て包み巻き法で製作されたカリガラス小玉が存在する。これらはコバルト着色による青紺色を呈し、基礎ガラスおよび着色剤の特徴は、上述の引き伸ばし法(L)による紺色ガラス小玉と共通する。

一方、色調および着色剤が特殊な例として、福岡県三雲・井原遺跡ヤリミゾ地区15号甕棺墓から出土したマンガンイオンによる赤紫色透明を呈するガラス小玉が挙げられる。製作技法は引き伸ばし法(L)である。基礎ガラスの化学組成もカリガラスⅠとカリガラスⅡを混合したような中間的な値を示し、特異な一群として認識できる。

ほかにも、カリガラスⅠとカリガラスⅡを混合したような中間的な値を示すものとして、酸化銅および酸化マンガンをそれぞれ1%前後含有し、ややくすんだ青色～青灰色を呈するガラスが存在することがわかった(図3-49)。こうした色調と着色剤の特徴をもつカリガラスはほとんど知られていなかったが、一定量の流通を確認した。これらのガラスは、鉛および錫をほとんど含まず、銅着色のカリガラスⅡとは着色剤の銅原料が異なると考えられる。

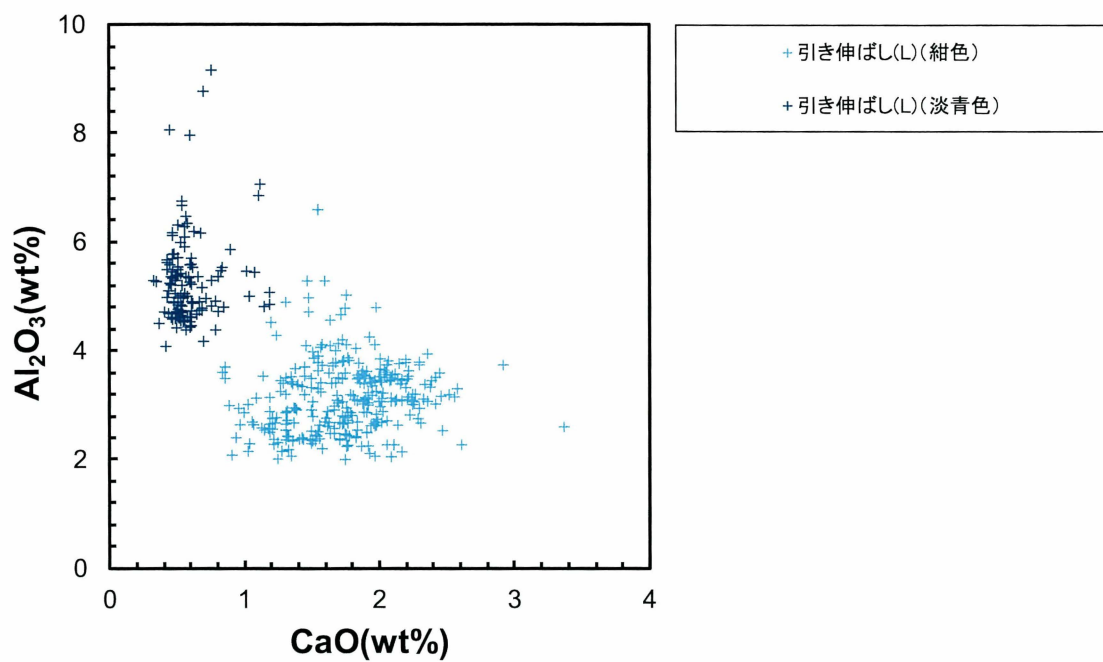


図 3-47 主要なカリガラス小玉の CaO - Al₂O₃ の含有量

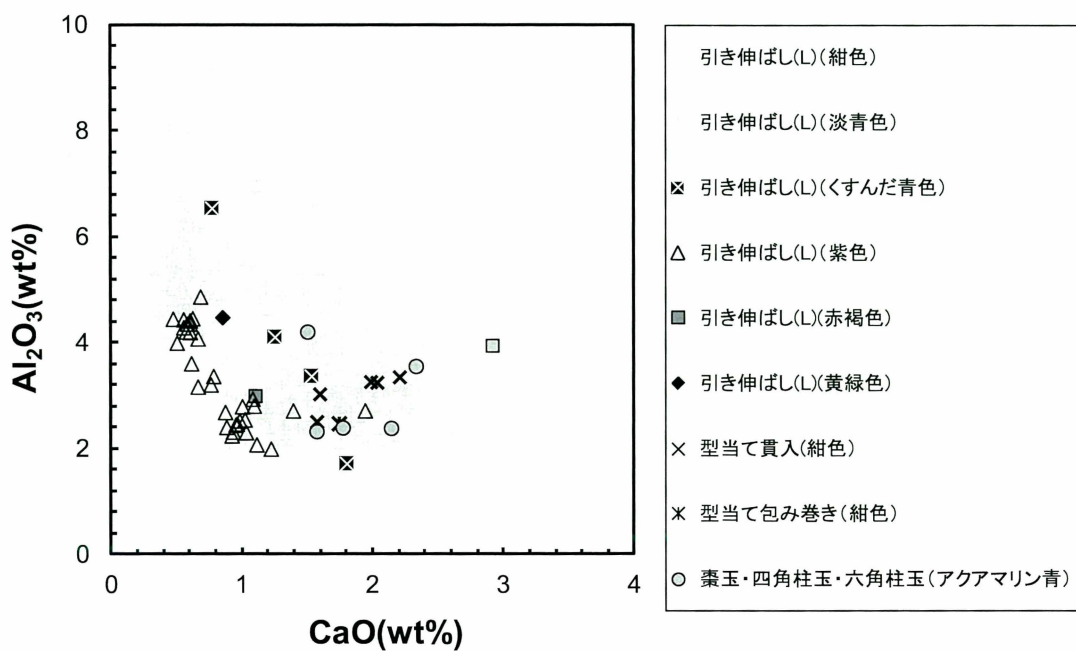


図 3-48 特殊なカリガラス小玉の CaO - Al₂O₃ の含有量

さらに、カリガラスの生産地を考えるにあたって重要な資料が存在する。北朝鮮の楽浪土城や中国広西省の後漢墓などから出土した、赤褐色不透明を呈するガラス小玉である（肥塚 1997）。赤褐色のカリガラスは、酸化アルミニウム含有量がやや多いものの、おおむねカリガラスⅠの領域に分布する。ただし、酸化マグネシウムを2%前後含有するなど、上記のいずれのカリガラスとも区別される可能性もある。現在のところ、日本列島での確実な出土例はない。

日本列島で出土する赤褐色のガラス小玉は、ほとんどがソーダ石灰ガラスⅢ（高アルミナソーダ石灰ガラス）である。着色技法には、同色の高アルミナソーダ石灰ガラス小玉と同様に、金属銅のコロイド技術が用いられたと推定される（Zhang 1991）。また、黄緑色半透明のカリガラスが福岡県桑原金屎一号墳より出土している（図 3-50）。顕微鏡下でガラス中に微細な黄色粒子が散在している様子を確認することができる。黄色粒子を直接同定することはできなかったが、錫と鉛が検出されたことから、人工黄色顔料である錫酸鉛（ PbSnO_3 ）の可能性が高い。基礎ガラスの化学組成はカリガラスⅡと類似し、製作技法は引き伸ばし法(L)である。日本列島における類例は、現状ではこの1点のみである。

着色剤および製品としての形状が特殊なものとしては、鉄によって発色したアクアマリンブルーを呈するガラス玉が存在する。この色調は、引き伸ばし法(L)で製作されたガラス小玉にはほとんど出現せず、六角柱玉、四角柱玉および棗玉などの特殊な形状のガラス玉に特徴的に認められる。これらアクアマリンブルーのカリガラスの酸化アルミニウムと酸化カルシウムの含有量は、おおむねカリガラスⅠの領域に分布し、その分析値を表 3-16 に示す。



図 3-49 くすんだ青色カリガラス小玉（引き伸ばし法(L)）
本村 SF04（静岡県掛川市）

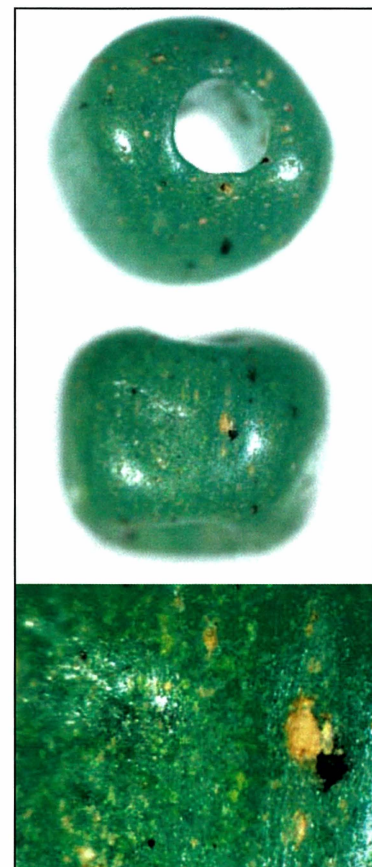


図 3-50 黄緑色のカリガラス小玉（引き伸ばし法(L)）
桑原金屎1号墳（福岡県福岡市）

表 3-16 特殊なカリガラス小玉の分析値

No.	重量濃度 (%)												製作技法	色調
	Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	CoO	CuO	PbO		
1	1.3	0.4	3.0	68.1	22.8	1.6	0.17	1.22	1.18	0.05	0.01	0.05	型当て貫入法	青紺色
2	0.7	0.5	3.3	67.2	22.7	2.0	0.17	1.68	1.47	0.08	0.03	0.04	型当て貫入法	青紺色
3	0.6	0.4	2.5	71.5	19.8	1.6	0.18	2.10	1.24	0.06	0.03	0.02	型当て貫入法	青紺色
4	0.7	0.4	2.5	74.3	17.7	1.7	0.15	1.22	1.12	0.05	0.03	0.03	型当て包み巻き法	青紺色
5	0.3	0.5	4.5	70.1	19.5	0.5	0.19	3.48	0.81	-	0.01	0.04	引き伸ばし法(L)	赤紫色
6	0.4	0.4	4.0	79.4	9.7	0.5	0.20	4.50	0.80	-	0.02	0.02	引き伸ばし法(L)	赤紫色
7	0.4	0.4	4.2	69.6	20.0	0.6	0.20	3.70	0.80	-	0.01	0.01	引き伸ばし法(L)	赤紫色
8	0.1	0.5	2.8	71.0	18.1	1.0	0.30	5.40	0.60	-	0.01	0.02	引き伸ばし法(L)	赤紫色
9	0.4	0.4	3.2	69.5	20.5	0.7	0.15	4.30	0.72	-	0.04	0.00	引き伸ばし法(L)	赤紫色
10	0.2	0.4	2.3	67.9	21.4	0.9	0.19	5.82	0.60	-	0.02	0.03	引き伸ばし法(L)	赤紫色
11	0.1	0.4	2.1	74.3	16.3	1.1	0.14	4.24	1.02	-	0.02	0.02	引き伸ばし法(L)	赤紫色
12	0.1	0.5	2.9	70.0	18.4	1.1	0.26	5.95	0.66	-	0.01	0.00	引き伸ばし法(L)	赤紫色
13	0.4	0.5	2.7	66.2	22.8	0.9	0.19	5.68	0.63	-	0.02	0.04	引き伸ばし法(L)	赤紫色
14	0.3	0.5	3.4	69.0	20.8	0.8	0.15	4.11	0.75	-	0.03	0.04	引き伸ばし法(L)	赤紫色
15	0.3	0.7	1.7	81.2	10.3	1.8	0.16	1.30	0.59	-	1.78	0.02	引き伸ばし法(L)	くすんだ青
16	0.3	0.5	4.1	86.8	4.6	1.3	0.09	0.73	0.33	-	1.13	0.03	引き伸ばし法(L)※	くすんだ青
17	0.0	0.3	3.4	65.5	23.7	1.5	0.13	0.94	0.78	-	3.50	0.04	引き伸ばし法(L)	くすんだ青
18	0.1	0.5	4.5	70.0	18.4	0.9	0.13	0.04	0.89	-	1.82	2.74	引き伸ばし法(L)	黄緑色
19	0.0	0.6	3.6	86.1	6.8	2.3	0.06	0.05	0.41	-	0.01	0.01	四角柱玉	アクアマリンブルー
20	0.6	0.9	2.4	84.6	9.2	1.8	0.06	0.02	0.37	-	0.01	0.01	橢玉	アクアマリンブルー
21	0.4	0.9	2.4	88.7	4.9	2.1	0.06	0.03	0.36	-	0.01	0.03	六角柱玉	アクアマリンブルー
22	0.80	2.50	3.00	71.30	17.80	1.10	0.05	0.24	1.15		2.28		引き伸ばし法(L)	赤褐色

(注) 1～4：宇津久志1号墳（京都府長岡京市），5～14：三雲・井原遺跡ヤリミゾ地区15号甕棺墓，
15：本村SF04（静岡県掛川市），16：愛野向山B10号墳第一主体（静岡県袋井市），
17：野方久保（第1次）1号甕棺墓（福岡県福岡市），18：桑原金屎1号墳（福岡県福岡市），
19：三苫B8号墳（福岡県福岡市），20～21：柏原C-6号墳（福岡県福岡市）
22：楽浪土城（朝鮮民主主義共和国）

3-5-2 古墳時代のソーダ石灰ガラスの製作技法と着色剤

古墳時代のソーダ石灰ガラスを，基礎ガラス成分の特徴から3種類に分類した（ソーダ石灰ガラスⅠ～Ⅲ）。3種類のソーダ石灰ガラスと製作技法の組み合わせには一定の傾向が認められる。

ソーダ石灰ガラスⅠ（ナatronガラス）は，連珠法（大），型当て包み巻き法，環状巻き付け法など，特殊な製作技法によるものが多い。ただし，引き伸ばし法(L)で製作され

たコバルト着色のガラス小玉にもソーダ石灰ガラスⅠと類似特徴を示す一群が存在する。しかし、それらは、連珠法(大)、型当て包み巻き法、環状巻き付け法によるものに比べて、酸化カルシウムがやや少ない領域に分布する(図 3-51)。さらに、引き伸ばし法(L)で製作されたものは、同一遺構で共伴した資料群でも酸化マグネシウムと酸化カリウムの含有量の変異が大きく、2%を超えるものもあることから(図 3-52)、これらをまとめてソーダ石灰ガラスⅠ'とし、典型的なソーダ石灰ガラスⅠと区別する。

古墳時代のソーダ石灰ガラスⅠの特殊な例としては、古墳時代中期前半に位置づけられる京都府宇津久志1号墳から出土した重層ガラス小玉が挙げられる。3点の重層ガラス小玉および重層ガラス小玉片が出土し、うち1点は内層と外層の両方が残存する。分析値を表 3-17 に示す。重層ガラス小玉は、いずれもソーダ石灰ガラスⅠであり、すべての資料からアンチモン(Sb)を検出した¹³⁾(図 3-53)。アンチモンは、代表的なナトリウムガラスであるローマ帝国のガラス¹⁴⁾で消色剤として利用されたことが知られている(Sayre and Smith 1974)。宇津久志1号墳出土の重層ガラス小玉は無色透明～半透明で、消色剤としてアンチモンを添加したと考えられる。なお、日本列島で出土する重層ガラス小玉には、金箔を挟んだもの(金層ガラス小玉)と銀箔を挟んだもの(銀層ガラス小玉)が存在するとともに、箔を挟まないものも認められる。本資料は、箔部分で金(Au)が検出された。

ソーダ石灰ガラスⅡ(植物灰ガラス)は、引き伸ばし法(B)および引き伸ばし法(変B)で製作したものが大多数である。引き伸ばし法(L)で製作されたソーダ石灰ガラスⅡの確実な例はない。また、引き伸ばし法(B)で製作されたものは、コバルトイオンによる青紺色ガラス小玉に限られる。一方、引き伸ばし法(変B)で製作されたガラス小玉には、コバルトイオンで着色された青紺色、銅イオンによる濃緑色および淡青色、マンガンイオンによる紫褐色、錫酸鉛を用いた黄色および黄緑色など、様々な色調がある。

これまで、ガラス小玉の色調の多様性を実現したのは、高アルミナソーダ石灰ガラス(本論文におけるソーダ石灰ガラスⅢ)と考えられてきた(肥塚 1995)が、ソーダ石灰ガラスⅡにも多彩な色調のものが存在することが明らかとなった。引き伸ばし法(変B)で製作されたガラス小玉は、ソーダ石灰ガラスⅡの中でも酸化マグネシウムおよび酸化カリウムが多い値でまとまる(図 3-52)。

上記以外にも、いくつかのソーダ石灰ガラスⅡの小玉がわずかに存在する。一つは、引き伸ばし法(B)もしくは引き伸ばし法(L)で製作された淡青色および黄色のガラス小玉である(図 3-54)が、製作技法の詳細は判断材料となる痕跡が少なく、不明であった。淡青色のものは、酸化銅を1%前後含有しており、銅イオンによる着色である(表 3-18)。黄色のものは、黄色不透明粒子を含み、錫および鉛が検出されることから、錫酸鉛で着色された可能性が高い。

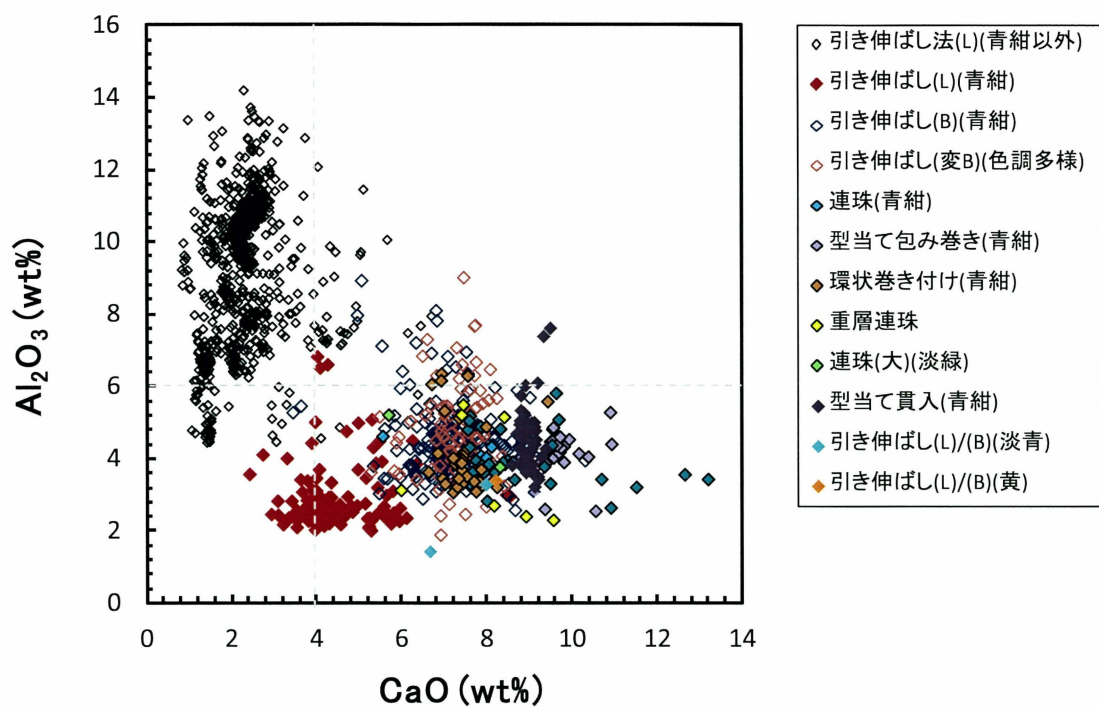


図 3-51 ソーダ石灰ガラスの CaO - Al_2O_3 含有量（古墳時代）

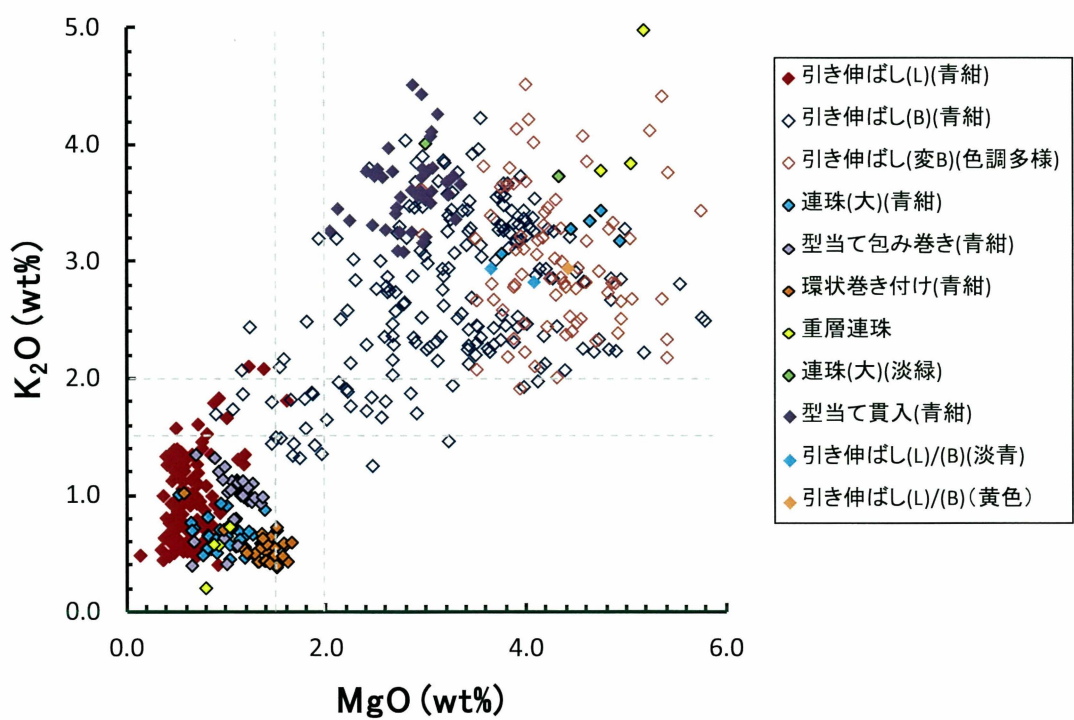


図 3-52 ソーダ石灰ガラス ($\text{Al}_2\text{O}_3 < 6\%$) の MgO - K_2O 含有量（古墳時代）

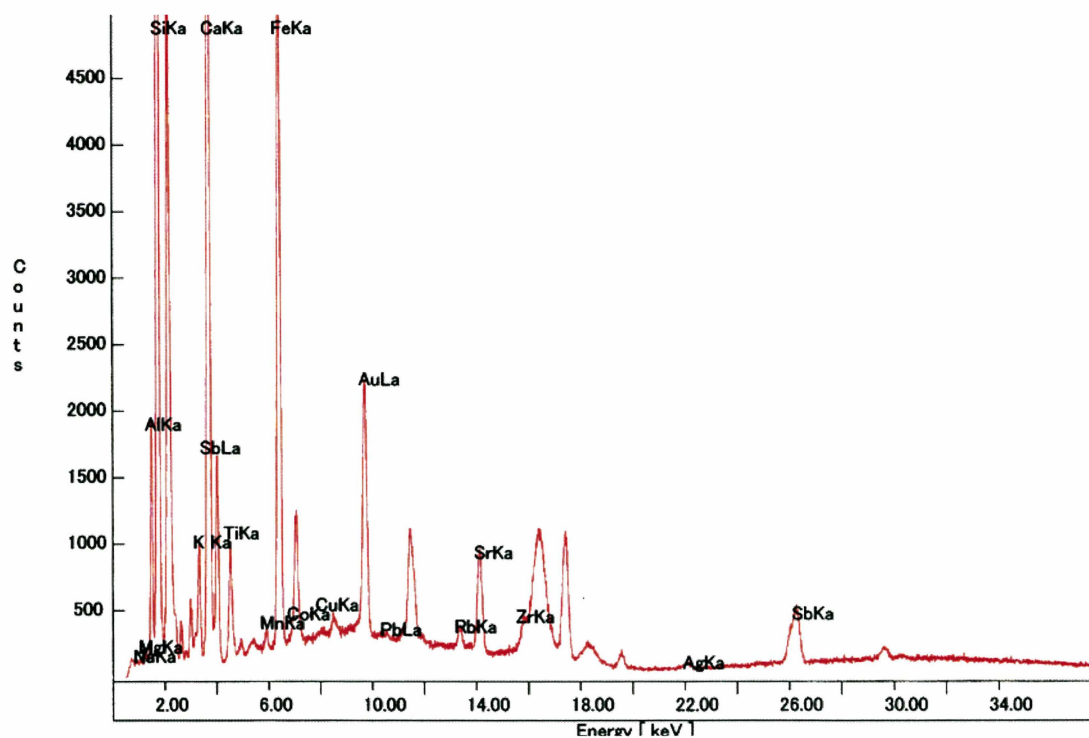


図 3-53 ソーダ石灰ガラス I の重層ガラス小玉の蛍光 X 線スペクトル

表 3-17 ソーダ石灰ガラス I の重層ガラス小玉の分析値

No.	重量濃度 (%)												Sb
	Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	CoO	CuO	PbO	
1	20.2	0.9	2.3	65.6	0.6	9.6	0.11	0.03	0.57	-	0.02	0.01	検出
2	10.4	0.8	3.1	79.0	0.2	6.0	0.07	0.01	0.30	-	0.01	0.02	検出
3	19.2	0.9	2.4	67.2	0.6	8.9	0.10	0.04	0.56	-	0.01	0.03	検出
4	16.5	1.0	2.7	70.0	0.7	8.2	0.09	0.04	0.53	-	0.01	0.03	検出

(注) 1～4：宇津久志 1 号墳（京都府長岡京市）

1（外層）と 2（内層）は同一個体。

表 3-18 ソーダ石灰ガラスⅡの特殊なガラス小玉の分析値(引き伸ばし法(L)もしくは引き伸ばし法(B))

No.	重量濃度 (%)												Sn	色調
	Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	CoO	CuO	PbO		
1	14.5	3.7	1.4	67.6	2.9	6.7	0.05	0.04	0.76	0.01	1.26	1.03	検出	淡青色
2	10.1	4.1	3.3	69.6	2.8	8.0	0.09	0.05	0.75	0.01	0.83	0.34	検出	淡青色
3	9.0	4.4	3.4	68.1	2.9	8.2	0.10	0.31	0.65	0.01	0.03	2.82	検出	黄色

(注) 1 : 宇津久志 1 号墳 (京都府長岡京市), 2 : 三苦 B 8 号墳 (福岡県福岡市),

3 : 甲山古墳石棺北側流入土 (滋賀県野洲市)



図 3-54 ソーダ石灰ガラスⅡの特殊なガラス小玉 (左 : 三苦 B 8 号墳, 右 : 甲山古墳石棺北側流入土)

連珠法で製作された大型の青紺色のガラス小玉にも、ソーダ石灰ガラスⅡが存在する。また、連珠法による大型品の中で鉄イオンによる淡緑色のものは、すべてソーダ石灰ガラスⅡであった。さらに、日本列島で出土する重層ガラス小玉の多くがソーダ石灰ガラスⅡに相当することがわかった（図 3-55, 3-56）。

一方、東大寺金堂（大仏殿）出土の型当て貫入法によって製作されたガラス小玉も、ソーダ石灰ガラスⅡであった。いずれも、コバルトイオンによる青紺色を呈する。東大寺金堂の鎮壇具には、カリガラスなど弥生～古墳時代に流通したガラス小玉が含まれるが、宋代の中国で発明されたと考えられているカリウム鉛ガラス（山崎 1987）も含まれ、様々な時期のものが混在する（田村 2012）。そのため、本資料の帰属時期は明らかでないが、ソーダ石灰ガラスⅡと型当て貫入法の組み合わせが、古墳時代にもすでに存在した可能性は否定できない。

ソーダ石灰ガラスⅢ（高アルミナソーダ石灰ガラス）は、大半が引き伸ばし法(L)で製作されたものであった。色調には、コバルトイオンによる青紺色および淡紺色、銅イオンによる淡青色、青色および濃青色～黒色、鉄イオンによる褐色～黒色、マンガンイオンによる紫褐色、コロイド着色による赤褐色および橙色、錫酸鉛を混入した黄緑色および黄色がある。アルカリ珪酸塩ガラスに見られるほとんどの色調が出現する。

引き伸ばし法(L)以外では、連珠法で製作した大型品のうち、銅イオンによる濃青色および淡青色のものがソーダ石灰ガラスⅢであった。銅イオンによる濃青色のものは、型当て包み巻き法で製作されたものにも確認される。このほか、重層ガラス小玉にもソーダ石灰ガラスⅢのものがわずかながら存在する（図 3-55）。

ソーダ石灰ガラスⅠ～Ⅲのいずれにも当てはまらないものに、連珠法で製作された小型の青色ガラス小玉と、型当て貫入法による青色ガラス小玉がある。酸化アルミニウム含有量が 4～5%，酸化カルシウム含有量が 3～4%と、どちらも中程度の値を示す（図 3-57）。酸化マグネシウムが 2%前後、酸化カリウム含有量が 2～4%と比較的多いことから、植物灰を融剤に用いた可能性もある（図 3-58）。また、ほかの種類のガラスに比べて、リン（P）が強く検出された。墳墓出土資料を非破壊で測定しているため、リンの由来には注意する必要があるが、同一遺構から出土した資料でも、この種類のみリンが検出されている（図 3-59, 3-60）。これらは、酸化銅を 2%程度含有し、銅イオンが主な着色因子であるが、錫や鉛はほとんど検出されない。

なお、型当て貫入法による青色ガラス小玉は、引き伸ばし法(L)による淡青色のソーダ石灰ガラスⅢとしばしば共伴することが指摘されている（大賀 2002）。本研究でも、広島県尾ノ上古墳出土品から、この 2 種類のガラス小玉を検出した。引き伸ばし法(L)によるものは典型的なソーダ石灰ガラスⅢであり、銅原料に由来すると推定される鉛と錫が検出された。これらのガラスでは、基礎ガラスと着色剤の両方に差異が認められる。

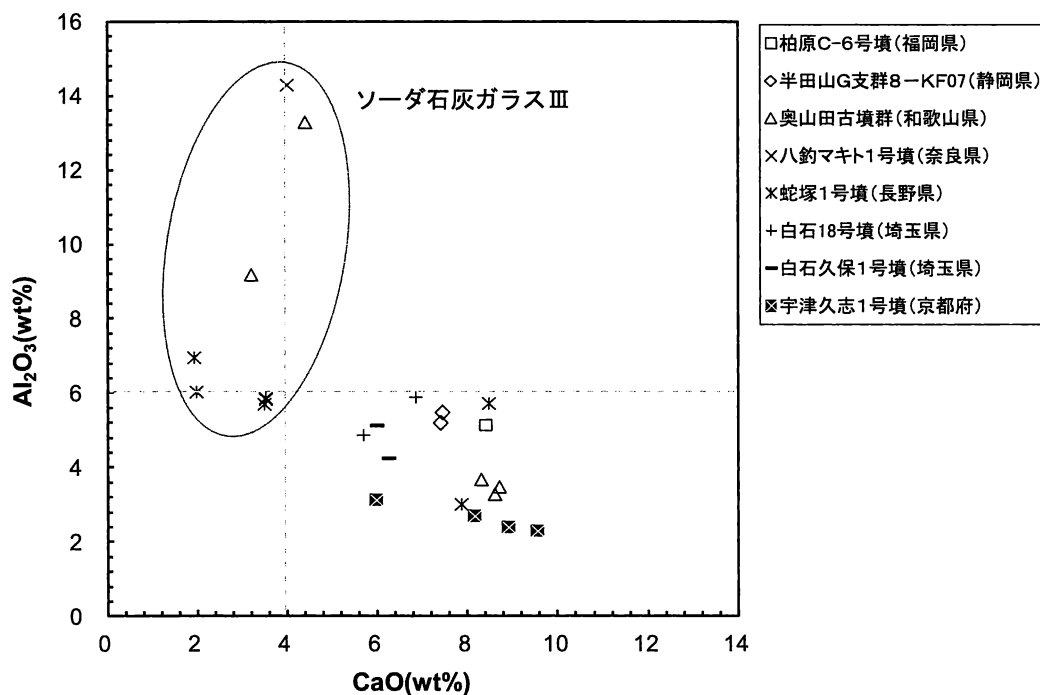


図 3-55 日本出土の重層ガラス小玉の $\text{CaO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3$ 含有量

分析値の出典は、奥山田古墳群：出縄ほか 2002, 八釣マキト 1 号墳：肥塚 2001, 蛇塚 1 号墳：小泉 2004, 白石 18 号墳：小泉 2003, 白石久保 1 号墳：小泉 2003, その他は筆者分析，未報告。

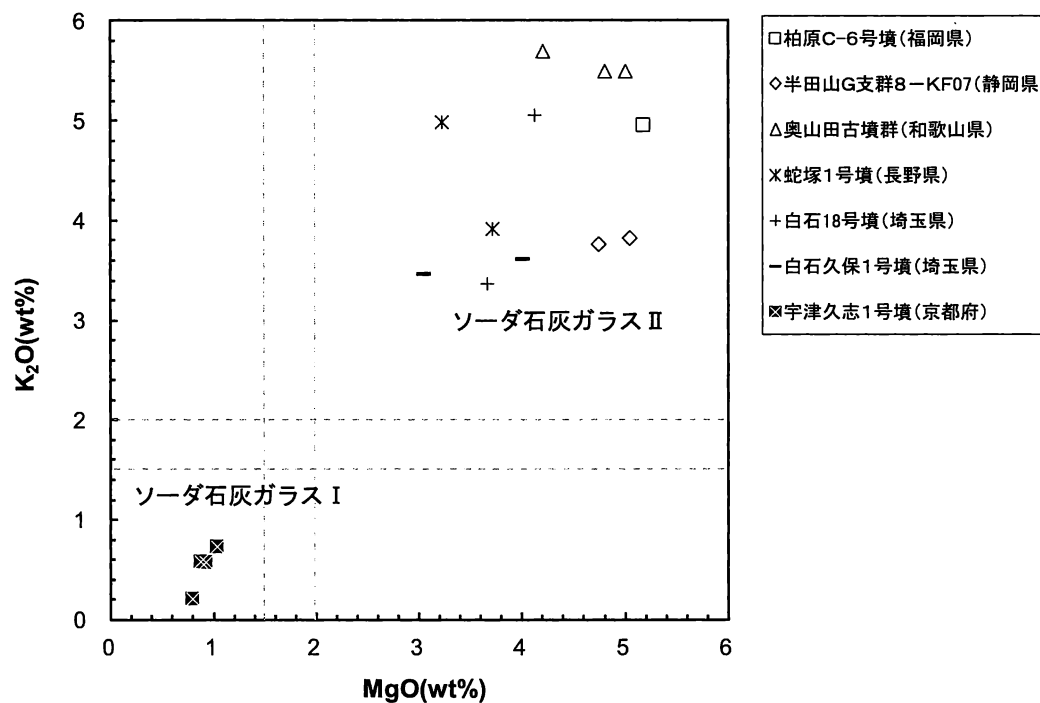


図 3-56 日本出土の重層ガラス小玉の $\text{MgO}\cdot\text{K}_2\text{O}$ 含有量（ソーダ石灰ガラスⅢ以外）

分析値の出典は，同上。

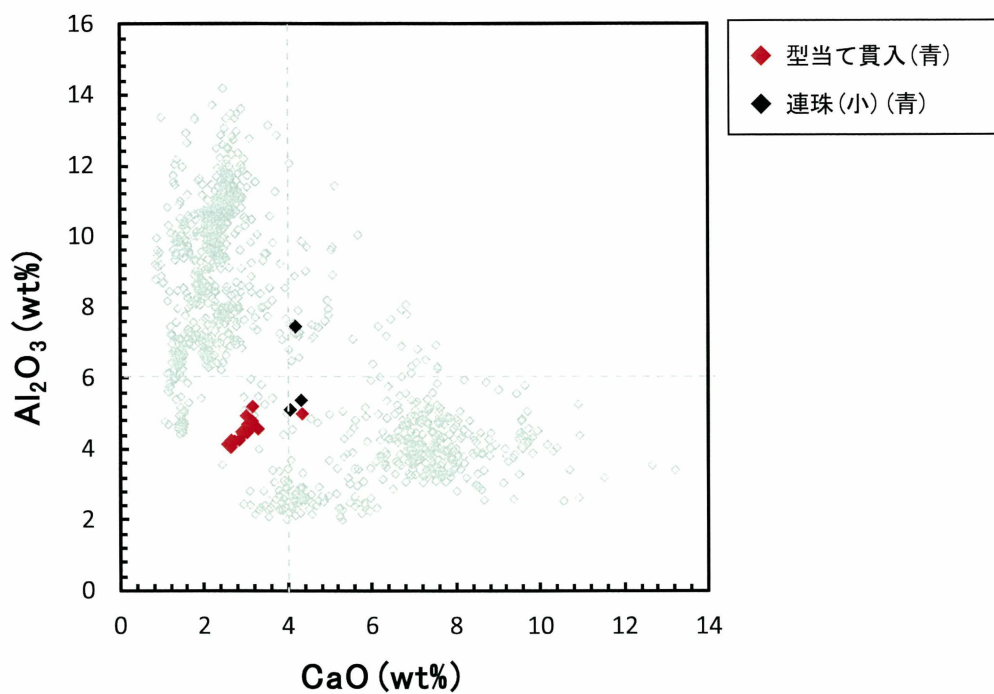


図 3-57 型当て貫入法および連珠法（小）によるガラス小玉（青）の CaO - Al_2O_3 の含有量

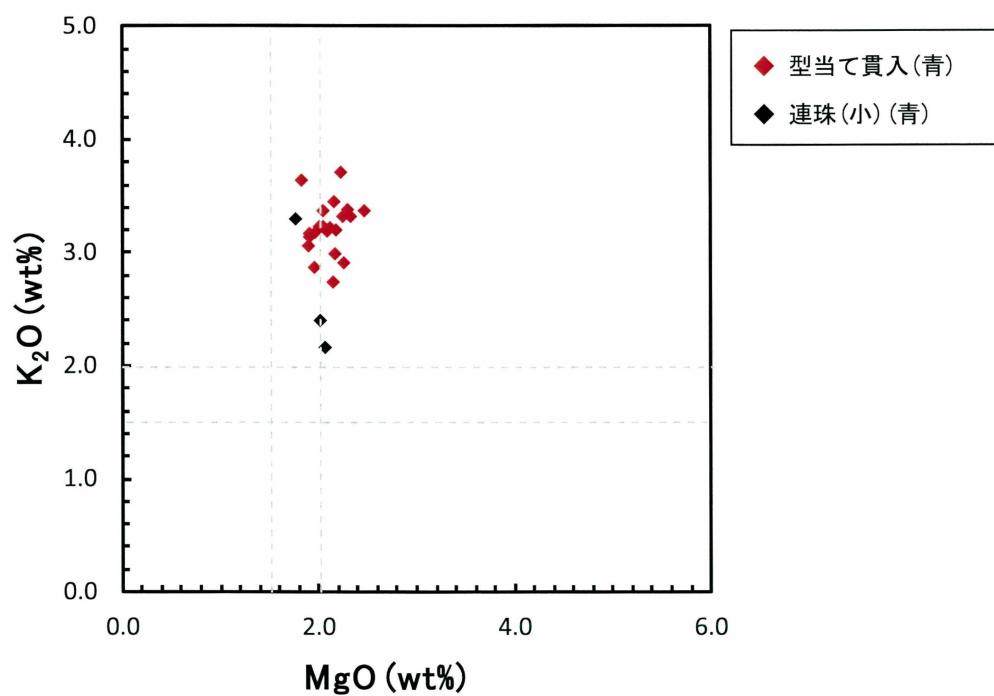


図 3-58 型当て貫入法および連珠法（小）によるガラス小玉（青）の MgO - K_2O 含有量

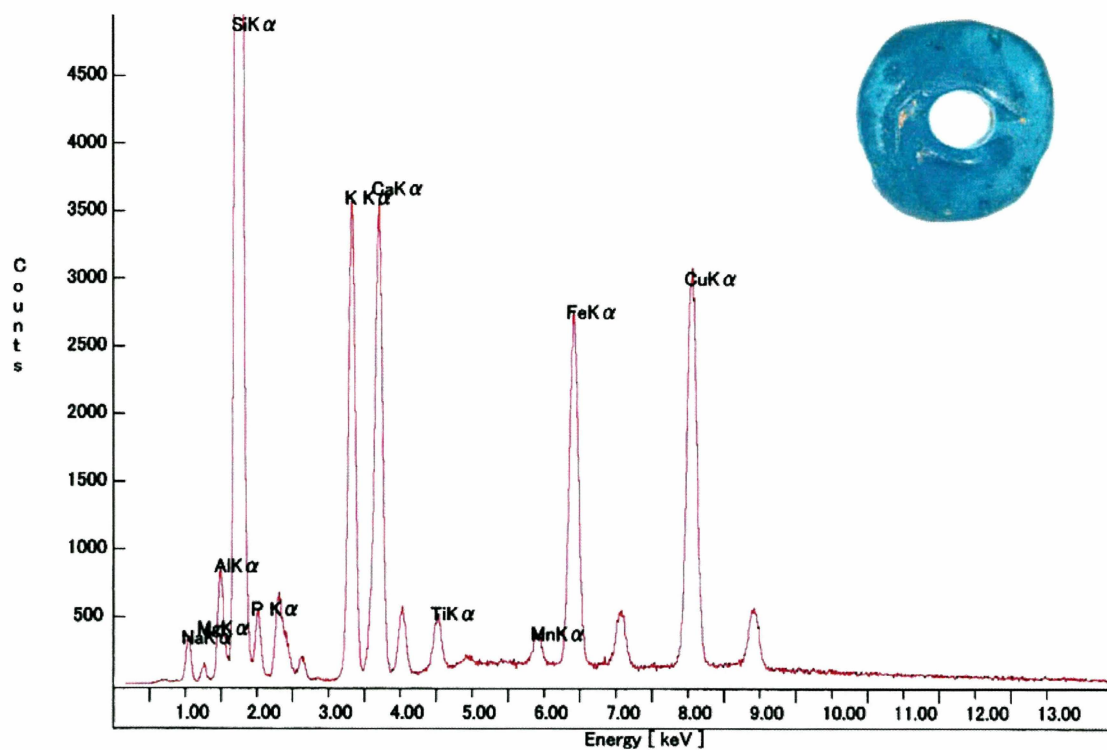


図 3-59 型当て貫入法によるガラス小玉（青）の蛍光 X 線スペクトル（尾ノ上古墳（広島県福山市））

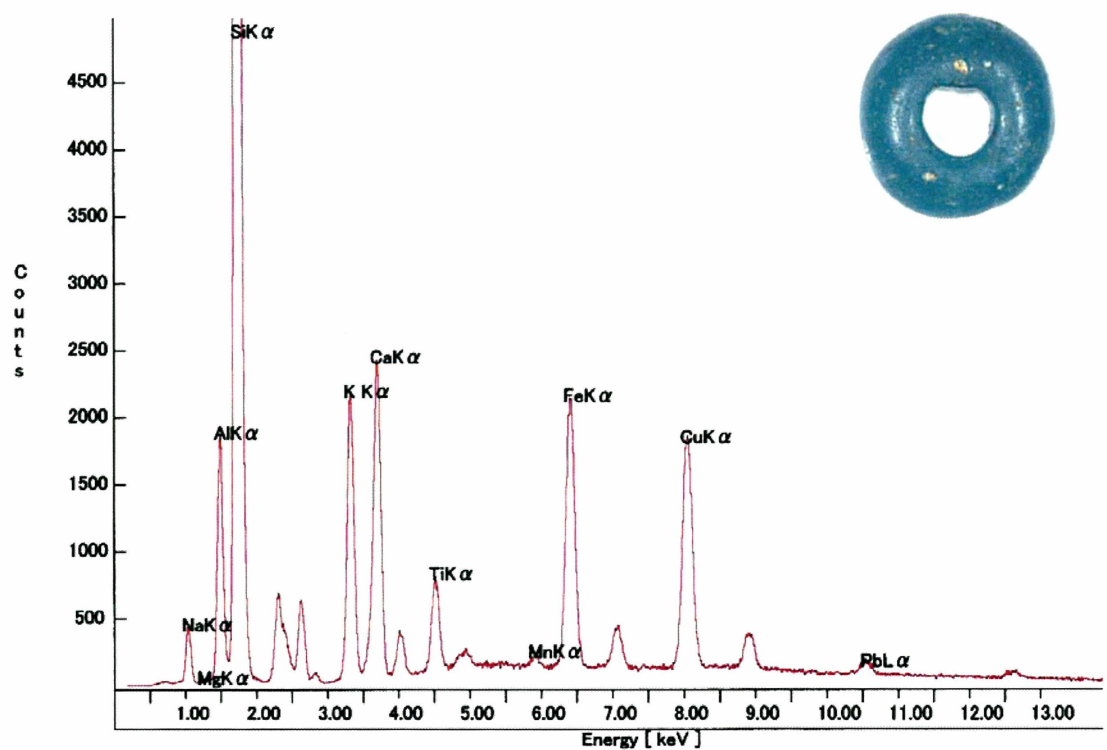


図 3-60 引き伸ばし法(L)によるガラス小玉（淡青色）の蛍光 X 線スペクトル（尾ノ上古墳（広島県福山市））

3-5-3 弥生時代のソーダ石灰ガラスの製作技法と着色剤

3-4において、弥生時代のソーダ石灰ガラスは、ブリル（1993）の提示した基準では低アルミナソーダ石灰ガラスと高アルミナソーダ石灰ガラスを明確に区別できないことを示した。ここでは、製作技法と着色剤との関係から弥生時代のソーダ石灰ガラスを再検討する。

弥生時代のソーダ石灰ガラスは、ほとんどが引き伸ばし法(L)で製作されたものであり、それ以外のものは極めて少ない。引き伸ばし法(L)による弥生時代のソーダ石灰ガラスの色調は、コバルトイオンによる青紺色および淡紺色、錫酸鉛（ PbSnO_3 ）を混入した黄緑色、および金属銅コロイドによる赤褐色にほぼ限られる。これらのガラス小玉の酸化アルミニウム及び酸化カルシウムの含有量をグラフ上にプロットすると、色調ごとにまとまって分布することが明らかとなった（図 3-61）。

青紺色および淡紺色のガラス小玉は、いずれもコバルトイオンによる着色であるが、色調がやや異なると同時に、大きさにも差異が認められる。青紺色を呈するものは、外径が5 mm前後の大型品が中心であるのに対し、淡紺色のものは、外径が3 mm前後の小型品が多い。それらは、酸化アルミニウムおよび酸化カルシウムの値からも明確に区別できる。青紺色のものは、酸化アルミニウムが少なく、酸化カルシウムが多い領域に分布する。酸化マグネシウムと酸化カリウムの両成分が少ないものが多いが、一部に酸化カリウムが2%を超えるものがある。こうした特徴は、古墳時代の資料でソーダ石灰ガラスⅠ'と分類したものと一致する（図 3-63）。一方、淡紺色のものは、ブリル（1993）の提示する典型的な高アルミナソーダ石灰ガラスの領域に分布することから、ソーダ石灰ガラスⅢに属すると理解できる。さらに、淡紺色のものは、酸化マグネシウムが少ない一方、酸化カリウムが少ない領域から多い領域まで連続的に分布し、ソーダ石灰ガラスⅢの特徴に一致する（図 3-62）。淡紺色ガラス小玉の中は、古墳時代にも製作技法および色調が類似する資料が存在する。古墳時代と弥生時代の淡紺色ガラス小玉は、酸化アルミニウムと酸化カルシウム、酸化マグネシウムと酸化カリウムの値が同じ領域に分布する（図 3-64）。

錫酸鉛（ PbSnO_3 ）を混入した黄緑色ガラス小玉は、酸化アルミニウムと酸化カルシウムの含有量がブリル（1993）の提示した高アルミナソーダ石灰ガラスと低アルミナソーダ石灰ガラスの境界付近に分布する。酸化マグネシウムと酸化カリウムの含有量をみると、酸化マグネシウムは比較的少なく、酸化カリウムが少ないものから多いものまで連続的に分布する。このような酸化マグネシウムと酸化カリウムの分布傾向は、ソーダ石灰ガラスⅢの特徴を示していると言える。一方、古墳時代の黄緑色ガラス小玉は、酸化アルミニウムおよび酸化カルシウムの含有量が典型的な高アルミナソーダ石灰ガラスの領域に分布する（図 3-64）。弥生時代と古墳時代の黄緑色ガラス小玉の基礎ガラスの化

学組成の差異は、ソーダ石灰ガラスⅢの中での時期差と理解することができる。

銅コロイドによる赤褐色ガラス小玉も、弥生時代と古墳時代の両時代に流通し、形態や色調も類似する。ただし、時代によって基礎ガラスの化学組成が異なる。酸化アルミニウムおよび酸化カルシウムの含有量において、古墳時代は典型的な高アルミナソーダ石灰ガラスの領域に分布するのに対し、弥生時代は酸化アルミニウムが少なく、酸化カルシウムの値が多い傾向にある（図 3-64）。酸化カリウムは、少ないものから多いものまで連続的に分布するが、酸化マグネシウムの値が2%を超えるものが多い。一部は融剤に植物灰を用いた可能性もある。

ただし、酸化マグネシウムについては、同じ着色技法のカリガラスにも2%程度含まれており、着色に関与する成分である可能性も想定される。酸化マグネシウムが着色に関与する成分であった場合、酸化カリウム含有量が少ないものから多いものまで連続的に分布するという傾向は、むしろソーダ石灰ガラスⅢの特徴を示していると言える。酸化アルミニウムが多い資料が一定量存在することや、古墳時代の類例がソーダ石灰ガラスⅢであることから、弥生時代の赤褐色ガラス小玉もソーダ石灰ガラスⅢと考えることができるだろう。

以上のように、弥生時代の引き伸ばし法(L)によるガラス小玉に関しては、青紺色のものをソーダ石灰ガラスⅠ'、淡紺色、黄緑色、赤褐色のものをソーダ石灰ガラスⅢと判断した。

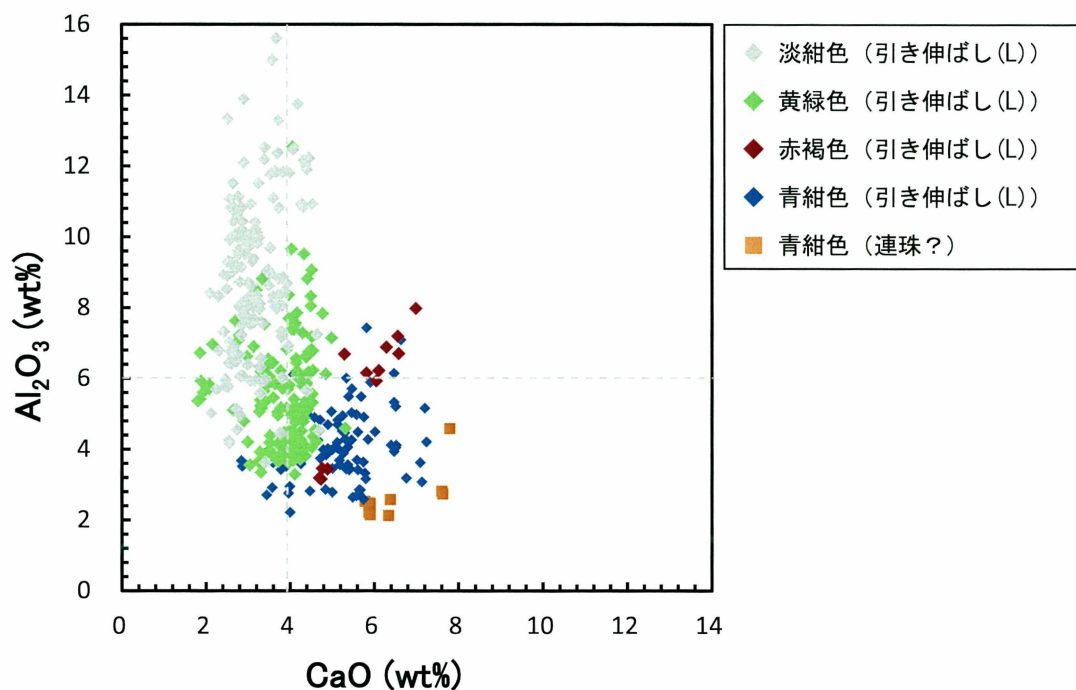


図 3-61 弥生時代のソーダ石灰ガラスの Al_2O_3 -CaO 含有量（色調および製作技法別）

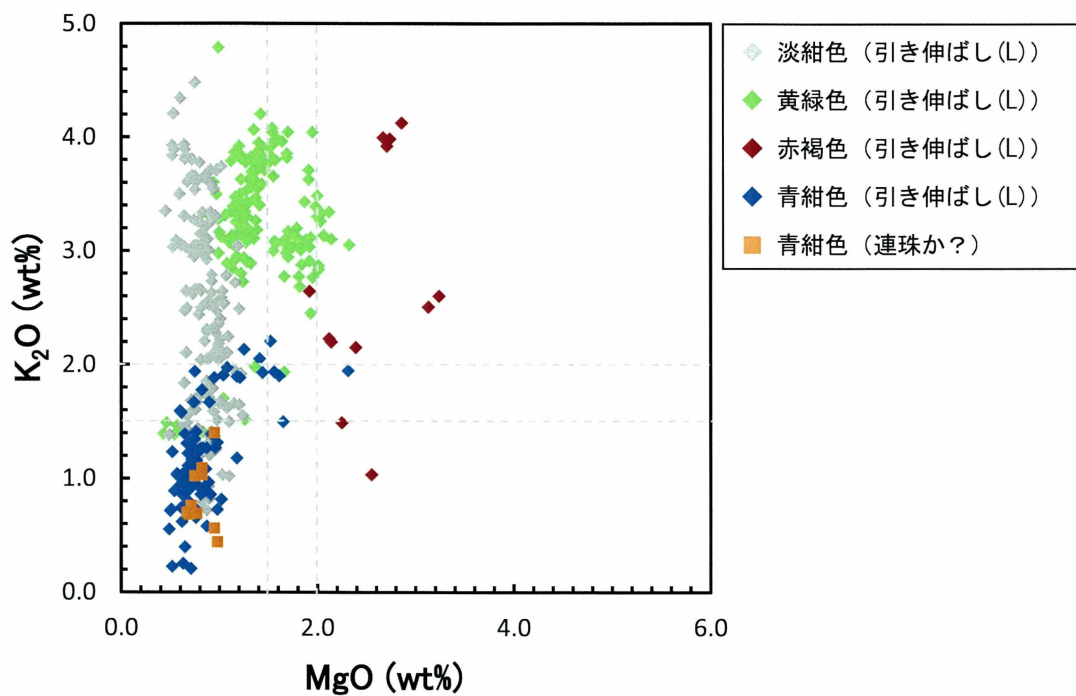


図 3-62 弥生時代のソーダ石灰ガラスの MgO・K₂O 含有量（色調および製作技法別）

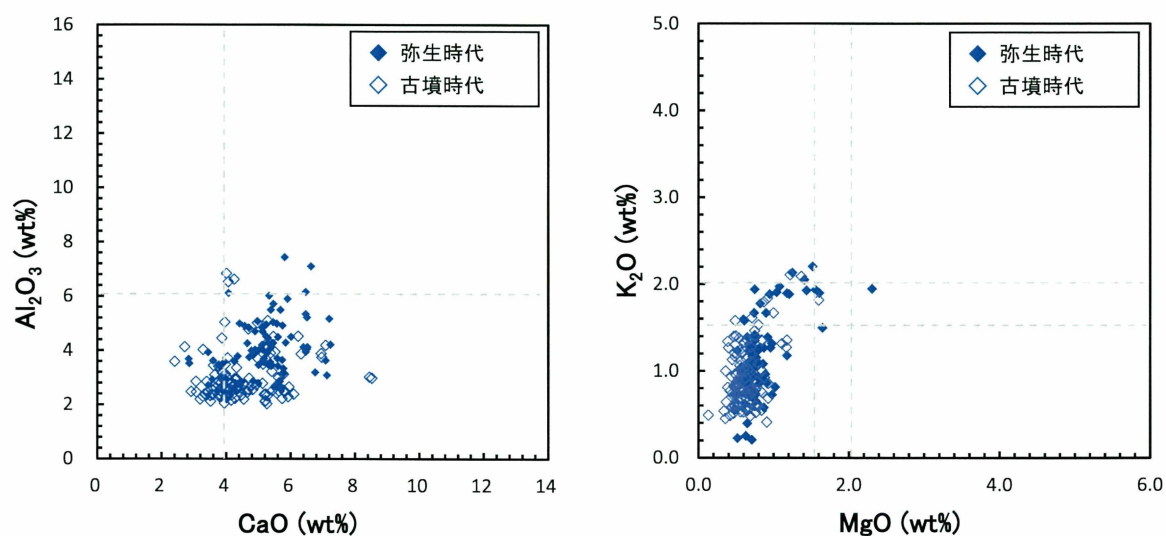


図 3-63 弥生時代の引き伸ばし法(L)による青紺色ガラス小玉と古墳時代のソーダ石灰ガラスⅠ' の Al₂O₃・CaO 含有量および MgO・K₂O 含有量

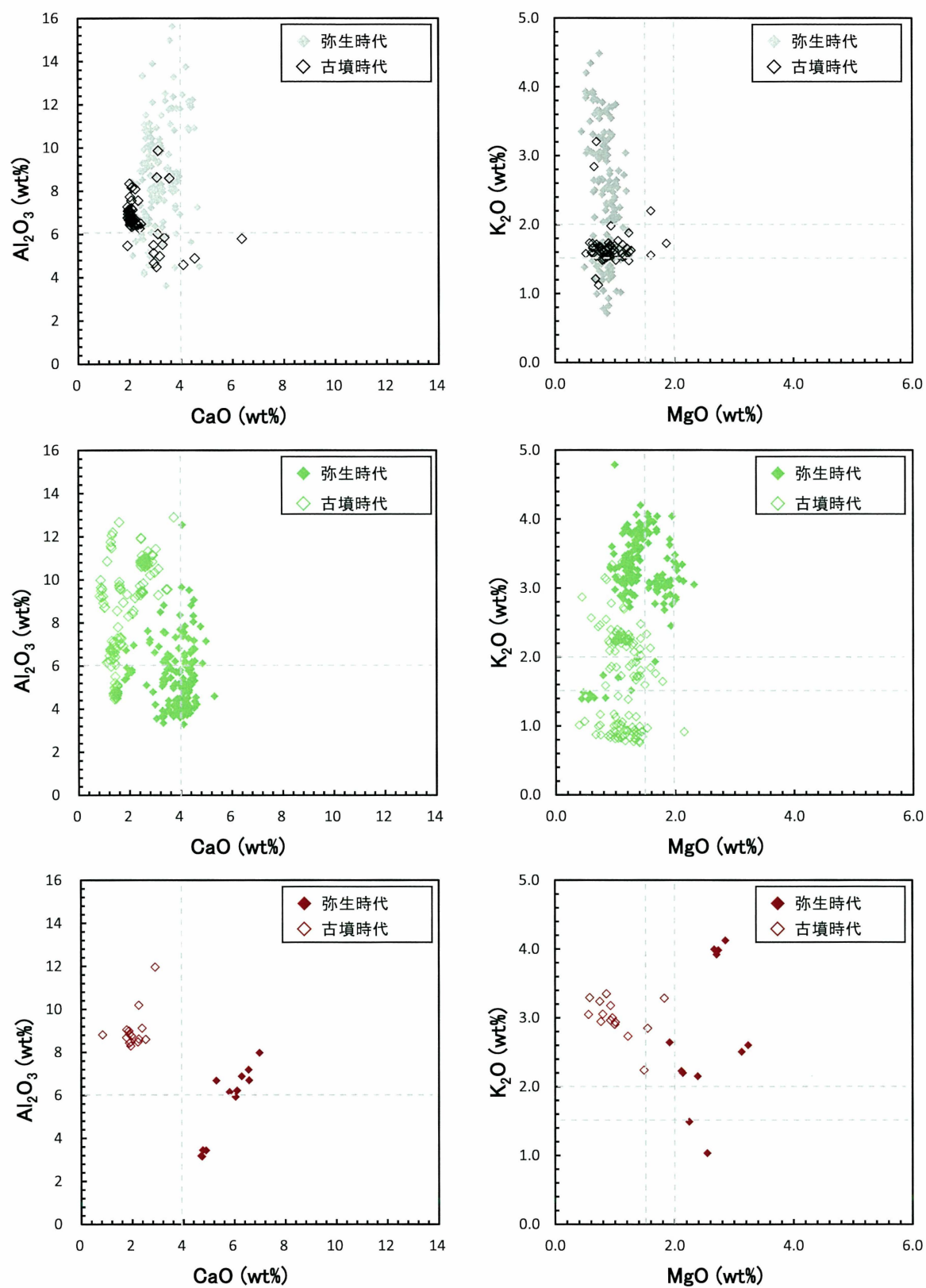


図 3-64 弥生時代と古墳時代の引き伸ばし法(L)による淡紺色，黄緑色，赤褐色ガラス小玉の Al_2O_3 - CaO 含有量および MgO - K_2O 含有量（上段：淡紺色，中段：黄緑色，下段：赤褐色）

さらに、ソーダ石灰ガラスⅢと判断した弥生時代の淡紺色、黄緑色、赤褐色のガラスについて、古墳時代の類例と酸化チタンの値を比較したところ、淡紺色のものは両時代が重複した領域に分布するが、黄緑色および赤褐色のものは異なる領域に分布する（図 3-65）。すなわち、淡紺色のソーダ石灰ガラスⅢは、古墳時代にもほぼ同じ化学組成のものが流通したが、黄緑色および赤褐色のものは、古墳時代と弥生時代では酸化アルミニウム、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、酸化チタンなどの基礎ガラス成分の含有量が異なることが明らかとなった。基礎ガラスの化学組成の差異は、原料や生産地の差異を示すと考えられるため、淡紺色を除くと、弥生時代と古墳時代とは、日本列島に流入するソーダ石灰ガラスⅢの生産地が変化した可能性が高い。なお、弥生時代の黄緑色および赤褐色のガラス小玉からはリンが検出されるが、古墳時代の同色のものからはほとんど検出されなかった。

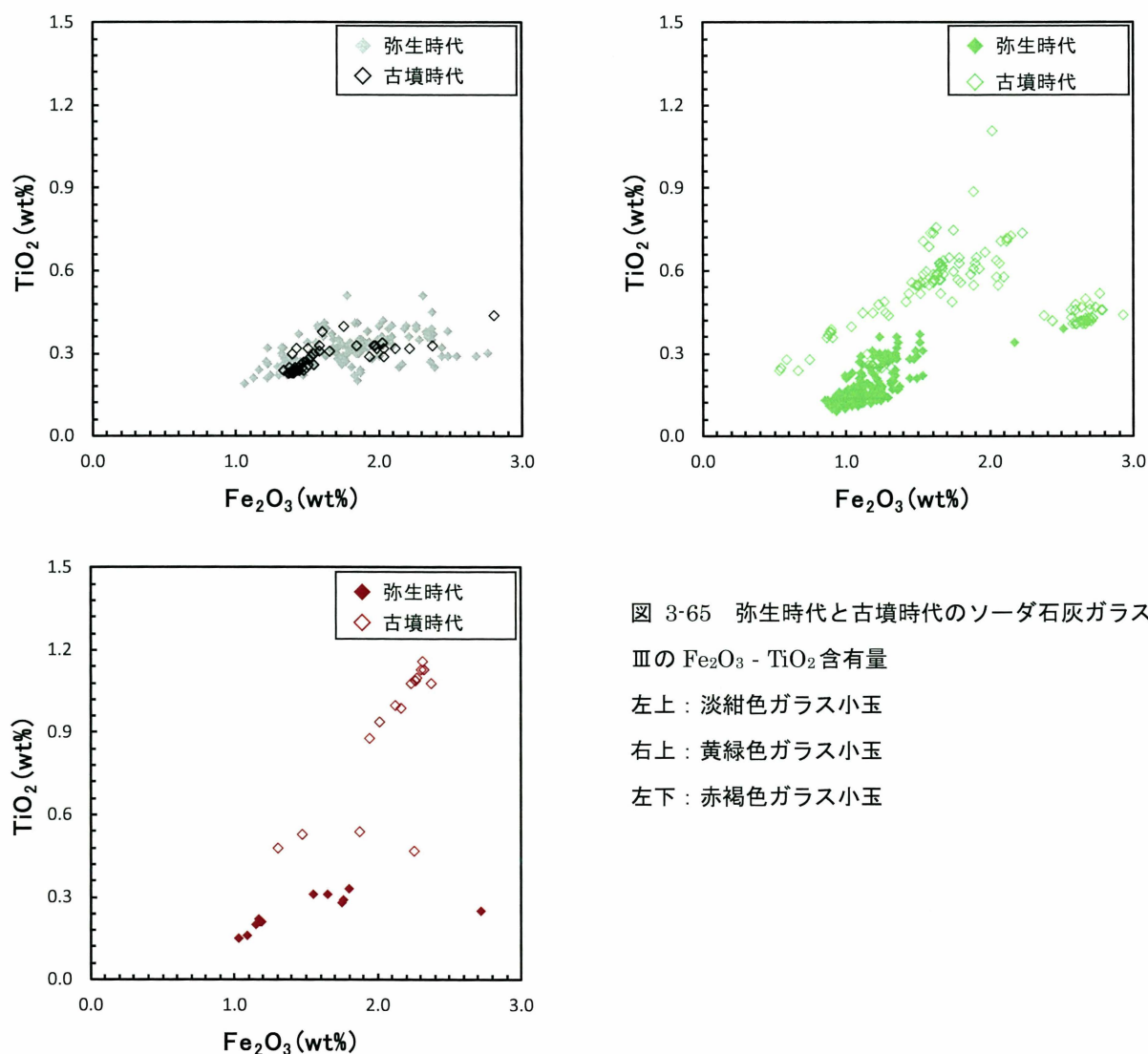


図 3-65 弥生時代と古墳時代のソーダ石灰ガラスⅢの Fe_2O_3 - TiO_2 含有量
 左上：淡紺色ガラス小玉
 右上：黄緑色ガラス小玉
 左下：赤褐色ガラス小玉

弥生時代のソーダ石灰ガラスには、引き伸ばし法(L)以外の製作技法のものは極めて少ないが、コバルトイオンによる青紺色ガラス小玉の中に、極めて丸みの強い特殊な形態が存在する(図 3-66)。開孔部から放射状に伸びるレンズ状の気泡が観察されることから、連珠法で製作された可能性もあるが、中央付近では孔と直交方向に伸長する気泡もある。孔の中央部が特に荒れており、孔と直交する皺状の凹凸が見られる。劣化の著しいものが多く、詳細な検討はおこなうことができなかったが、3-2で述べた製作技法のいずれにも該当しない可能性もある。これらの基礎ガラスは、いずれもソーダ石灰ガラ

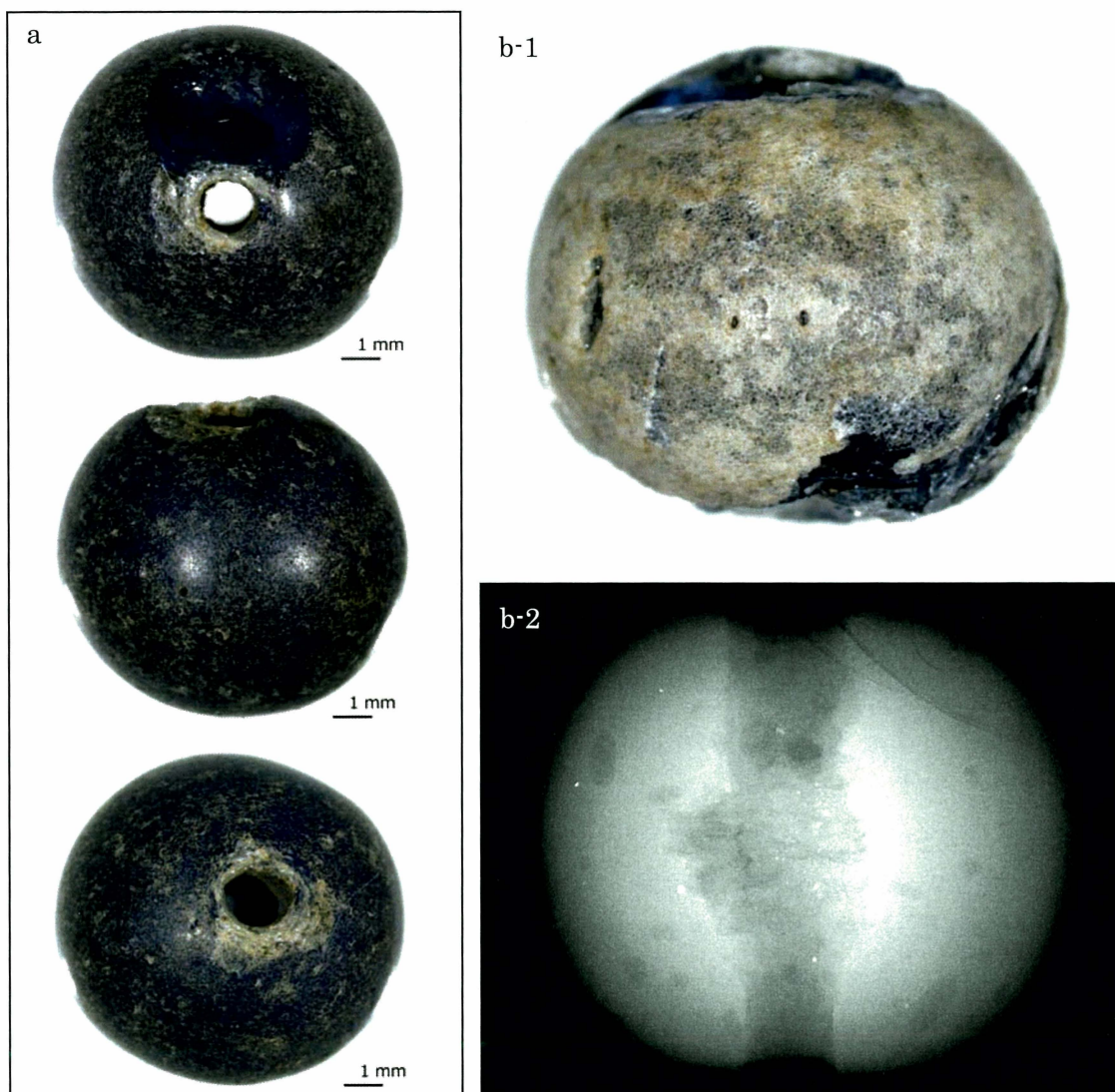


図 3-66 弥生時代の特殊な製作技法のガラス小玉

a : 大山台 5 号方形周溝墓第 1 主体 (千葉県木更津市)

b : 矢谷 D 地点方形周溝墓 (MS 2) No. 3 主体 (広島県三次市) (b-2 は b-1 の CR 画像)

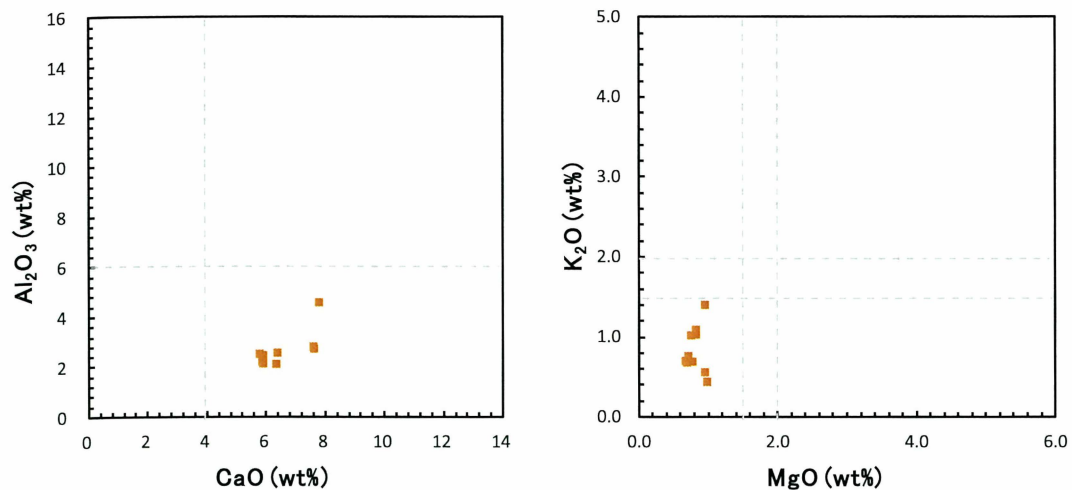


図 3-67 弥生時代の特殊な製作技法によるガラス小玉の Al_2O_3 - CaO 含有量および MgO - K_2O 含有量

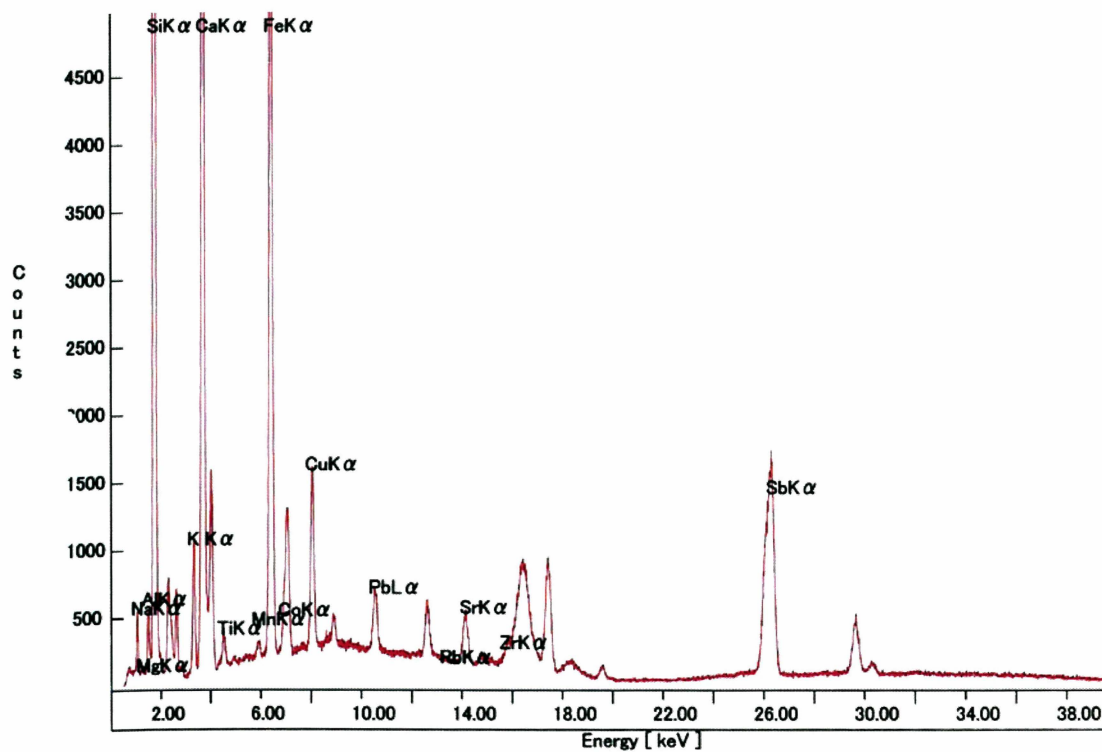


図 3-68 弥生時代の特殊な製作技法によるガラス小玉の代表的な蛍光 X 線スペクトル
大山台 5 号方形周溝墓第 1 主体（千葉県木更津市）

ス I であることがわかった (図 3-67)。弥生時代のソーダ石灰ガラス I は、アンチモンが顕著に検出されることが最大の特徴である¹⁵⁾ (図 3-68)。アンチモンは、ガラスの消色だけでなく、脱泡 (清澄) を促進する効果もあり (伊藤 1996)、消色剤としてだけではなく、清澄剤 (伊藤 1996) として用いたとも考えられる。古墳時代にも、コバルトイオンによる青紺色のソーダ石灰ガラス I (連珠法 (大)、型当て包み巻き法、環状巻き付け法) が存在するが、古墳時代の類例からは、アンチモンが検出されない点で、弥生時代と異なることが明らかとなった。なお、弥生時代のソーダ石灰ガラス I には、島根県西谷墳墓群から出土した淡青色不透明のガラス管玉があり (肥塚・降幡 2006)、アンチモンが検出されている。ただし、この場合のアンチモンは、不透明な色調を実現するための乳白剤として添加された可能性が高い。アンチモン酸カルシウムにより不透明ガラスを作る技法は、西アジア地域で紀元前 2000 年頃にはすでに知られていた (Sayre and Smith 1974)。

また、弥生時代後期後半～終末期のソーダ石灰ガラスには、連珠法で製作された小型

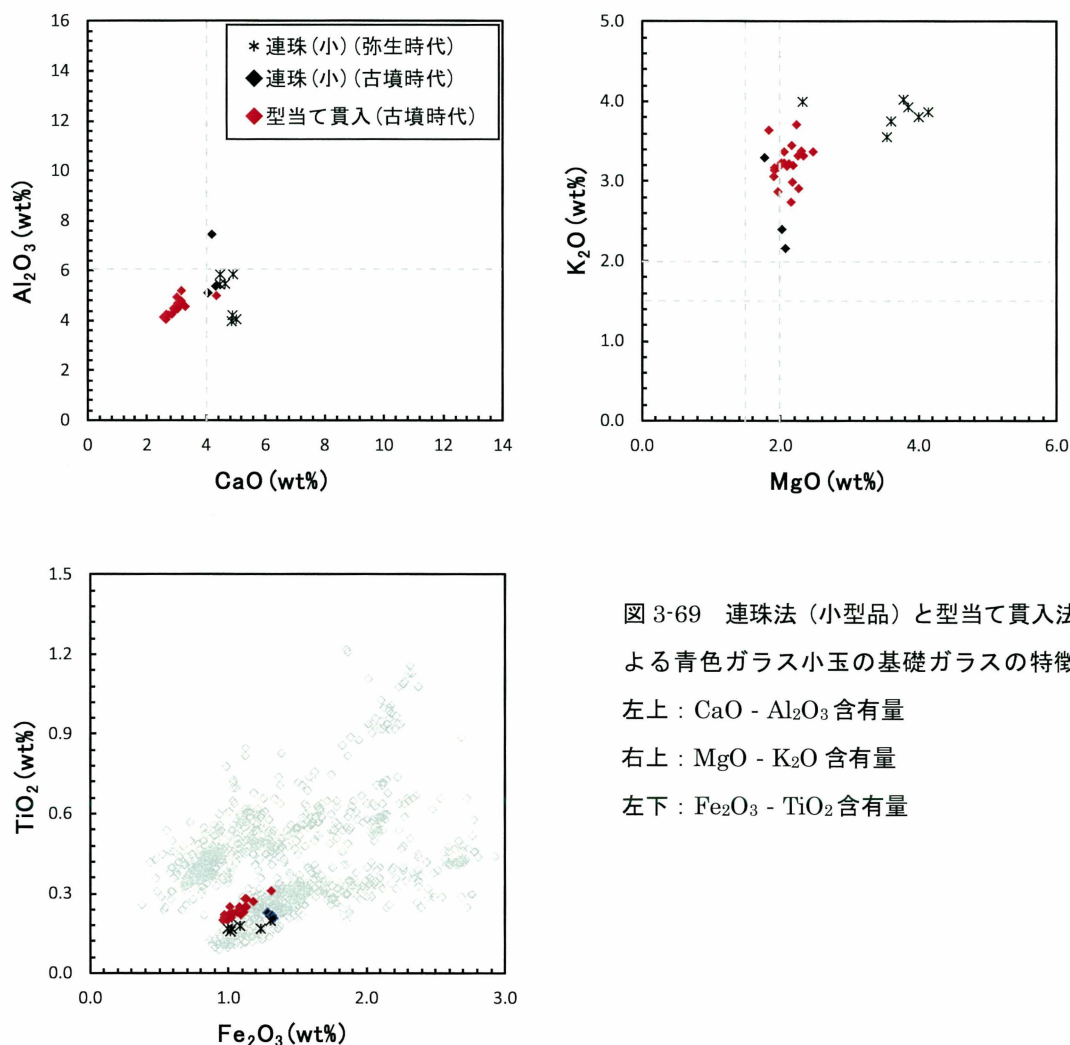


図 3-69 連珠法 (小型品) と型当て貫入法による青色ガラス小玉の基礎ガラスの特徴。
 左上 : CaO - Al_2O_3 含有量
 右上 : MgO - K_2O 含有量
 左下 : Fe_2O_3 - TiO_2 含有量

の青色ガラス小玉が存在する。酸化アルミニウムの含有量が4～6%，酸化カルシウムの含有量が4～5%と、どちらも中程度である（図 3-69）。上述の黄緑色および赤褐色のガラス小玉と類似することから、「弥生時代的な」化学組成のソーダ石灰ガラスⅢと理解できる。酸化マグネシウムおよび酸化カリウムの含有量がいずれも3～4%と多いことから、植物灰が融剤に用いられた可能性も否定できない。さらに、リンが検出される点でも、弥生時代の黄緑色および赤褐色ガラス小玉と類似する。酸化銅を2%前後含有し、銅イオンが主な着色因子であるが、錫および鉛はほとんど検出されない。同時期に流通した銅着色のカリガラスⅡには、例外なく錫および鉛が検出されるのと対照的である。なお、3-5-2で古墳時代のソーダ石灰ガラスのうち、ソーダ石灰ガラスⅠ～Ⅲのどれにも該当しない一群とした、連珠法による小型の青色ガラス小玉および型当て貫入法による青色ガラス小玉は、これらと同系統のものと考えられる。ただし、弥生時代のもののほうがやや酸化マグネシウムが多い。

このように、弥生時代の淡紺色を除くソーダ石灰ガラスⅢと、古墳時代の小型の連珠法および型当て貫入法のソーダ石灰ガラスⅢには共通点が多い。すなわち、古墳時代の大多数の典型的なソーダ石灰ガラスⅢに比べて、酸化アルミニウムが少なく、酸化カルシウムが多い。また、酸化マグネシウムが多い傾向があり、リンが検出されるという特徴も共通している。これらのガラスは生産地を同じくする可能性がある。

また、福岡県三雲・井原遺跡井原ヤリミゾ 2582, 2583 番地 13 号甕棺墓から黄色透明を呈するソーダ石灰ガラス小玉が出土している（図 3-70）。定量値は報告されていないものの、蛍光 X 線分析による定性分析の結果から、低アルミナソーダ石灰ガラスと推定されている（比佐 2006）。マグネシウムが特徴的に検出されたとの報告があり、カリウムについても比較的強いピークが検出されていることから、ソーダ石灰ガラスⅡの可能性もある。製作技法については、孔の開孔部の形態が両端面で異なっており、一方の端面が歪な形を呈するのに対し、他方は比較的整っているという特徴から、本論の型当て包み巻き法に相当すると考えられる。

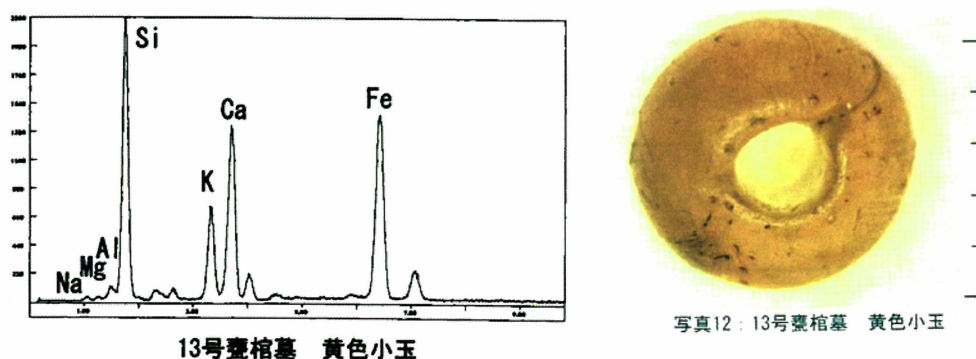


図 3-70 三雲・井原遺跡井原ヤリミゾ 2582, 2583 番地 13 号甕棺墓出土ガラス小玉の蛍光 X 線スペクトルと顕微鏡写真（比佐 2006 より抜粋）

3-5-4 コバルト原料の分類

弥生～古墳時代のアルカリ珪酸塩ガラスの中で最も多いのが、コバルトイオンを主な着色因子とする紺色系（青紺色、紫紺色、淡紺色）のガラス小玉である。紺色系のガラス小玉は、カリガラスⅡ以外のすべてのアルカリ珪酸塩ガラスに出現する。これらの紺色系ガラス小玉に用いられたコバルト原料は、酸化マンガン、酸化銅、酸化鉛の含有量とバリウムの有無から、数種類に分類できる（3-4）。ここでは、基礎ガラスと製作技法を組み合わせることにより、弥生～古墳時代のアルカリ珪酸塩ガラスに用いられたコバルト原料を分類する。

まず、カリガラスⅠ（青紺色、紫紺色）に使用されるコバルト原料には、例外なく1～数%の酸化マンガンが伴う一方、酸化銅の含有量は0.1%前後またはそれ以下と少ない。酸化鉛はさらに少なく、検出限界以下となるものも多い（図 3-71）。さらに、基礎ガラスの種類にかかわらず、微量のバリウムが検出される。このような特徴をもつコバルト原料を Co1 類と呼ぶ。ソーダ石灰ガラスⅠ'（青紺色）とソーダ石灰ガラスⅢ（淡紺色）の着色剤も Co1 類である。Co1 類を用いたカリガラスⅠ、ソーダ石灰ガラスⅠ' およびソーダ石灰ガラスⅢのガラス小玉は、いずれも引き伸ばし法(L)で製作されているという共通点がある。さらに、これらは互いに共伴する場合が多い。

既往研究（肥塚 1997）でも、紺色ガラス小玉の着色剤には、本論文の Co1 類に相当する酸化マンガン含有量の多いコバルト原料と、酸化マンガン含有量の少ないコバルト原料の2種類が存在し、前者はカリガラス、後者は低アルミナソーダ石灰ガラスに用いられたことが指摘されている。さらに、肥塚隆保（1997）は、カリガラスがほとんど流通しなくなる6世紀頃になると、酸化マンガン含有量の多いコバルト原料を用いた低アルミナソーダ石灰ガラスがわずかに認められるようになるという変遷観を提示した。しかし、この基礎ガラスと着色剤との関係性や変遷に関する理解には、弥生時代後期および古墳時代中期の分析例の少なさに起因する問題がある。肥塚（1997）の指摘する、6世紀頃に流通した酸化マンガン含有量の多いコバルト原料を用いた低アルミナソーダ石灰ガラスとは、本論の分類のソーダ石灰ガラスⅠ' に相当するとみられるが、実際には、弥生時代後期後半～終末期および古墳時代中期前半の紺色ガラス小玉の中に、相当量のナトリウム主体ガラス小玉が存在することが明らかとなった。当該時期に流通したカリガラスⅠとソーダ石灰ガラスⅠ' は、製作技法や大きさなどの形態的特徴や色調が極めて類似しており、肉眼による区別は困難である。

ソーダ石灰ガラスⅡにも、引き伸ばし法(B)で製作されたコバルト着色のガラス小玉が大量に存在する。これらに用いたコバルト原料は、酸化マンガン含有量がほぼ0.1～0.5%と少なく、酸化銅を0.1～0.3、酸化鉛を0.1～0.2%前後含有する点で、上述の Co1 類とは明らかに異なる（図 3-72）。引き伸ばし法(B)で製作されたコバルト着色のソーダ石灰

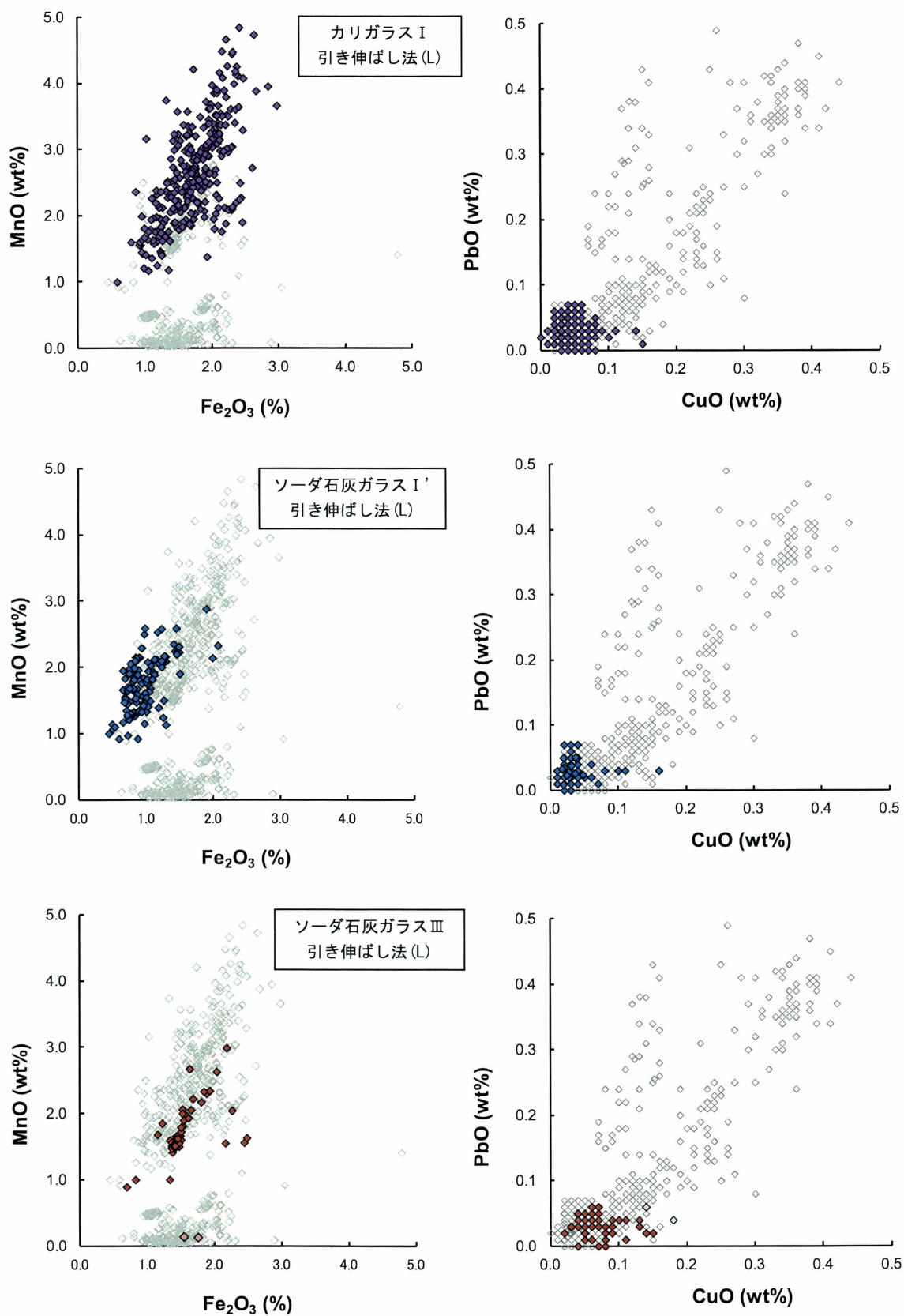


図 3-71 カリガラス I, ソーダ石灰ガラス I', ソーダ石灰ガラス III の Fe₂O₃ - MnO 含有量 (左)
および CuO - PbO 含有量 (右)

ガラスⅡとはほぼ同時期に流通する、連珠法で製作されたソーダ石灰ガラスⅡにも、類似したコバルト原料が用いられている。一方、古墳時代後期末に流入する、引き伸ばし法(変 B)で製作されたガラス小玉に用いたコバルト原料には、酸化鉛がさらに多く、0.3%前後含まれる点で、引き伸ばし法(B)によるものとはやや異なる。ソーダ石灰ガラスⅡに用いられたコバルト原料を Co2 類としたうえで、引き伸ばし法(B)および連珠法で製作されたガラス小玉に用いられたものを Co2a 類、引き伸ばし法(変 B)によるガラス小玉に用いられたものを Co2b 類とする。

なお、Co2a 類を用いた青紺色のソーダ石灰ガラスⅢも、わずかながら存在する(図 3-71 下段)。いずれも古墳時代後期の資料であり、同じソーダ石灰ガラスⅢでも Co1 類を用いた淡紺色のものとは流通の中心となる時期が異なる。

一方、ソーダ石灰ガラスⅠに用いたコバルト原料については評価が難しい。酸化マンガン含有量にのみ着目すると、ソーダ石灰ガラスⅠには少なくとも酸化マンガンの含有量が極めて少ないもの(0.1%未満)と多いもの(1.5~2%程度)、および中程度のもの(0.5~1%程度)の3種類がある(図 3-73)。ただし、ソーダ石灰ガラスⅠに含まれる酸化マンガンについては注意が必要である。

注目したいのは、弥生時代の紺色ソーダ石灰ガラスⅠからアンチモンが検出されることである。古墳時代中期の類例からはアンチモンは検出されていない。マンガンは、ローマガラスをはじめとする地中海周辺のナトロンガラスで、アンチモンとともに消色剤として利用されていた物質であり(Sayre 1963)、地域や時期によってアンチモン消色とマンガン消色の比率が変化することが指摘されている(Sayre and Smith 1974, Gratuze and Barrandon 1990, Freestone *et al.* 2000 など)。すなわち、シリア沿岸ではローマ帝国時代を通じてマンガン消色を利用されたが、イタリアや西北ヨーロッパでは3世紀頃までアンチモン消色がおこなわれ、4世紀以降マンガン消色が優勢になる。

古墳時代の一部のソーダ石灰ガラスⅠに多く含まれる酸化マンガンが、コバルト原料の不純物か、それとも消色剤として意図的に添加されたものかを判断するのは容易ではない。ただし、ソーダ石灰ガラスⅠでは、酸化マンガンが多い種類であっても、バリウムが検出されないことから、Co1 類とは異なるコバルト原料が利用された可能性が高い。さらに、酸化銅や酸化鉛含有量も Co1 類とは異なる。古墳時代の一部のソーダ石灰ガラスⅠに含まれる、0.5~2%の酸化マンガンがコバルト原料由来でないと考えた場合、弥生時代後期後半~終末期のソーダ石灰ガラスⅠからアンチモンが検出され、古墳時代中期前半のものではアンチモンは検出されず、酸化マンガン含有量が多くなるという変化は、地中海周辺のナトロンガラスにおける消色剤の変化とも対応する。

次に、古墳時代のソーダ石灰ガラスⅠについて、製作技法ごとに酸化銅および酸化鉛の値を比較したところ、一部の資料を除いて Co1 類とも Co2 類とも異なる領域に分布す

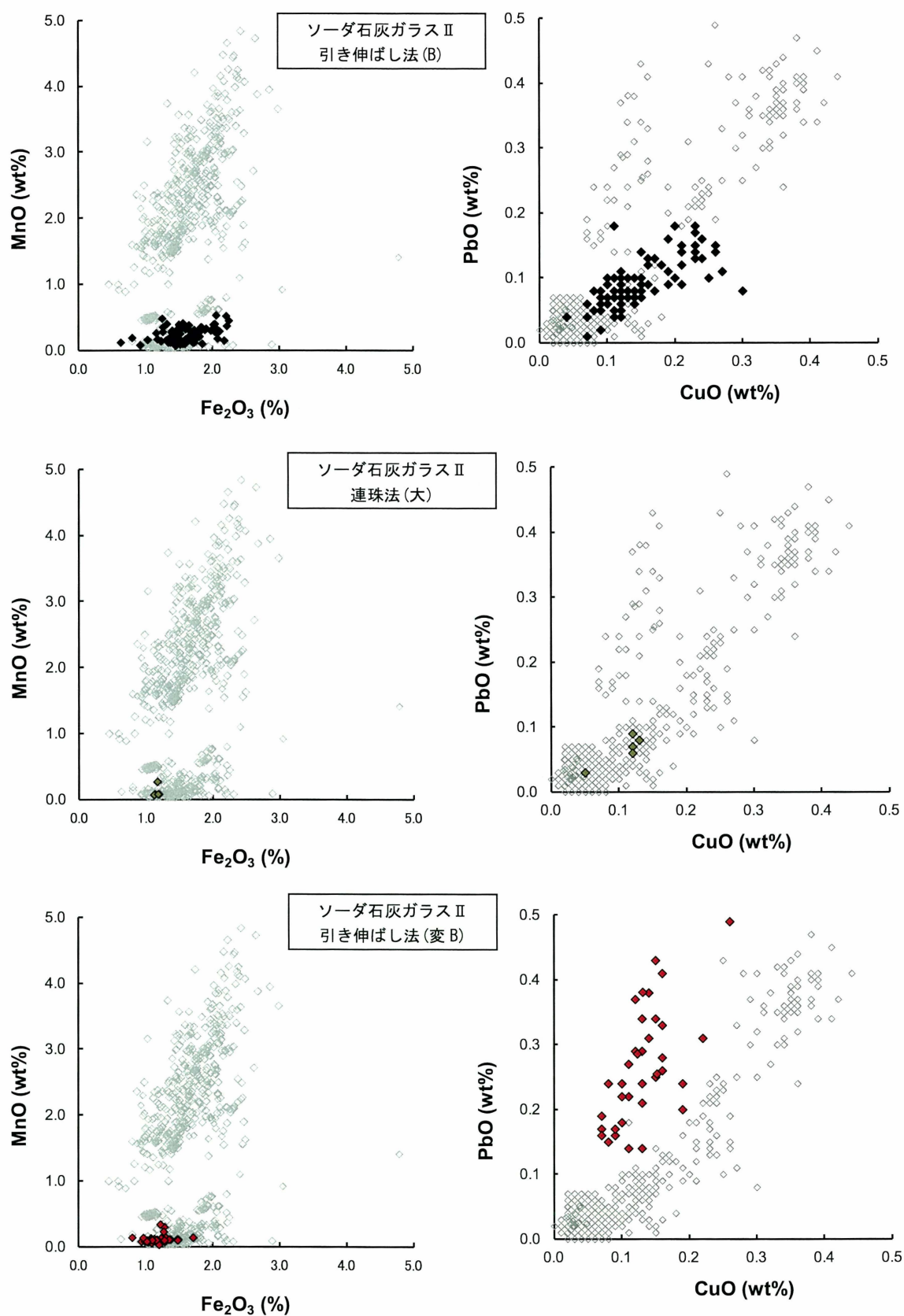


図 3-72 ソーダ石灰ガラス II の Fe₂O₃ - MnO 含有量 (左) および CuO - PbO 含有量 (右)

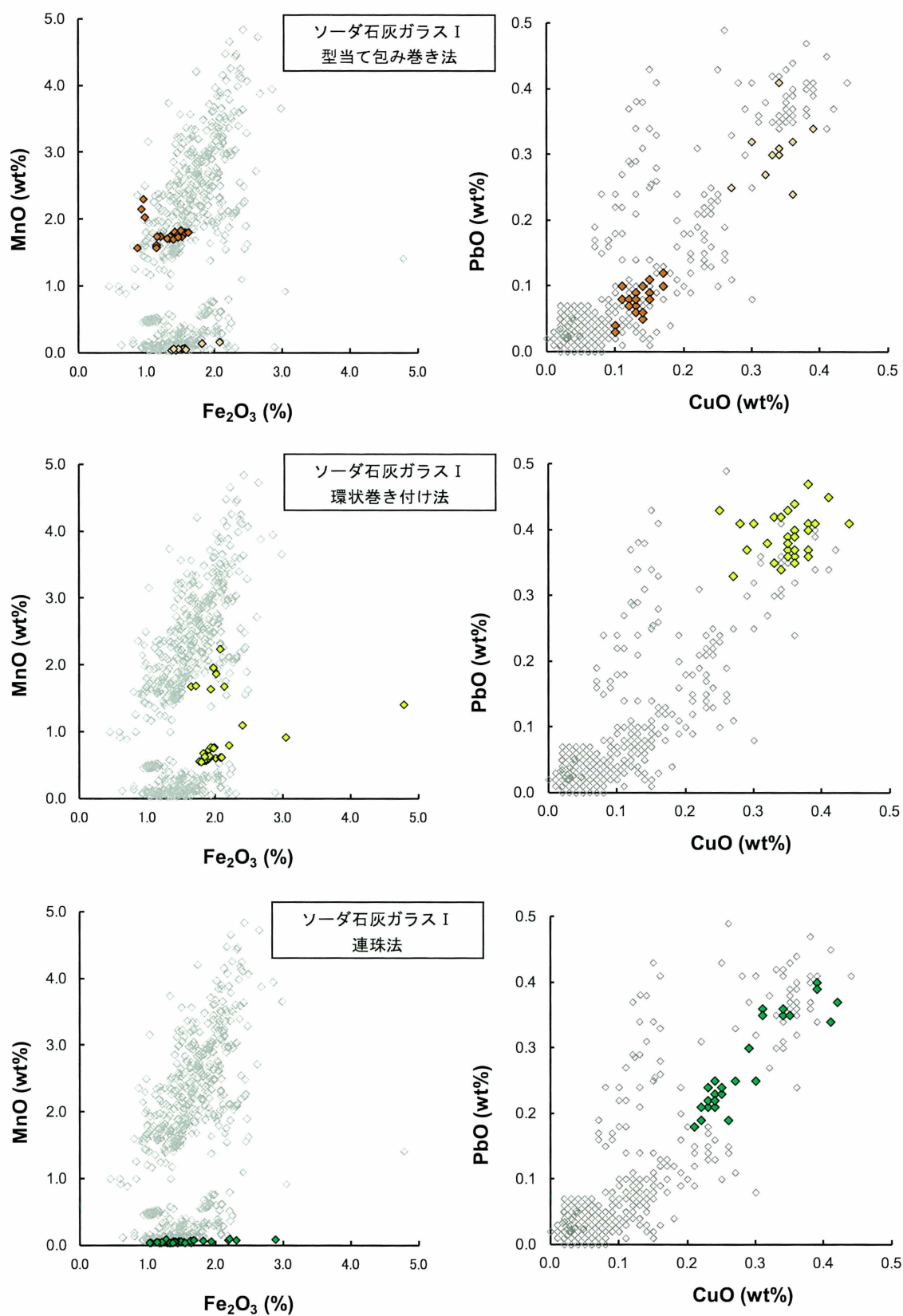


図 3-73 ソーダ石灰ガラス I の Fe₂O₃ - MnO 含有量 (左) および CuO - PbO 含有量 (右)

ることが判明した（図 3-73）。ただし、型当て包み巻き法で製作されたガラス小玉のうち、酸化マンガン含有量の多い一群は Co2a 類の領域に分布すると言える。以上のように、ソーダ石灰ガラス I に用いたコバルト原料には複数の種類が存在する可能性が認められるものの、多くのものが Co1 類とも Co2 類とも異なる独自のものとみられる。ここでは、不確定な要素が多いため、ソーダ石灰ガラス I に用いたコバルト原料として、Co3 類と一括し、細分はおこなわない。

また、東大寺金堂から出土した型当て貫入法によるガラス小玉は、ソーダ石灰ガラス II であったが、前述の Co2a 類とはやや異なり、酸化マンガン含有量が 0.5%前後で中程度の値を示す（図 3-74）。ただし、酸化銅および酸化鉛を 0.1~0.2%含有し、バリウムが検出されないので、Co1 とは異なるコバルト原料である。また、ササンガラスをはじめとする西アジアの植物灰ガラスにも、マンガンが消色剤として利用された（Sayre and Smith 1974）点を考慮すると、本資料に含まれるマンガンも、コバルト原料に由来するかどうかは不明である。一方、酸化銅と酸化鉛の含有量は、上記のどのグループともやや異なる領域に分布する。Co2a 類と Co2b 類の間間的な領域に分布することから、Co2 類と近縁なものかもしれない。

以上を概観すると、弥生~古墳時代のガラス小玉に用いられたコバルト原料に一定の法則を認めることができる（図 3-75）。まず、引き伸ばし法(L)によるガラス小玉（インド・パシフィックビーズ）には、基礎ガラスの種類にかかわらず、ほとんどの場合、Co1 類が用いられている。一方、同時期に流通したソーダ石灰ガラス I には、独自の Co3 類が用いられており、製作技法も特殊で、明らかに異なる系統のガラスであることがわかる。古墳時代中期後半になると、Co2a 類が用いられたソーダ石灰ガラス II が大量に流入

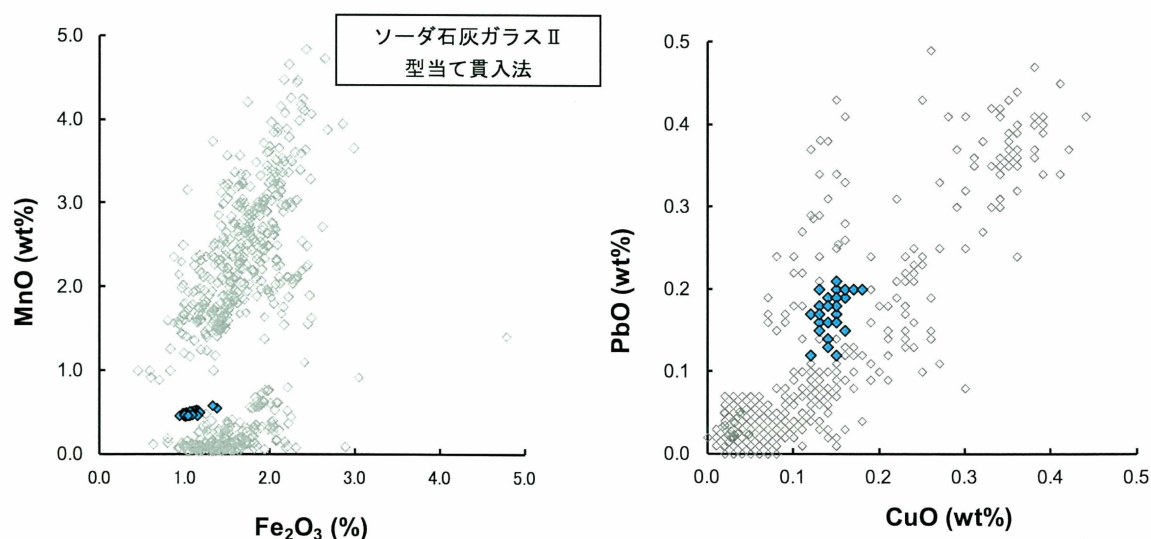


図 3-74 ソーダ石灰ガラス II（型当て貫入法）の Fe₂O₃ - MnO 含有量（左）および CuO - PbO 含有量（右）

する一方、それまで流通していた Co1 類を用いた引き伸ばし法(L)によるインド・パシフィックビーズは激減する。そして、この時期には、基礎ガラスおよび着色剤の特徴が引き伸ばし法(B)による紺色ガラス小玉と共通する、連珠法で製作されたソーダ石灰ガラスⅡも流通する。その後、古墳時代後期末に出現する引き伸ばし法(変 B)によるガラス小玉には、Co2b 類が用いられた。このように、製作技法、基礎ガラス、着色剤の間には、極めて密接な対応関係があることが明らかとなった。

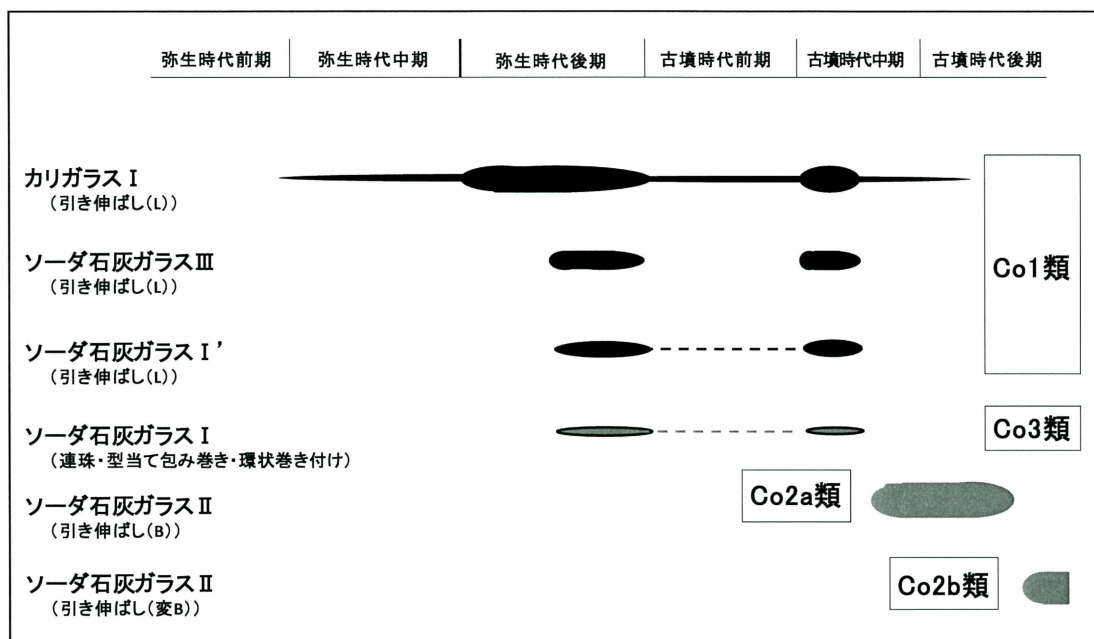


図 3-75 コバルト原料と基礎ガラスとの対応関係およびその時期的変遷

3 - 6 小結

アルカリ珪酸塩ガラス小玉の製作技法と基礎ガラスおよび着色剤の対応関係を表 3-19 にまとめておく。出土数が極めて少ないものや、現状では日本列島での出土例が知られていないものの、周辺地域で出土例から日本での出土が期待されるものについては括弧内に表記した。また、原料の多様性が示されるコバルトイオンによる着色は、本文中での分類記号 (Co1 類～Co3 類) で表記した。

製作技法と、基礎ガラスと着色剤を含めた化学組成との間には、一定の関連性が

表3-19 アルカリ珪酸塩ガラス小玉の製作技法, 基礎ガラス, 着色剤の対応関係

		カリガラス		ソーダ石灰ガラス			
		カリガラス I	カリガラス II	ソーダ石灰ガラス I	ソーダ石灰ガラス I'	ソーダ石灰ガラス II	ソーダ石灰ガラス III
引き伸ばし法(L)		Co1類(青紺・紫紺), (銅コロイド(赤褐))	Cu(淡青), (Cu+PbSnO ₃ (黄緑))		Co1類(青紺)		Co1類(淡紺), (Co2a類(青紺)), Cu(淡青), Cu(青), Cu+Mn(濃青～黒), Fe(褐～黒), Mn(紫褐), PbSnO ₃ (黄), Cu+PbSnO ₃ (黄緑), 銅コロイド(赤褐), Cu ₂ Oコロイド(橙),
		Mn(赤紫), Cu+Mn(くすんだ青)					
引き伸ばし法(B)						Co2a類(青紺), (Cu(淡青)?), (PbSnO ₃ (黄)?)	
引き伸ばし法(変B)						Co2b類, Cu(濃緑), Mn(紫褐), Cu(淡青), PbSnO ₃ (黄), Cu+PbSnO ₃ (黄緑)	
連珠法	小型						Cu(青)
	大型			Co3類(青紺)		Co2a類(青紺), Fe(淡緑)	Cu+Mn(濃青), (Cu(淡青))
重層連珠法				無色(Sb消色)		Fe(黄褐)	Fe(無色～褐色)
型当て包み巻き法		Co1類		Co3類(青紺)		(Fe(黄褐))	Cu+Mn(濃青)
型当て貫入法		Co1類				(Co2類?(青紺))	Cu(青)
環状巻き付け法				Co3類			
四角柱玉・六角柱玉・橐玉		Fe(アクアマリン青)					
鋳型熔着法		—	—	—	—	—	—
熔着法		—	—	—	—	—	—
その他		—	—	—	—	—	—

認められる。特に、「アジアのガラス」であるカリガラスとソーダ石灰ガラスⅢには、着色剤や製作技法の共通点が多い。一方、「西のガラス」と考えられるソーダ石灰ガラスⅠやソーダ石灰ガラスⅡは、製作技法も着色剤の双方で「アジアのガラス」とは異なる傾向が強い。ただし、一部には共通項も認められる。「アジアのガラス」と「西のガラス」で製作技法が共通することは、ガラスの生産地と小玉への加工地が異なる可能性を示している。また、着色技法の共通性は、着色剤自体の交易や着色技法の伝播という技術交流を考察する手掛かりとなる。

註

- 1) 端面が研磨され、破断面が残らないものもある。その場合、開孔部から放射状に伸びたレンズ状の気泡が判断基準となる。
- 2) ただし、箔を挟むものでも内側に気泡の多いガラスを用いる場合があることから、気泡の多いガラスを内側に使う理由は別にある可能性もある。
- 3) ほぼ直交するのではなく、完全に直交する。
- 4) 著者は螺旋状と表記しているが、孔を中心とした渦巻状のことをさすと考えられる。
- 5) Lはラダ技法 (lada technique) の頭文字による。
- 6) Bは吹き技法 (blowing technique) の頭文字による。
- 7) 本論文のⅠa類またはⅠb類に相当すると考えられる。しかし、底面の模様は孔と直交方向に並んでおり、整合的でない。
- 8) アクレの砂は石英と方解石を主成分とした堆積物で、その鉱物組成は、石英 70~75%、方解石 16~18%、斜長石 4%、輝石 4%、チタン鉄鉱 1%である。とくにカルシウム源となる方解石は、化石化した貝殻の碎屑物として存在する (Turner 1956)。
- 9) 鉱物系のソーダ原料に植物灰を加えたか、もしくはカリ長石 (KAlSi_3O_8) などを含む珪砂と鉱物系のソーダ原料から作られた可能性もある。この場合の鉱物系のソーダ原料には、インドなどで採れる reh が考えられるが、交易で輸入したナトロンを用いた可能性も否定できない。
- 10) バリウムの $\text{K}\alpha$ 線のピークからスタンダードレスの FP 法によって算出した酸化バリウムの定量値は 0.2~0.9%程度である。
- 11) 海底や湖底にできるマンガン堆積物には、ニッケル、コバルト、銅、バリウムなどが伴うことが知られている (Strakhov/盛谷訳 1968)。
- 12) 酸化マンガンは消色剤の可能性も考慮する必要がある。3・4 で考察する。
- 13) アンチモンの $\text{K}\alpha$ 線のピークからスタンダードレスの FP 法によって算出した酸化アンチモンの定量値は 0.2~0.8%程度である。
- 14) セイヤら (Sayre and Smith 1974) は、紀元前 1000 年紀の中頃から、ヨーロッパやアナトリ

ア、東地中海地域のガラスは酸化マグネシウムの少ないソーダ石灰ガラスのみになることを指摘し、ローマ帝国領内にその生産地があると推定した。さらに、このような化学組成の特徴を「ローマ的な組成」とした上で、これらのガラスにしばしば消色剤としてアンチモンが含まれることを指摘した。

- 15) アンチモンの $K\alpha$ 線のピークからスタンダードレスの FP 法によって算出した酸化アンチモンの定量値は 1～3% 程度である。

引用・参考文献

- 朝比奈貞一・小田幸子, 1954, 「日本古代ガラス玉の成形について」, 『古文化財の科学』第 7 号, 10～13 頁。
- 伊藤 彰, 1996, 『—ガラスにおける—炎と色の技術』, アグネ技術センター。
- 井原将昌・山本徳治, 1958, 「鉄・マンガン着色ガラスの分光学的研究 (着色ガラスの分光学的研究 第 1 報)」, 『窯協』66[6], 74～82 頁。
- 大賀克彦, 2002, 「日本列島におけるガラス小玉の変遷」, 『小羽山古墳群』, (『清水町埋蔵文化財発掘調査報告書』V), 127-145 頁。
- 大賀克彦, 2010, 「日本列島におけるガラスおよびガラス玉生産の成立と展開」, 『月刊文化財』, 566 号, 27～35 頁。
- 大賀克彦・望月誠子・戸根比呂子・小山雅人, 2005, 「奈具岡遺跡再整理報告 (1) —翡翠・ガラス製品—」, 『京都府埋蔵文化財情報』, 第 95 号, 1～12 頁。
- 川越俊一, 1993, 「飛鳥池遺跡の発掘調査—ガラス関係遺物を中心に—」, 『季刊明日香風』45, 19～24 頁。
- 小泉好延, 2003, 「美里町 白石古墳群出土のガラス玉の分析」, 『白石古墳群Ⅱ 後海道地区・久保地区』, 235～240 頁。
- 小泉好延, 2004, 「佐久市出土のガラス玉材質分析」, 『後家山遺跡 東久保遺跡 宮田遺跡Ⅰ・Ⅱ』, 533～542 頁。
- 肥塚隆保, 1995, 「古代珪酸塩ガラスの研究—弥生～奈良時代のガラス材質の変遷—」, 『奈良国立文化財研究所創立 40 周年記念論文集 文化財論叢Ⅱ』, 929～967 頁。
- 肥塚隆保, 1997, 『日本で出土した古代ガラスの歴史的変遷に関する科学的研究』, 博士学位論文。
- 肥塚隆保, 2001, 「八釣マキト 1 号墳出土ガラスの分析」, 『明日香村遺跡調査概報 平成 11 年度』, 101～103 頁。
- 肥塚隆保, 2002, 「古代のガラス」, 『文化財のための保存科学入門』, 32～45 頁。
- 肥塚隆保・降幡順子, 2006, 「西谷 2 号墓出土ガラス釦などの考古科学的調査」, 『奈文研紀要 2006』, 38～39 頁。
- 清水眞一, 1992, 「ガラス小玉鑄型についての一考察」, 『考古学与生活文化』, 225～234 頁。

- 白瀧絢子, 阿部善也, タンタラカーン・クリアンカモル, 中井泉, 池田朋生, 坂口圭太郎, 後藤克博,
2010, 「熊本県の古墳から出土したガラスビーズの考古化学的研究」, 『日本文化財科学会第 27 回
研究発表要旨集』, 254～255 頁。
- 高橋進一, 1992, 「阿哲郡大佐町円通寺 1 号墳出土の金層ガラス玉について」, 『古代吉備』, 第 14 集,
244～247 頁。
- 田中清美, 2007, 「たこ焼き型鋳型」によるガラス小玉の生産」, 『大阪歴史博物館研究紀要』, 第 6
号, 1～24 頁。
- 谷一尚, 1999, 『ガラスの考古学』, 同成社。
- 田村朋美, 2011, 「東大寺鎮壇具のガラス小玉の考古科学的研究」, 『鹿園雑集』, 奈良国立博物館,
124 (11) ～94 (41) 頁。
- 出縄泰子, 肥塚隆保, 大賀克彦, 2002, 「奥山田古墳群採集の重層ガラス玉とその分析について」, 『紀
伊考古学研究』第 5 号, 95～102 頁。
- 富樫雅彦・徳澤啓一, 1995, 「弥生時代におけるガラス小玉の研究 —板橋区四葉地区遺跡出土の極
小ガラス小玉の検討—」, 『東京考古』13, 39～63 頁。
- 土壌物理学会編, 2002, 『新編 土壌物理用語辞典』, 養賢堂。
- 日本国政府アンコール遺跡救済チーム (JSA), 1995, 『アンコール遺跡調査報告書 1995』, 日本国際
協力センター。
- 比佐陽一郎, 2006, 「ガラス製玉類の科学的分析 前原市三雲・井原遺跡井原ヤリミゾ 2582, 2583
番地出土ガラス玉の調査について」, 『三雲・井原遺跡』, (『前原市文化財調査報告書』第 92 集),
145～148 頁。
- 平野裕子・徳澤啓一・Nguyen Thi Hoai Huong, 2010, 「メコンデルタの古代港市オケオ出土ガラス
—マルレ・コレクションの顕微鏡観察から—」, (日本考古学協会第 76 回総会発表資料)。
- 福島雅儀, 1985, 「ゴールドサンドウィッチガラスの玉・一例」, 『考古学と移住・移動』, (『同志社
大学考古学シリーズ』II), 79～85 頁。
- 藤田 等, 1994, 『弥生時代ガラスの研究—考古学的方法—』, 名著出版。
- ブリル・R／山崎一雄 (訳), 1993, 「古代アジアガラスの科学的研究」, 『奈良国際シンポジウム'91
報告書』, 71～81 頁。
- 丸山次雄, 1973, 『ガラス古代史ノート』, 雄山閣。
- 村瀬 潤, 1993, 「ガラスの元素分析」, 『斑鳩藤ノ木古墳第 2・3 次調査報告書分析と技術篇』, 奈
良県立橿原考古学研究所, 297～300 頁。
- 村田貴広・栗村哲利・森永健次, 1997, 「酸化物ガラスにおける Cu イオンの原子価の組成依存性」,
『日本金属学会誌』第 61 巻第 11 号, 1175～1180 頁。
- 山内紀嗣, 1991, 「ガラス玉の鋳型」, 『天理参考館報』第 4 号, 149～154 頁。
- 山崎一雄, 1987, 「日本出土のガラスの化学的研究」, 『古文化財の科学』, 第 3 号, 274～300 頁。

- H. C. Bhardwaj (1979), *Aspects of Ancient Indian Technology*, Motilal Banarsidass. Indological Publishers & Booksellers.
- R. H. Brill (2009), *Opening Remarks and Setting the Stage: Lecture at the 2005 Shanghai International Workshop on the Archaeology of Glass Along the Silk Road.*, *Ancient Glass Research along with the Silk Road.*, World Scientific, pp.109-147.
- Freestone, I.C., Gorin-Rosen, M.Y., Hughes, M.J. (2000), *Primary Glass from Israel and the Production of Glass in Late Antiquity and the Early Islamic Period.* *Travaux de la Maison de l'Orient Meditteraneen*, 33, pp.65-83.
- Gratuze, B. and Barrandon, J. N. (1990), *Islamic Glass Weights and Stamps : Analysis Using Nuclear Techniques.* *Archaeometry*, 32, 2, pp.155-162.
- Jönsson and Hunner (1995), *Gold-foil beads, Studies in Technology and Culture vol.2*, pp.113-116.
- Lankton, J.W. and Dussubieux L.E. (2006), *Glass in Asian Maritime Trade : A Review and an Interpretation of Compositional Analyses.*, *Journal of Glass Studies*, 48., pp.121-144.
- Lucas, A. (1934), *Ancient Egyptian Materials and Industries*, London, Edward Arnold (Publishers) Ltd.
- Sayre, E. & Smith, R. (1961), *Compositional Categories of Ancient Glass.* *Science* vol. 133, pp.1824 - 26.
- Sayre, E. (1963), *The International Use of Antimony and Manganese in Ancient Glass, Advances in Glass Technology Part2.*, F. Matson and G. Rindone editors, Plenum Press, New York.
- Sayre, E. & Smith, R. (1974), *Analytical Studies of Ancient Egyptian Glass.* In *Recent Advances in the Science and Technology of Materials* (A. Bishay ed.), volume 3, Plenum Press, New York, pp.47 - 70.
- Strakhov／盛谷訳, 1968, 「堆積性マンガン鉱石化過程における微量元素の挙動」, 『地質調査所月報』第19巻第5号, 41 (325) ～69 (353) 頁。
- Turner, W.E.S. (1956), *Studies in Ancient Glasses and Glass-making Processes, Part V, The Chemical composition of ancient glasses,* *Journal of the society of glass technology*, 40, pp.162-186.
- Welter, N. and Schussler, U. and Kiefer, W. (2006), *Characterisation of Inorganic Pigments in Ancient Glass Beads by Means of Raman Microspectroscopy, Microprobe Analysis and X-ray Diffractometry.* *Journal of Raman Spectroscopy*, 38, pp.113-121.
- Zhang Fukang (1991), *Scientific Studies of early glasses excavated in China.*, *Scientific research in early Chinese glass, The Corning Museum of Glass*, pp.157-165.

第4章 アルカリ珪酸塩ガラス小玉の生産地と交易ルート

4-1 日本列島におけるアルカリ珪酸塩ガラスの変遷

弥生～古墳時代の日本列島で流通するアルカリ珪酸塩ガラスを、基礎ガラスの種類から、2種類のカリガラスおよび4種類のソーダ石灰ガラスの合計6種類に分類した。ここでは、日本列島におけるアルカリ珪酸塩ガラスの変遷について考察する。

6種類の基礎ガラスの消長を、主要な製作技法と色調（着色剤）別に図4-1に示す。ここでは、流通時期を比較するため、既往研究（肥塚1997、大賀2010a）で明らかとなっている鉛珪酸塩ガラス玉類の出現状況もあわせて示した。なお、鉛珪酸塩ガラスは管玉や勾玉など小玉以外の玉類が一般的なため、器種は限定していない。

日本列島にはじめてガラス製品が出現するのは弥生時代前期末～中期初頭であり、福岡県吉武高木117号甕棺墓、佐賀県東山田一本杉SJ019号甕棺墓および078号甕棺墓などの例¹⁾がある（大賀2002）。東山田一本杉SJ019号甕棺墓から出土した「コバルトブルー」のガラス小玉については、分析値（藤田1994）からソーダ石灰ガラスと考えられる（表4-1）。さらに、酸化アルミニウムの含有量が比較的多く（5.232%）、酸化カルシウムが少ない（2.971%）ことから、本論文におけるソーダ石灰ガラスⅢに相当する可能性が高い。コバルトは検出されていないものの、酸化マンガンを2.76%含有し、淡紺色のソーダ石灰ガラスⅢと類似する。弥生時代中期中葉までの初期のガラス製品の分析事例は少ないが、カリガラスと鉛バリウムガラスが存在し、鉛ガラスも含まれる可能性がある（藤田1994）²⁾。

当該期のカリガラスは、すべてコバルト着色（Co¹類）による青紺色ガラス小玉で、引き伸ばし法(L)によって製作された典型的なインド・パシフィックビーズである。

弥生時代中期後葉にも鉛バリウムガラスやカリガラス小玉が存在するが、種類が変化する。アルカリ珪酸

表4-1 佐賀県東山田一本杉019号甕棺墓出土「コバルトブルー」ガラス小玉の分析値

東山田一本杉SJ019号甕棺墓 (wt%) (藤田1994)	
Na ₂ O	3.253
Al ₂ O ₃	5.232
SiO ₂	81.256
K ₂ O	1.320
CaO	2.971
TiO ₂	0.223
MnO	2.760
Fe ₂ O ₃	2.985

塩ガラスでは、銅着色のもの（カリガラスⅡ）が流入する（大賀 2002）。なお、鉛バリウムガラスについても人工青色顔料の「漢青」によって着色された管玉が出現し、流通量が増加している（大賀 2010a）。

弥生時代後期前半には、カリガラス製小玉の流通量が激増し、コバルト着色のもの（カリガラスⅠ）と銅着色のもの（カリガラスⅡ）では、流通状況の地域差が顕著となる（大賀 2003）。すなわち、当該時期のガラス玉類の出土には、福岡平野や糸島平野、もしくは佐賀平野を中心とする北部九州と、丹後半島および豊岡盆地を中心とした近畿北部のふたつの核が存在した。北部九州ではコバルト着色がやや優勢であるのに対して、近畿北部では銅着色が 90%前後と圧倒的に多い。

続いて、弥生時代後期後半にはガラスの種類が多様化する。まず、後期中葉頃にソーダ石灰ガラスⅢが流入する。前述の東山田一本杉 SJ019 甕棺墓出土品を除けば、初めての本格的な流入である。淡紺色や黄緑色が多く、赤褐色のものがそれに続く。分析はなされていないが、黄色（福岡県教育委員会 1980）や黒色（谷澤 2011）のものも少量発見されている。古墳時代の類例がソーダ石灰ガラスⅢであることを考慮すると、これらの色調もソーダ石灰ガラスⅢの可能性が高い。

一方、カリガラスは、銅着色のカリガラスⅡの流入がいったん中断し、コバルト着色のカリガラスⅠの直径 5 mmを超える大型品と、直径 2 mm程度でやや紫色味が強い、いわゆる粟玉へと変化する（大賀 2003）。本研究で、これら大型のカリガラスⅠにソーダ石灰ガラスⅠ' が多数共伴することが明らかとなった。型当て包み巻き法や型当て貫入法によるカリガラスⅠも流通している。これらは、引き伸ばし法(L)によるカリガラスⅠと着色剤の特徴が一致し（Co1 類）、製作技法のみが異なる。

当該時期には、流通量は少ないものの、ソーダ石灰ガラスⅠが流入している。このとき流入したソーダ石灰ガラスⅠには、コバルト着色（Co3 類）による紺色ガラス小玉でアンチモンが強く検出されるものと、淡青色不透明のガラス管玉とがある。前者は、広島県矢谷 D 地点方形周溝墓（MS 2）No. 3 主体（3 点）、神奈川県御茶屋通遺跡方形周溝墓（3 点）、千葉県大山台 5 号方形周溝墓第 2 主体（4 点）から、合計 10 点を確認した。矢谷 D 地点方形周溝墓（MS 2）No. 3 主体のものはソーダ石灰ガラスⅠ以外に共伴するガラスはないが、後二者はいずれもカリガラスⅠを少量伴う。なお、淡青色不透明のガラス管玉は、現状では西谷墳墓群出土例（肥塚・降幡 2006）に限られる。

古墳時代前期になると、流通するガラスの種類と分布に大きな変化が生じる。まず、鉛珪酸塩ガラスの流通が、弥生時代終末期までに終了する。アルカリ珪酸塩ガラス小玉については、カリガラスⅠおよびソーダ石灰ガラスⅠ'、ソーダ石灰ガラスⅢの流通がいったん中断する。代わって当該時期の大部分を占めるのは、古墳時代前期初頭に再び流入する銅着色のカリガラスⅡ、もしくは前期後半に出現する銅着色で淡青色半透明のソ

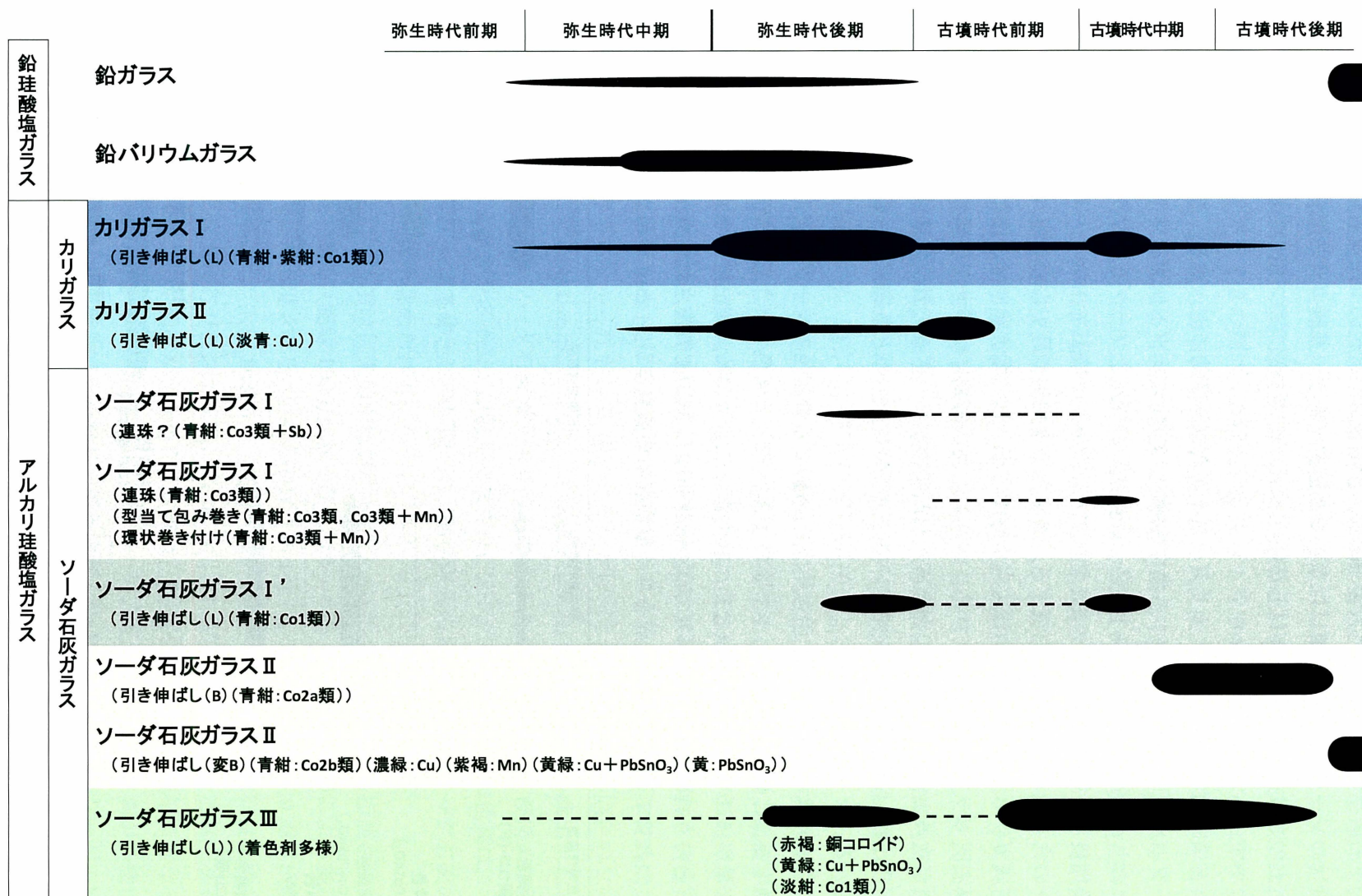


図4-1 日本列島におけるアルカリ珪酸塩ガラスの時期変遷

ーダ石灰ガラスⅢである（大賀 2002）。銅着色の淡青色のソーダ石灰ガラスⅢは、弥生時代のソーダ石灰ガラスⅢにはなかった色調であり、基礎ガラス成分の特徴も弥生時代のものとは異なる。引き伸ばし法(L)によるソーダ石灰ガラスⅢの色調別の消長を図 4-2 に示す。

古墳時代中期に入ると、カリガラスⅠが再び一時的に流入する。この時期もやはりソーダ石灰ガラスⅠ' と共存する場合が多い。また、ソーダ石灰ガラスⅠも再び流入する。ただし、当該時期のコバルト着色（Co3 類）の青紺色ソーダ石灰ガラスⅠは、弥生時代後期後半～終末期のものとは異なり、アンチモンは検出されない。代わりに酸化マンガンの含有量が多いものが出現する。また、日本列島で最も古い重層ガラス小玉（ソーダ石灰ガラスⅠ）が京都府宇津久志 1 号墳で出土し、環状巻き付け法による青紺色のソーダ石灰ガラスⅠも共伴している。さらに、当該時期には様々な色調のソーダ石灰ガラスⅢが次々と流入する。このとき流入した多彩なソーダ石灰ガラスⅢは、コバルト着色（Co1 類）の淡紺色のものを除いて、弥生時代のものと基礎ガラス成分の特徴が異なっている。

古墳時代中期後半には、引き伸ばし法(B)による青紺色のソーダ石灰ガラスⅡが大量に流通する。このガラスはコバルト原料（Co2a 類）で着色されたもので、酸化マンガンの含有量がほぼ 0.1～0.5%と少なく、酸化銅を 0.1～0.3%，酸化鉛を 0.1～0.2%前後含有するという特徴をもつ。本研究では、引き伸ばし法(B)で製作されたガラス小玉の特徴のひとつとして挙げたが、両端面を貫く気泡筋のある直径が 5 mm を超えるような大型品が

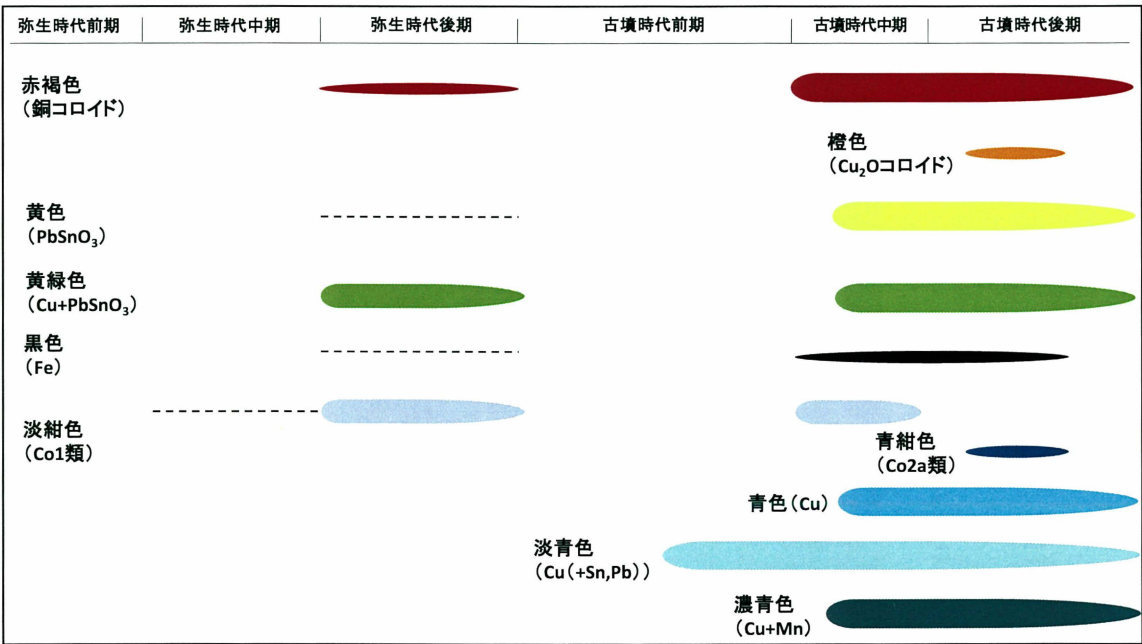


図 4-2 ソーダ石灰ガラスⅢの色調別の消長（引き伸ばし法(L)）

古墳時代中期後半～後期前半の古墳からまとまって出土することはすでに指摘されている（大賀 2002）。弥生時代後期に比定される福岡県三雲・井原遺跡井原ヤリミゾ 2582, 2583 番地 13 号甕棺墓出土の黄色透明ガラス小玉を除くと、古墳時代中期前半以前に遡る確実なソーダ石灰ガラスⅡの例は、京都府宇津久志 1 号墳出土の淡青色不透明ガラス小玉 1 点のみである。色調も古墳時代中期後半から大量に流入するソーダ石灰ガラスⅡとは違っており、系統が異なる可能性が高い。本資料は、大きさや色調が共通するソーダ石灰ガラスⅢの小玉が 91 点出土した中に混在していた。これらの例外的なものを除くと、ソーダ石灰ガラスⅡの日本列島への本格的な流入は、引き伸ばし法(B)による青紺色ガラス小玉が出現する古墳時代中期後半から始まる。

古墳時代中期後半から後期前半にかけては、引き伸ばし法(B)による青紺色ソーダ石灰ガラスⅡと引き伸ばし法(L)による多彩なソーダ石灰ガラスⅢが大量に流通し、それ以外の種類の流通量は相対的に減少する。当該時期には、連珠法による大型の青紺色ソーダ石灰ガラスⅡも流通している。これらは、コバルト原料の種類も引き伸ばし法(B)によるものと共通（Co2a 類）することから、引き伸ばし法(B)による青紺色のガラス小玉と製作技法のみが異なると理解できる。また、連珠法による大型の淡緑色のソーダ石灰ガラスⅡも、ほぼ同時期に流通している³⁾。他に注目すべき点として、古墳時代中期後半から後期に重層ガラス小玉の出土遺跡数が増加する。そのほとんどは、ソーダ石灰ガラスⅡもしくはソーダ石灰ガラスⅢであった。また、錫酸鉛による着色と考えられる黄色不透明のソーダ石灰ガラスⅡの小玉が、滋賀県甲山古墳から 1 点出土している。本資料は、製作技法の特定には至らなかったものの、後述する引き伸ばし法(変 B)による同色のソーダ石灰ガラスに先行する例である。やはり、同色のソーダ石灰ガラスⅢが多数出土しており、分析資料 22 点中、ソーダ石灰ガラスⅡのものは 1 点のみであった。後期末に引き伸ばし法(変 B)によるガラス小玉が出現するまでは、ソーダ石灰ガラスⅡの色調は、コバルト着色（Co2a 類）による紺色にほぼ限られ、紺色以外の多彩な色調はソーダ石灰ガラスⅢであるという関係が認められる。

最後の大きな変化は、古墳時代後期末に認められる。ひとつは、従来から指摘されている鉛ガラスの流入である（肥塚 1995）。もうひとつが、引き伸ばし法(変 B)による多彩なソーダ石灰ガラスⅡの出現である。それらのガラス小玉は、いずれも TK209 期に出現することが指摘されている（大賀 2010b）。本研究では、588 年に創立された奈良県飛鳥寺の塔心礎埋納物に含まれるガラス小玉に、一定量の引き伸ばし法(変 B)によるソーダ石灰ガラスⅡが含まれることが明らかとなった。これは、TK209 期の実年代の指標となる可能性がある。こうした引き伸ばし法(変 B)によるソーダ石灰ガラスⅡは、色調が多様化するとともに、同じコバルト着色であっても、引き伸ばし法(B)による青紺色ソーダ石灰ガラスⅡのコバルト原料（Co2a 類）とは異なる Co2b 類が用いられている。さらに、基

礎ガラス成分も酸化マグネシウムおよび酸化カリウムの含有量がやや多い値でまとまる（第3章 3-4）。製作技法や流通時期が異なることとあわせて、引き伸ばし法(B)による青紺色ソーダ石灰ガラスⅡとは系統が異なる可能性が高い。とくに、ソーダ石灰ガラスⅢでは弥生時代のものにすでに認められる錫酸鉛による黄緑色や黄色が、ソーダ石灰ガラスⅡでは遅れて出現する⁴⁾ことは、ガラスの着色技術の伝播を考察するうえで重要である。

古墳時代後期末以降には、以上のふたつのグループ以外のガラス製品は流入せず、しばらく後に、飛鳥池遺跡において日本列島内で初めて鉛ガラスの生産が開始されることとなる（肥塚 1995）。

弥生～古墳時代のアルカリ珪酸塩ガラスの流通に関する従来の理解では、弥生時代はカリガラスが流通の中心で、古墳時代になると2種類のソーダ石灰ガラスが大量に流通すると考えられてきた（肥塚 1995）。本研究によって、日本列島へ流入するガラス小玉は、これまで考えられてきた以上に、その種類が頻繁に入れ替わっていくことが明らかとなった。

4-2 アルカリ珪酸塩ガラス小玉の生産地

弥生～古墳時代の日本列島で流通したアルカリ珪酸塩ガラス小玉の生産地について、製作技法、基礎ガラス、着色剤のみの観点から考察する。また、日本列島での流通時期や同一遺構における共伴関係も生産地の異同を考えるうえで重要な手掛かりとなる。

4-2-1 カリガラス小玉の生産地

カリガラスは、地中海や西アジアなどで発達した「西のガラス」とは異なる組成のガラスで、南～東南アジアおよび東アジアで発達した「アジアのガラス」である（ブリル 1993）。本研究により、日本列島で流通したカリガラスは、基礎ガラスの化学組成の特徴から、カリガラスⅠとカリガラスⅡの2種類に大きく分かれることが明らかとなった。さらに、これら2種類のカリガラス小玉は、色調（着色剤）だけでなく、日本列島への流入時期や分布状況も異なることから、生産地が違う可能性が高いと考えられる。

近年、ランクトンら（Lankton and Dussubieux 2006）によって、カリガラスの化学組成による細分が進み、それぞれの分布域が明らかとなってきた。ランクトンらは、南アジアや東南アジア、韓国などに分布するカリガラスを、酸化アルミニウムおよび酸化カルシウムをいずれも2%程度含有するタイプ（Potash glass with moderate CaO and Al₂O₃: mKCA）、酸化アルミニウムが1%未満と極めて少ないタイプ（Potash glass with low Al₂O₃: mKC-lowA）、酸化カルシウムが1%未満で、かつ、酸化アルミニウム

の含有量が多いタイプ (Potash glass with low CaO: mKA-lowC) の3種類に分類している。

これら3種類のカリガラスは、色調や分布域に明確な特徴があり、mKCA タイプは、コバルト着色による紺色ガラス小玉と赤色不透明のものが多く、南アジアから東南アジアを経て朝鮮半島や日本列島まで広く分布する。一方、mKC-lowA タイプは、淡緑青色 (apua) もしくは無色のものが多く、タイ中部のバンドンタペット (Ban Don Ta Phet) やベトナム南部のゾンカーヴォ (Giong Ca Vo) など、東南アジアが分布の中心で、南インドやスリランカなどの南アジアにはほとんど存在しない。そして、mKA-lowC タイプは、北ベトナムから中国南部を分布の中心とし、鉄着色の緑色および銅着色の青～青緑が最も多いとされている。さらに、後二者には赤色不透明のものは存在しないことが注目される。

以上のような先行研究の成果と日本列島で出土するカリガラスを比較すると、カリガラスⅠは mKCA タイプに、カリガラスⅡは mKA-lowC タイプに相当すると考えられる。カリガラスⅡに対応する mKA-lowC タイプは、ベトナム北部から中国南部という比較的限られた地域に分布する点から見て、これらの地域で生産された可能性が高い。

一方、カリガラスⅠに対応する mKCA タイプは、南アジアから東南アジア、東アジアまで広範囲に分布し、生産地に関しては明確ではない。コバルト着色の紺色カリガラス小玉は、インド・パシフィックビーズの生産の中心地であったインドのアリカメドゥ遺跡で多数発見されているため、インドで生産された可能性が指摘され、酸化マンガン含有量の多いコバルト原料は、中国産のコバルト原料 (呉須土) の特徴であることから、中国で生産されたとも考えられてきた (Shi *et al.* 1986)。

本研究において、カリガラスⅠに利用された酸化マンガン含有量の多いコバルト原料 (Co1 類) が、ほぼ同時期に流通する淡紺色のソーダ石灰ガラスⅢにも用いられたことが明らかとなった。一方、典型的な「西のガラス」の特徴を有するソーダ石灰ガラスⅠやソーダ石灰ガラスⅡには Co1 類は用いられず、それぞれ独自のコバルト原料が利用されている。コバルト原料は金属のように入手が容易なものではなく、鉱物そのものを利用していたと考えられることから、入手可能な原料が一定地域内で交易された可能性が考えられる。さらに、コバルトを含むマンガン土 (wad) は、アリカメドゥの位置する南インドにも存在する (Wadia 1990, Fransis 2002)。したがって、酸化マンガン含有量の多いコバルト原料が用いられていることだけでは、紺色カリガラスが中国で生産されたことを示す根拠とはならない。

カリガラスⅠの生産地を推定するうえで重要なのが、金属銅コロイド着色による赤褐色ガラス小玉である。金属銅コロイド着色のカリガラスの存在は、当時すでにコロイド技術を獲得していたインドでカリガラスが生産された可能性を示すと考えられている

(Zhang 1991)。アリカメドゥでは紺色、黒色、緑色、赤色のカリガラスが発見されており、mKCA タイプであることが示されている (Lankton and Dussubieux 2006)。本研究でも、赤褐色不透明カリガラスの酸化アルミニウムと酸化カルシウム含有量は、カリガラス I の領域にプロットされ (3 章 3-5 図 3-48 参照)、ランクトンら (2006) の先行研究と整合的な結果が得られた。

以上のように、カリガラス I はインドで生産された可能性が十分考えられる。なお、日本列島で流通したカリガラス I には、直径 4～5 mm を境界に大型品と小型品、さらに直径が 2～3 mm 程度で紫紺色を呈するものが存在し、それぞれ流通時期も異なるが (大賀 2002)、基礎ガラスや着色剤に有意な差異は認められなかった。

4 - 2 - 2 ソーダ石灰ガラス小玉の生産地

ソーダ石灰ガラス I は、エジプトの塩湖に産出されるナトロンをソーダ原料としたガラス (ナトロンガラス) に相当する。ナトロンガラスは、紀元前 7 世紀にはすでにイタリアやキプロスなどの地中海周辺地域に出現し、ローマ帝国期には領内のガラス製品のほとんどがナトロンガラス製であった (Sayre 1965)。ローマ帝国領内でのガラス生産については、集中生産説 (Freestone *et al.* 2002) と分散生産説 (Jackson 2005) に分かれるものの、エジプトと東地中海沿岸地域⁵⁾ が二大生産地であったのは間違いないようである。ローマ帝国の東西分裂 (395 年) 後もナトロンガラスの生産は続くが、エジプトや東地中海沿岸地域では 9 世紀頃に植物灰ガラスに転換している (Freestone *et al.* 2000)。

ナトロンガラスは、アンチモンによって消色された透明ガラスやアンチモン化合物による不透明ガラスなど、アンチモンを多用する傾向がある (Sayre 1965)。消色剤に関しては、紀元前 1000 年紀はほとんどのものにアンチモンが利用されるが、紀元前後になるとマンガン消色のものが過半数を占めるようになる (図 4-3)。2～3 世紀にはアンチモン消色が再び盛行するとともに、アンチモンとマンガンの両方が同時に利用されたものもしばしば出現する。さらに、地域差はあるものの、東地中海沿岸地域においては 4 世紀の終わり頃までにアンチモン消色は途絶え、マンガン消色に収斂する。

日本列島では、コバルト着色 (Co³⁺ 類) による青紺色のガラス小玉が弥生時代後期～終末期と古墳時代中期前半に少量流入している。弥生時代のものからはアンチモンが検出されるのに対し、古墳時代のものからはアンチモンは検出されず、かわりに一部の資料からマンガンが検出されるという差異が認められた。ソーダ石灰ガラス I が、地中海周辺との遠隔地交易の結果として日本列島に流入したと考える場合、生産時期と流入時期に時間差が生じる可能性を考慮する必要がある (齋藤 2012) が、おおむね東地中海沿岸地域でのアンチモン消色からマンガン消色への移行という変化に対応している点は注

目される。

近年、地中海周辺地域で出土するナトロンガラスの細分が進み、消色剤のアンチモンやマンガンの分類に加えて、基礎ガラス成分である酸化ナトリウムや酸化マグネシウム、酸化アルミニウム、酸化カルシウムなどの含有量からいくつかの種類が設定されている (Freestone *et al.* 2000, Foster and Jackson 2009)。それぞれのグループに対応する生産地が十分に解明されているとはいえないが、7世紀以前の資料に限っていえば、エジプトのナトロンガラスは東地中海沿岸のナトロンガラスに比べて酸化アルミニウムが多く(4%前後)、酸化カルシウムが少ない(3%前後)という傾向がある (Freestone *et al.* 2000) (図 4-4)。

日本列島で出土したソーダ石灰ガラス I は、酸化アルミニウムが2~6%、酸化カルシウムが6~10%のものが多く(図 4-5)。酸化アルミニウム含有量の少ないソーダ石灰ガラスは、風化部分で酸化アルミニウムが $1.1 \pm 0.3\%$ 増加する傾向があり、酸化カルシウムも $0.8 \pm 0.3\%$ 増加する傾向がある (第2章 2-4 表 2-7 参照)。この点を考慮しても、日本列島で出土するソーダ石灰ガラス I は、酸化カルシウムが3%と少ないエジプトタイプとは異なると考えられる。日本列島で出土するソーダ石灰ガラス I の生産地としては、東地中海沿岸がひとつの候補となるが、西北ヨーロッパにも生産地が存在した可能性も指摘されており (Foster and Jackson 2009)、地中海周辺地域での生産地研究の進

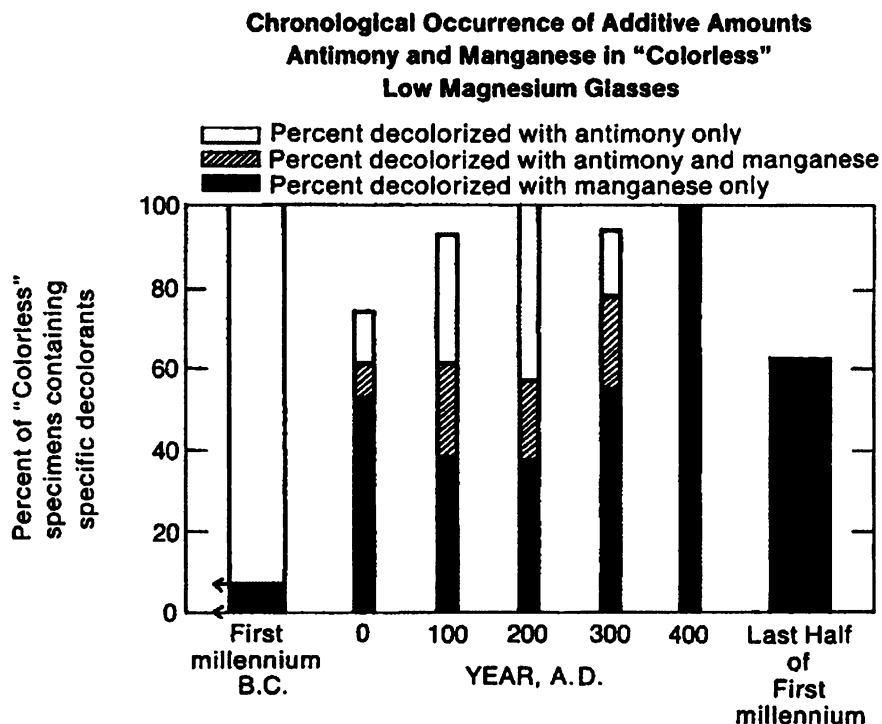


図 4-3 ナトロンガラス(無色)におけるアンチモン着色とマンガン着色の時期変遷
(Sayre 1965 より抜粋)

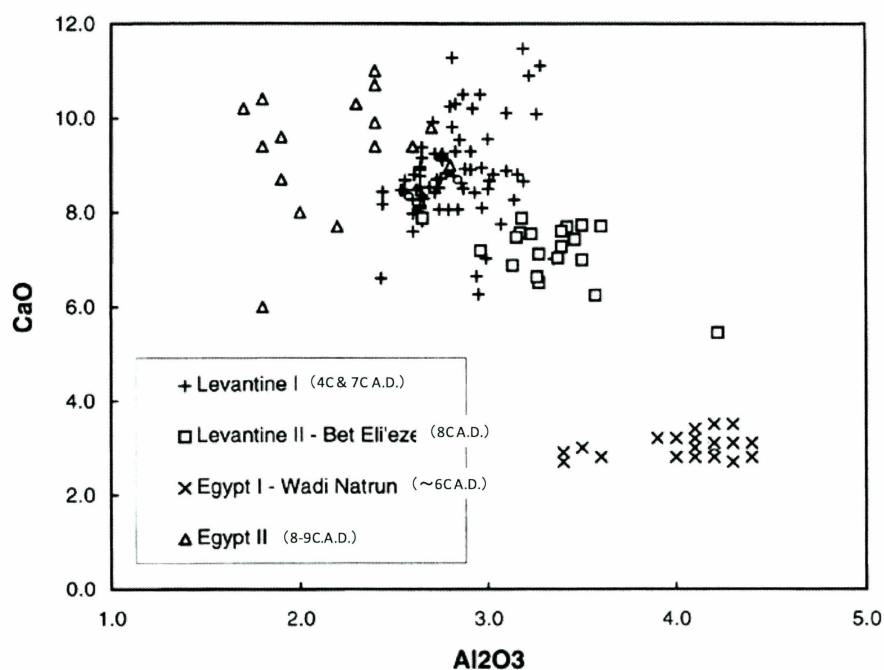


図 4-4 エジプトタイプ (Egypt I) と東地中海タイプ (Levantine I) の Al_2O_3 -CaO 含有量
(Freestone *et al.* 2000 一部改変)

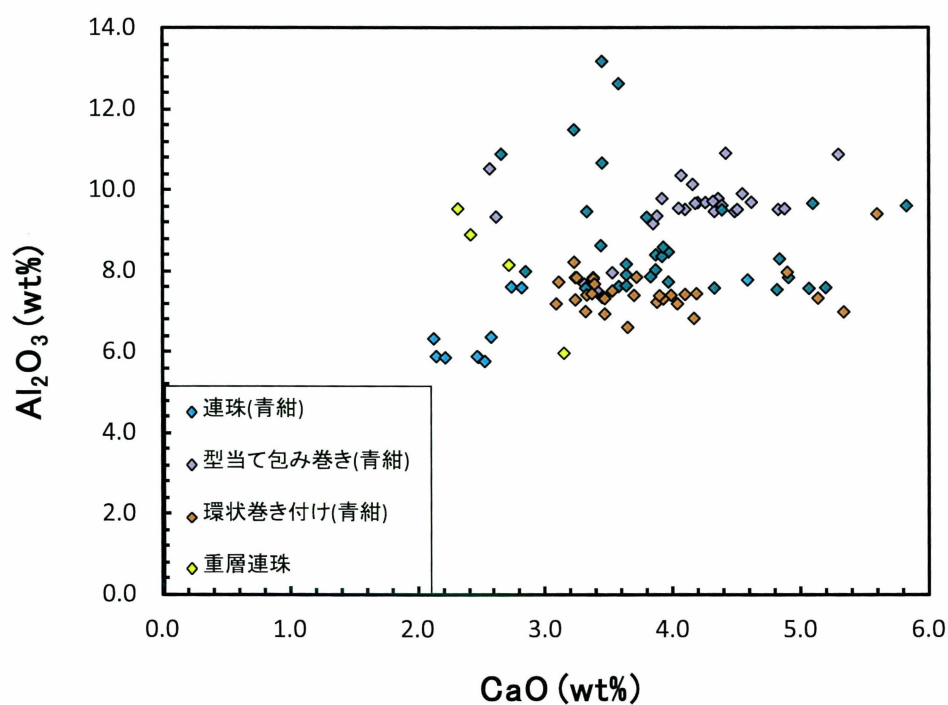


図 4-5 日本列島出土のソーダ石灰ガラス I の Al_2O_3 -CaO 含有量

展を待ちたい。日本列島に流入したナトロンガラスには、少なくとも、弥生時代のアンチモンを検出するタイプ（酸化マンガンは0.1%未満）、古墳時代のアンチモンを含まず酸化マンガン含有量が多い（>0.5%）タイプ、アンチモンを含まず酸化マンガン含有量も少ないタイプ（<0.1%）の3種類が存在していたことが確実である。本研究は非破壊法によっているため、基礎ガラス成分である酸化ナトリウムや酸化マグネシウム、酸化アルミニウム、酸化カルシウムなどの含有量のわずかな差異を議論することには慎重にならざるをえないが、酸化カリウムと酸化マグネシウムの含有量がこれらの消色剤タイプや製作技法ごとにまとまってプロットされることは注目される（図4-6）。

一方、ソーダ石灰ガラスⅠ'については、ナトロンガラスの特徴に近いものの、酸化カリウム含有量がやや多い傾向にあり、2%を超えるものが存在することから、典型的なナトロンガラスであるソーダ石灰ガラスⅠとは区別した。

ソーダ石灰ガラスⅠ'は、製作技法や着色剤の種類が「アジアのガラス」であるカリガラスⅠと極めて類似する。このため、少なくともソーダ石灰ガラスⅠ'の着色および小玉への加工は、カリガラスⅠの生産地と技術的な関係のあった地域でおこなわれた可能性が高い。カリガラスⅠの生産地の候補であるインドでは、エジプトをはじめとする地中海周辺地域と活発に交易していたことが、1世紀頃の成立とされる『エリュトラール海案内記』に詳しい。このような交易の中で、未加工のガラスがエジプトからインドに

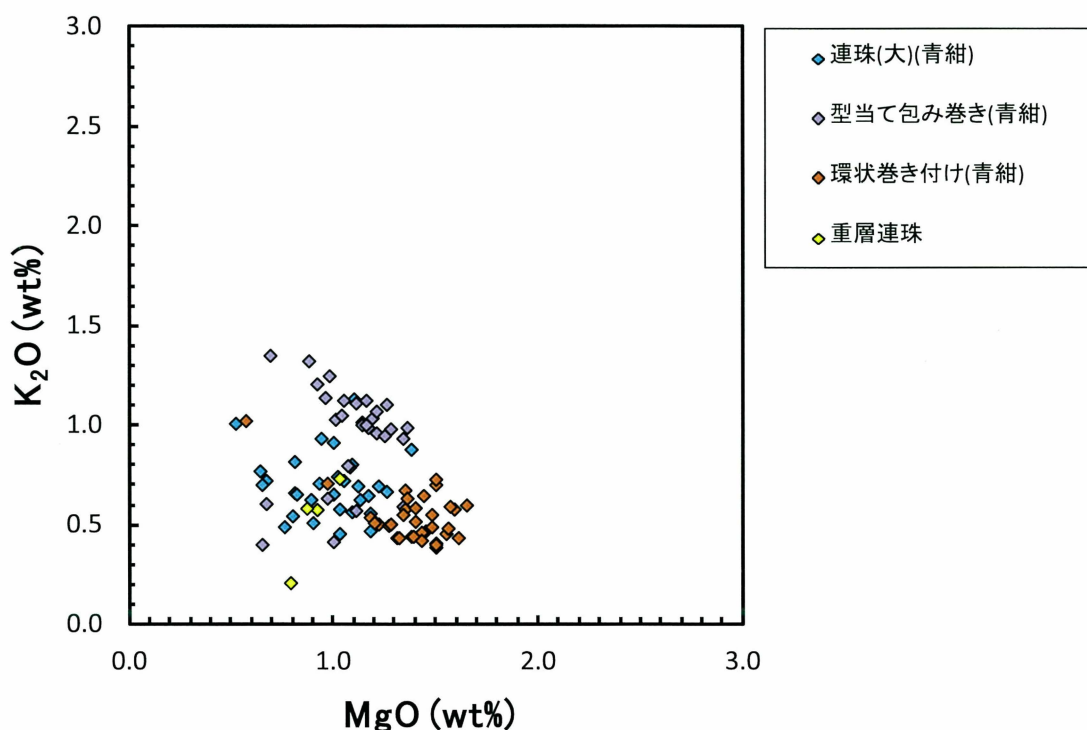


図4-6 日本列島出土のソーダ石灰ガラスⅠのMgO・K₂O含有量

輸出されていたことも知られている。ソーダ石灰ガラスⅠ' は、ナトロンガラスをベースとして、異なる種類のガラスが混合された可能性もある。この場合、ソーダ石灰ガラスⅠ' のベースとなったナトロンガラスとしては、酸化カルシウム含有量が少ないエジプトタイプが最も近いが、ソーダ石灰ガラスⅠ' の酸化アルミニウム含有量はエジプトタイプほど多いとは言えない（図 4-7）。したがって、ソーダ石灰ガラスⅠ' は、エジプトから輸入したナトロンと在地の珪砂を利用した可能性もあり、ガラスそのものの具体的な生産地の推定には至らなかった。

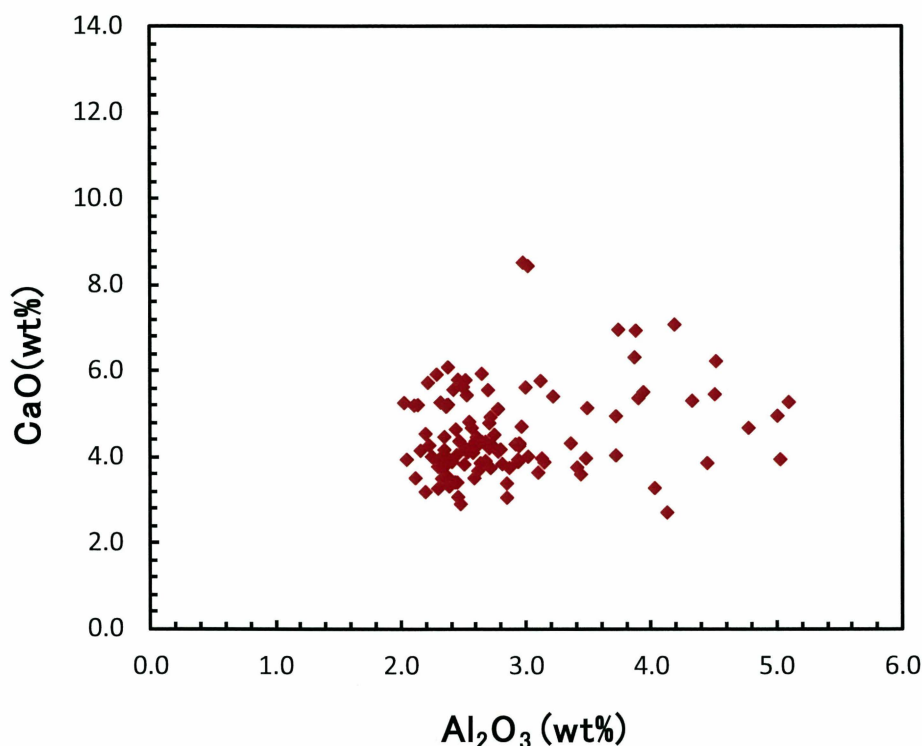


図 4-7 日本列島出土のソーダ石灰ガラスⅠ' の Al_2O_3 -CaO 含有量の関係

ここで、ソーダ石灰ガラスⅠの着色および玉への加工についても考察しておく。着色については、着色剤が「アジアのガラス」に用いられた Co1 類とは異なるので、ガラスが生産された地中海周辺で着色された可能性が高い。ただし、弥生時代のものや古墳時代の一部のソーダ石灰ガラスⅠには、消色剤と考えられるアンチモンやマンガンが検出されることから、ガラスの生産と着色が同時であったかどうかは疑問が残る。すなわち、無色の素材ガラスを目的に応じて、後から着色した可能性もある。

小玉への加工については、弥生時代の特殊な製作技法によるものや、環状巻き付け法によるものは、基礎ガラスの種類の異なるガラスには出現しないため、ソーダ石灰ガラ

スⅠが生産された地中海周辺地域で小玉に加工された可能性が高い。連珠法で製作された大型品は、ソーダ石灰ガラスⅡやソーダ石灰ガラスⅢにも存在する。ただし、ソーダ石灰ガラスⅡやソーダ石灰ガラスⅢは古墳時代後期になって出現するのに対し、ソーダ石灰ガラスⅠは古墳時代中期前半に認められる。したがって、連珠法によるものも地中海周辺地域で小玉に加工された可能性が高い。

また、古墳時代のソーダ石灰ガラスⅠには、型当て包み巻き法によるものが多数存在する。型当て包み巻き法については、弥生時代後期にカリガラスⅠやソーダ石灰ガラスⅡの可能性のある黄褐色透明のガラス小玉に適用される一方、ソーダ石灰ガラスⅠには適用されていない。古墳時代にも、カリガラスⅠやソーダ石灰ガラスⅢなど「アジアのガラス」製のものは一定量存在し、技術的な近縁関係が認められる型当て貫入法は、カリガラスⅠやソーダ石灰ガラスⅢなど「アジアのガラス」に限られている。以上の点から、型当て包み巻き法は、南～東南アジアにその技術的伝統があると推察される。したがって、型当て包み巻き法によるソーダ石灰ガラスⅠは、着色された素材ガラスを南アジア東南アジア地域で小玉に加工した可能性がある。

ソーダ石灰ガラスⅡは、「西のガラス」のなかでも、植物灰を融剤に用いた植物灰ガラスに相当する。ナトロンを融剤に用いたナトロンガラスが、ローマ帝国期を通じて地中海周辺地域で生産されたのに対し、メソポタミアおよびチグリス川以東のペルシアなどでは、常に植物灰が融剤に用いられた (Sayre 1974)。ササン朝ペルシアのガラス (ササンガラス) が代表的な植物灰ガラスである。

これらのササン朝ペルシアの切子碗と形態や化学組成が類似するガラス切子碗が、日本列島でも見つかっている (新沢千塚 126 号墳出土品 (小田 1977)、伝安閑陵出土品、福岡県沖ノ島の祭祀遺跡出土品など)。新沢千塚 126 号墳出土切子碗の分析値を表 4-2 に示す。これらの容器類は、西アジアから陸のシルクロードを経由して日本へ持ち込まれたと考えられている。このことから、古墳時代中期後半以降に大量に流入した青紺色のソーダ石灰ガラスⅡの小玉も、ササン朝ペルシアまたはササン朝ペルシアと技術的な交流があった地域で生産された可

表 4-2 新沢千塚 126 号墳出土切子碗の分析値
(小田 1977)

重量濃度 (wt%)	
Na ₂ O	14.2
MgO	4.81
Al ₂ O ₃	1.36
SiO ₂	65.5
P ₂ O ₅	0.65
K ₂ O	3.10
CaO	8.43
MnO	0.04
Fe ₂ O ₃	0.65
Total	98.74

能性が高い。着色剤も「アジアのガラス」に用いられたコバルト原料とは異っており、吹き技法が用いられた可能性のある引き伸ばし法(B)で製作されているため、ササン朝ペルシアやその文化圏で着色、加工されたものが製品として流入したと考えられる。

連珠法による大型品についても、ソーダ石灰ガラスⅡと同じ「西のガラス」であるソーダ石灰ガラスⅠに多く、「アジアのガラス」には一般的でないことから、ガラスの生産から小玉への加工までをササン朝ペルシアやその文化圏でおこなった可能性が高い。一方、東大寺金堂鎮壇具に含まれる型当て貫入法によるソーダ石灰ガラスⅡは、「アジアのガラス」に適用される製作技法である。これらは、ガラス素材の生産地と加工地が異なる可能性がある。

引き伸ばし法(変 B)によるガラス小玉類は、製作技法や着色剤および日本列島での流通時期が異なるので、引き伸ばし法(B)による青紺色ガラス小玉とは系統が異なる可能性が高い。化学組成も酸化マグネシウムや酸化カリウムの含有量がやや高い値でまとまる傾向を示す（3章 3-5 図 3-52 参照）。さらに、錫酸鉛による黄色や黄緑色が一定量存在するようになることは、先行してこれらの着色技法を多用していたソーダ石灰ガラスⅢの生産者集団との技術交流を示唆する可能性がある。ただし、具体的な生産地の候補地は現在のところ不明である。

ソーダ石灰ガラスⅢは、南～東南アジア各地に生産拠点が存在していたことが知られる（e.g. Brill 1986, Lankton *et al.* 2006）。そのほとんどが引き伸ばし法(L)による典型的なインド・パシフィックビーズであることも、南～東南アジアで製作されたガラスであることを示している。

本研究において、日本列島に流入したソーダ石灰ガラスⅢは、基礎ガラスの化学組成が時期により異なることが明らかとなった。日本に流入した高アルミナソーダ石灰ガラス小玉の生産地も時期によって異なる可能性がある。日本列島で流通したソーダ石灰ガラスⅢは、弥生時代後期に流通した黄緑色と赤褐色のガラス小玉、弥生時代後期と古墳時代中期に流通した淡紺色のガラス小玉、および古墳時代前期後半以降に流通した淡紺色以外のガラス小玉である。

弥生時代の黄緑色および赤褐色ガラス小玉は、典型的な高アルミナソーダ石灰ガラスに比べると、酸化アルミニウムがやや少なく、酸化カルシウムがやや多い。さらに、酸化カリウムと酸化マグネシウムの含有量が多いという特徴を有する。このような弥生時代の黄緑色および赤褐色ガラス小玉と類似した特徴をもつガラス小玉が、インドのアリカメドゥで特徴的に出土している（Lankton and Dussubieux 2006）。ランクトンは、これらをアリカメドゥタイプのソーダ石灰ガラスと呼び、一般的な高アルミナソーダ石灰ガラス（High-alumina mineral-soda glass: mNA）と区別した。アリカメドゥタイプのソーダ石灰ガラスには黄緑色、赤色、および黒色が多く、「アリカメドゥのカリガラス」

(本論文におけるカリガラスⅠに対応、4-2-1 参照) と共存する (Lankton and Dussubieux 2006)。弥生時代の類例も黄緑色および赤褐色であることから、アリカメドゥタイプに対応する可能性がある。さらに、分析はなされていないものの、同じく弥生時代後期に黒色のインド・パシフィックビーズが少量存在することも注目される。弥生時代の黄緑色、赤褐色、黒色ガラス小玉は、多くの場合、カリガラスⅠと共伴する (谷澤 2011)。

一方、淡紺色のソーダ石灰ガラスⅢは、酸化アルミニウムと酸化カルシウムの含有量では典型的な高アルミナソーダ石灰ガラスと言えるものの、酸化チタンの含有量が古墳時代の他の色調のものよりも少ない傾向にある (第3章 3-4 図 3-62, 3-65 参照)。また、酸化マグネシウムの含有量が1%前後と比較的少ない (第3章 3-4 図 3-62 参照) ことから、アリカメドゥタイプの黄緑色や赤褐色のソーダ石灰ガラスⅢとも生産地が異なる可能性が高い。現状では、南～東南アジアの資料に明確な類例を見出せなかったため、具体的な生産地は不明だが、着色剤のコバルト原料がカリガラスⅠおよびソーダ石灰ガラスⅠ' と共通することが生産地を解明する手掛かりとなるかもしれない。また、日本列島では、インドで生産された可能性のあるカリガラスⅠ、ソーダ石灰ガラスⅠ'、アリカメドゥタイプの黄緑色、または赤褐色のソーダ石灰ガラスⅢと共伴することが多い。これらのことから、基礎ガラスの化学組成の特徴がアリカメドゥタイプとは異なるものの、インドで生産された可能性は認められる。

古墳時代のソーダ石灰ガラスⅢは、従来から知られる典型的な高アルミナソーダ石灰ガラスの特徴を有する。同色のガラス小玉でも、酸化チタンなどの基礎ガラス成分の含有量に変異が大きいことから、古墳時代のソーダ石灰ガラスⅢにも複数の生産地があった可能性がある (第3章 3-5 図 3-65 参照)。しかし、南～東南アジアの資料では、上述のアリカメドゥタイプ以外、生産地と対応するような化学組成による分類がなされていないため、具体的な生産地の解明には至らなかった。

古墳時代のソーダ石灰ガラスⅢについては、鉛同位体比による研究成果が発表されている (魯 2010)。それによると、古墳時代後期に比定される熊本県小田良古墳出土の黄緑色ガラス小玉および韓国武寧王陵出土ガラス小玉は、鉛同位体比がいずれも東南アジア産と考えられている領域に分布する。少なくとも、古墳時代の一部のソーダ石灰ガラスⅢは東南アジアで製作された可能性があるが、黄緑色ガラスに含まれる鉛は着色剤として添加された錫酸鉛に由来するため、ガラスそのものの生産地を直接示すものではないことに留意する必要がある。人工黄色顔料である錫酸鉛が広域に交易されていた場合は、顔料の産地とガラス小玉の産地が異なる可能性もある。

武寧王陵出土のガラス小玉を、近接する時期の日本列島出土のガラス小玉を比較すると、橙色や大部分の黄色ガラス小玉のように、日本列島のものと類似の化学組成を示す

種類もある一方、黄緑色のガラス小玉は基礎ガラスの化学組成に差異が認められた。古墳時代後期の日本の複数の遺跡から出土した黄緑色ガラス小玉の大部分が酸化アルミニウムを5%以上含有する(図4-8)のに対し、武寧王陵出土の黄緑色ガラス小玉の酸化アルミニウム含有量は5%以下と少ない(図4-9)。また、前述したように、武寧王陵出土のガラス小玉と熊本県小田良古墳で出土した黄緑色ガラス小玉は、鉛同位体比がいずれも東南アジア産と考えられている領域に分布する(魯2010)。小田良古墳の黄緑色ガラス小玉は、酸化アルミニウムの含有量が8%前後と報告されている(白瀧ほか2010)ことから、典型的な高アルミナソーダ石灰ガラスであり、武寧王陵出土品とは異なる化学組成の特徴を有する。武寧王陵と日本の小田良古墳で出土した黄緑色のガラス小玉は、着色剤原料の産地が共通する一方で、基礎ガラスの生産地は異なる可能性が考えられる。

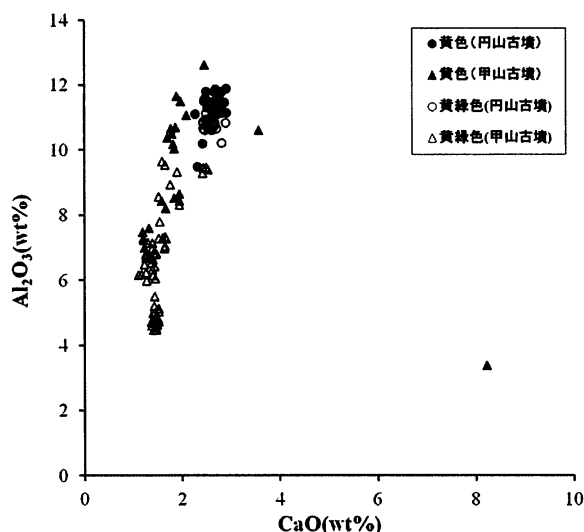


図4-8 黄色・黄緑色ガラス小玉の $\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3$ 含有量
(日本 滋賀県円山古墳・甲山古墳)

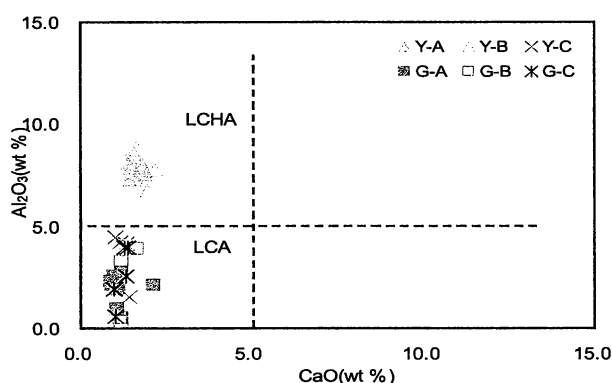


図4-9 黄色・黄緑色ガラス小玉の $\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3$ 含有量
(韓国 武寧王陵) (召ほか2007より抜粋)

最後に、重層ガラス小玉の生産地について考察する。日本列島で出土する重層ガラス小玉には、ソーダ石灰ガラスⅠ、Ⅱ、Ⅲの3種類が存在することが明らかとなった。重層ガラス小玉の類例は、黒海北岸のパンティカパエウム (Panticapaeum) やタナイス (Tanaïs) などの遺跡で、紀元前3世紀～紀元4世紀頃の層位から集中して出土することが知られている(谷一1988)。これらの都市は当該時期にローマ帝国の影響下にあり、ローマガラスの容器も多く出土している(丸山1973)。黒海北岸地域が日本列島で出土するソーダ石灰ガラスⅠの重層ガラス小玉の生産地の有力候補となろう。日本列島で最も古い時期の重層ガラス小玉である古墳時代中期前半の京都府宇津久志1号墳例は、ソ

ーダ石灰ガラスⅠであった。

一方、古墳時代後期以降は、ソーダ石灰ガラスⅡおよびソーダ石灰ガラスⅢの重層ガラス小玉が主流となる。これらの生産地は、それぞれ、ササン朝ペルシアの文化圏および南～東南アジアと考えられる。重層ガラス小玉が、黒海北岸以外にもイランやインド、東南アジアで発見されている事実と矛盾しない（谷一 1988）。

日本列島で最も古い古墳時代中期前半の重層ガラス小玉がソーダ石灰ガラスⅠであるのに対し、古墳時代後期以降はソーダ石灰ガラスⅡおよびソーダ石灰ガラスⅢのものが主流となることから、日本列島に流入する重層ガラス小玉の生産地は、地中海周辺地域からササン朝ペルシア文化圏や南～東南アジアに変化したと考えられる。黒海北岸地域で発達した重層ガラス小玉の製作技術が、これらの地域へ伝播した可能性もある。

なお、古墳時代後期の福岡県多久瓜ヶ坂遺跡（5区 SO-4）から出土した3点の重層ガラス小玉を分析したところ、すべて異なる種類のソーダ石灰ガラスであった。すなわち、ソーダ石灰ガラスⅠ、Ⅱ、Ⅲの重層ガラス玉が1点ずつ同時に出土している。よって、どこかに重層ガラス玉の集積地があった可能性がある。

4-3 アルカリ珪酸塩ガラス小玉から見た交易ルートとその変遷

以上、日本列島に流入したアルカリ珪酸塩ガラスの種類とその時期変遷を述べるとともに、それぞれの種類に対応する生産地を推定した。ここでは、弥生～古墳時代の日本列島で流通したガラス小玉の交易ルートとその変遷について考察する。

弥生～古墳時代に流通したガラス小玉は、大賀が色調と製作技法、およびそれらから推定される基礎ガラスの種類に基づいて分類単位を設定し、日本列島におけるガラス小玉の普及過程や地域性を論じている（大賀 2002, 2003）。

ただし、大賀（2002）が分類をおこなった時点では、化学組成の分析がなされていない種類も多く、本研究で明らかとなった基礎ガラスの種類と色調および製作技法の組み合わせとは不整合が生じている。以下では、大賀（2002, 2003）が示したガラス小玉の分類や変遷観に修正を加えつつ、新たに見えてきたガラスの交易ルートとその変遷について述べる。

ガラスの流入が始まった弥生時代前期末～中期中葉までのガラス製品は、北部九州に出土が限られている（大賀 2002）。この時期に流通したのは、中国起源の鉛珪酸塩ガラスとカリガラスⅠおよび淡紺色のカリガラスⅢという、東南アジアよりもむしろインド周辺に生産地が想定されるガラス小玉である。そして、弥生時代中期後葉になると、ベトナム北部から中国南部で生産された可能性の高いカリガラスⅡが流入する。

ガラス小玉の流通量が激増した弥生時代後期前半には、北部九州と近畿北部にガラス

小玉流入の核が存在し、地域差が顕著になる（大賀 2003）。すなわち、北部九州には引き続きカリガラスⅠとカリガラスⅡが流通し、前者の方がやや優勢である。さらに、アリカメドゥで生産された可能性のある黄緑色および赤褐色のソーダ石灰ガラスⅢが流入する。2種類のカリガラスにソーダ石灰ガラスⅢを比較的多く伴うようなガラス小玉の構成は、朝鮮半島南部の複数の遺跡と類似し、朝鮮半島南部を経由するルートが示唆されている（大賀 2002, 谷澤 2011）。カリガラスⅠとカリガラスⅡは生産地が異なる可能性が高いが、谷澤は、北部九州ではこの2種類のカリガラスの共伴率が高いことから同時入手と考え、生産地の異なるカリガラスの集積と、日本列島への流入の中継窓口として、楽浪郡や洛陽を想定した（谷澤 2011）。

一方、近畿北部ではカリガラスⅡが圧倒的に多く、ソーダ石灰ガラスⅢの流入は認められない（大賀 2003）。このようにカリガラスⅡが圧倒的多数を占める近畿北部の様相は、朝鮮半島南部に類例がほとんど知られていない。また、日本列島や朝鮮半島以外では、カリガラスⅡの分布域がベトナム北部～中国南部という限られた範囲に集中するので、江南地域以南から直接入手した可能性があるとするれば、アルカリ珪酸塩ガラス小玉の構成がカリガラスⅡに偏る近畿北部のような事例が候補となろう。

弥生時代後期後半～終末期になると、北部九州ではソーダ石灰ガラスⅢが急増するとともに、ソーダ石灰ガラスⅠ' が出現し、カリガラス（Ⅰ・Ⅱ）よりも優勢になる。なお、当該時期にはカリガラスⅠが大型のものに変化する（大賀 2003）が、これら大型のカリガラスⅠとソーダ石灰ガラスⅠ' は、大きさや色調などが極めて類似し、肉眼での判別が困難なため、従来は弥生時代の多くの青紺色ガラス小玉がカリガラスと理解されてきた（肥塚 1995）。しかしながら、実際にはカリガラスⅠとほぼ同量、もしくはそれ以上のソーダ石灰ガラスⅠ' が流通していたことが明らかとなった（図 4-10）。ただし、こうした傾向は北部九州に限られ、当該時期に同じく大型の青紺色ガラス小玉が比較的多く流入する南関東では、ほぼカリガラスⅠのみから構成される。この時期の南関東は、カリガラスⅠとカリガラスⅡがほぼ同量流通する点で、北部九州のガラス小玉の構成と類似する一方、北部九州で流通する黄緑色や赤褐色のソーダ石灰ガラスⅢが存在しない（大賀 2003）。青紺色ガラス小玉の構成からみる限り、北部九州に流入した青紺色ガラス小玉が南関東に伝播したとは考えにくく、独自の入手経路があった可能性も考えられる。また、形態的特徴や色調が極めて類似するカリガラスⅠとソーダ石灰ガラスⅠ' がどの時点で混合されたのかという点も重要な問題であるが、日本列島以外の出土状況が不明なため、明らかにすることはできなかった。

当該時期には、わずかながら、地中海周辺地域で生産されたソーダ石灰ガラスⅠも流入している。出土数が少ないため、分布には言及しないが、中国地方や南関東で出土例を確認した。

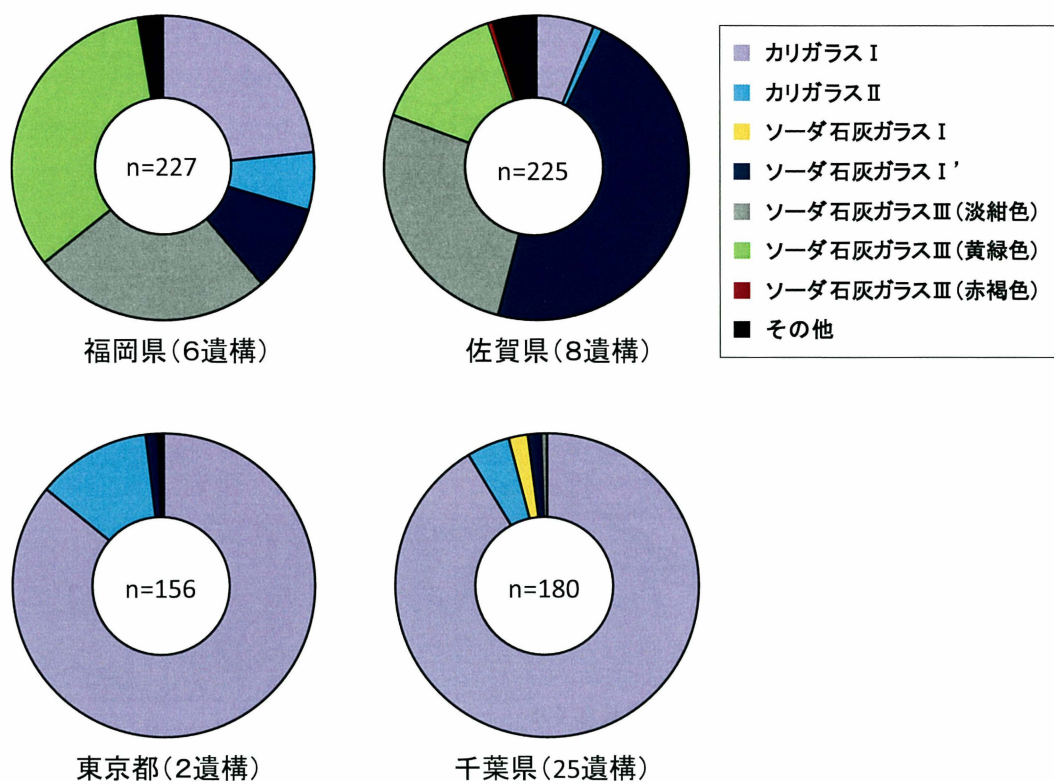


図 4-10 北部九州および南関東の弥生時代後期後半～終末期のガラス小玉の構成

以上のように、弥生時代に流通したアルカリ珪酸塩ガラスは、南～東南アジア起源のものが圧倒的に多い。これらのうち、カリガラス I は、南～東南アジアに広く分布する (Lankton and Dussubieux 2006) ほか、中国江南以南の江蘇省、広東省、広西チワン族自治区などの沿岸部に分布し (Zhang 1991)、海路で運ばれてきた可能性がある。一方、雲南省などの中国南西部からも大量に出土しており (Zhang 1991)、一部は陸路を通して華北平原に到達したものが流入した可能性がある (図 4-11)。

カリガラス I と共存することの多いソーダ石灰ガラス I' およびソーダ石灰ガラス III も、どちらかのルートを通して日本列島に流入した可能性が高い。また、ソーダ石灰ガラス I も、カリガラス I と共伴する例が多いことから、少なくとも南アジアまでは海回りのルートで伝来したと推定される。日本列島へ流入する最終的な経由地については、上述したように複雑な様相を呈する。いくつかの異なる流入経路が併存していたと考えられる。

古墳時代に入ると、畿内周辺にガラスの流通の中心が形成され、古墳時代前期前半にはカリガラス II が、古墳時代後期後半にはこれと入れ替わるように、同色のソーダ石灰ガラス III が流入している (大賀 2003)。このとき流入した淡青色のソーダ石灰ガラス III

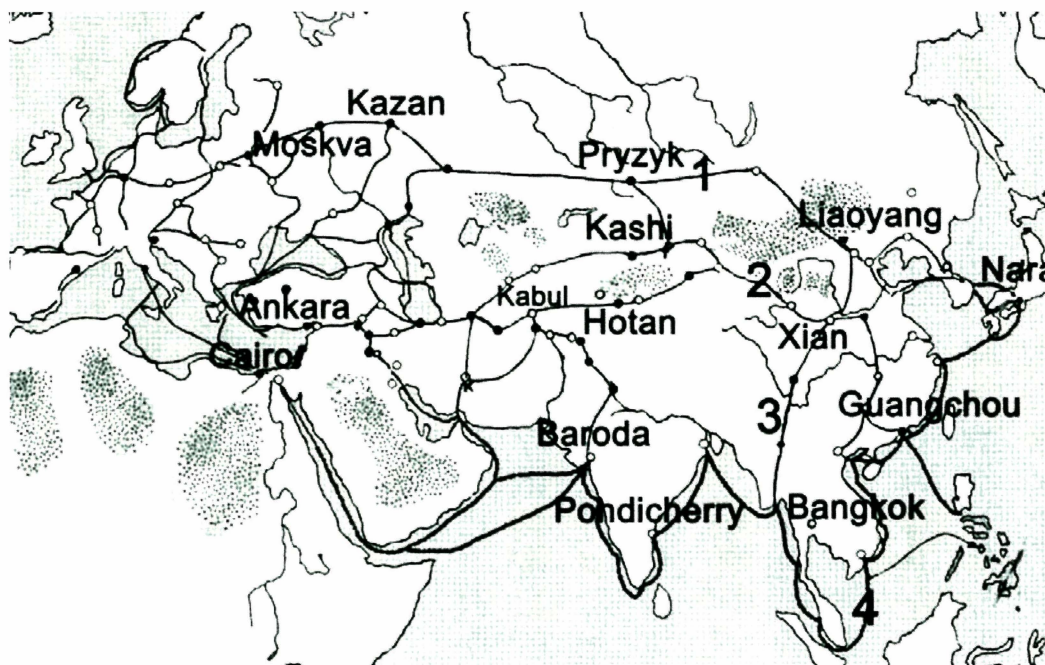


図 4-11 シルクロードの主要な 4 ルート (Gan 2009 一部改変)

(1 : 草原の道 (Steppe Silk Road), 2 : オアシスの道 (Oasis Silk Road),
3 : 仏教の道 (Buddhist Silk Road), 4 : 海の道 (Sea Silk Road))

の生産地は不明であるが、同じ銅着色で、かつ、錫および鉛が検出されるという着色剤の特徴が、それまで流通していたカリガラスⅡと共通することは注目される。カリガラスⅡの流入がその後再開することがないことから、同じ生産地で生産するガラスの種類が、カリガラスⅡからソーダ石灰ガラスⅢへ転換した可能性も考えられる。淡青色のガラス小玉に偏る当該時期の様相も朝鮮半島南部とは異なっており、江南地域以南から直接入手した可能性がある。

古墳時代中期前半には、大型のカリガラスⅠとソーダ石灰ガラスⅠ' および淡紺色のソーダ石灰ガラスⅢが再び流通する。これらの化学組成の特徴は弥生時代後期後半～終末期のものと同一である。さらに、地中海周辺起源のソーダ石灰ガラスⅠ (アンチモンを含まないタイプ) が流入している。このときに流入したソーダ石灰ガラスⅠには、南～東南アジアで玉に加工された可能性のある型当て包み巻き法のものが多く含まれ、カリガラスⅠやソーダ石灰ガラスⅢとともに海回りのルートで流入した可能性が高い。この時期のガラス小玉の構成は、朝鮮半島南部との類似性が復活しているので、朝鮮半島南部を経由して流入したと推定される。

古墳時代中期後半以降には、ガラス製品の流入経路が大きく変化し、ササン朝ペルシ

アのガラスと化学組成が類似したソーダ石灰ガラスⅡが大量に流通するようになる。古墳時代中期後半～後期前半頃のソーダ石灰ガラスⅡの紺色小玉の流入量は膨大で、ひとつの遺構から出土したガラス小玉の9割以上を占める例も認められる。当該時期の東南アジアでは、高アルミナソーダ石灰ガラスが優勢であり、ガラス全体に占める植物灰ガラスの割合は低い (Song 2010) (図 4-12)。したがって、古墳時代中期後半以降に流入したソーダ石灰ガラスⅡは、従来の海路とは異なる経路で流入したものと推察される。

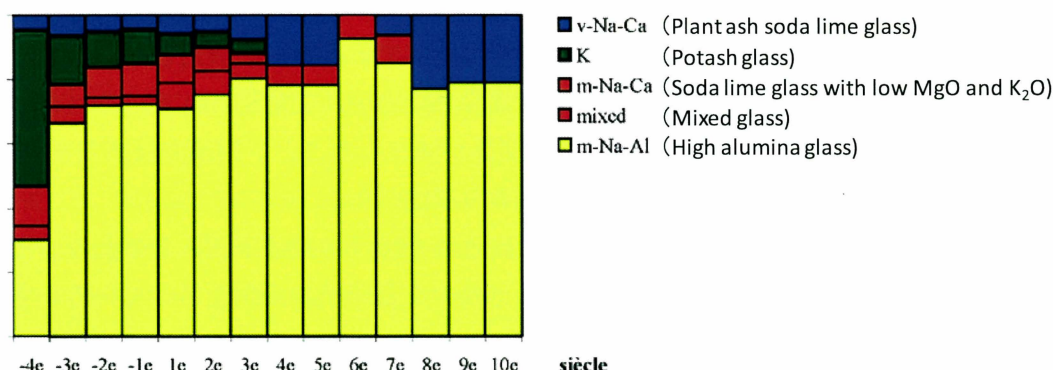


図 4-12 東南アジアにおけるガラス小玉の消長 (Dussubieux 2001 (Song2010 より転載) 一部改変)

日本の古墳時代中期に相当する時期に、朝鮮半島の新羅の中心地であった慶尚北道慶州市の遺跡から、紺色のガラス小玉が大量に出土している。網羅的な分析調査がおこなわれていないため、朝鮮半島の新羅地域で出土した紺色ガラス小玉の化学組成は不明なものが多いが、ソーダ石灰ガラスⅡのガラス小玉と色調および形態的特徴が極めて類似する。すなわち、「気泡というよりも空隙が孔に平行して伸長するために白色の白い縞が見え、しかも空隙が両端面を貫くタイプ」(大賀 2002, p.136, ll.2-3) が大量に認められる。また、近年の研究により、新羅地域で発見されるガラス容器(皇南大塚 98 号南墳出土有把手注口瓶や貼付波状文杯など)がローマ系のナトロンガラスではなく、植物灰ガラスであることが明らかになっている (Lankton *et al.* 2009)。

以上の点から、古墳時代中期後半から後期前半頃に日本列島へ流入する青紺色のソーダ石灰ガラスⅡは、ササン朝ペルシアやその技術的影響のあった地域で製作されたものが、新羅地域を経由して日本列島へ流入した可能性が考えられる。さらに、これらの青紺色のソーダ石灰ガラスⅡが日本列島へ大量に流通した時期には、新羅地域で日本列島産の翡翠製勾玉が多く出土することも注目される (中村 2008)。

一方、古墳時代後期末に流入する引き伸ばし法(変 B)で製作された多彩なソーダ石灰ガ

ラスⅡは、日本列島の近隣諸国での出土状況に不明な点が多く、具体的な流入経路の解明には朝鮮半島や中国などでの分析調査の進展を待たねばならないが、わずかながら注目される資料が存在する。ひとつは、韓国忠清南道扶余郡王興寺址から出土した両端面の形状が非対称なボタン状を呈する青紺色、濃緑色、および紫褐色のガラス小玉である（国立扶余文化財研究所 2009）。それらは、日本列島で発見される引き伸ばし法(変 B)で製作されたガラス小玉と形態的特徴や色調および化学組成の特徴が類似する。王興寺は飛鳥寺との関係も指摘されている寺院であり、本研究において飛鳥寺塔心礎出土ガラス小玉の中に一定量の引き伸ばし法(変 B)で製作されたソーダ石灰ガラスⅡを確認したこととあわせて注目される。また、詳細な形状は不明であるが、錫酸鉛を着色に用いた黄色不透明を呈する植物灰ガラス小玉が北周武帝孝陵出土品で確認されている（成・張 2011）。百済では 6 世紀後半に中国北朝との関係が強まったことが指摘されており（窪添 2010）、流入経路を解明する手掛かりとなる可能性がある。

このように、日本列島には様々な地域で生産されたガラス製品が流入しており、それらの製作技法や基礎ガラス、着色剤の変化は当時の交易経路の変化を示していると考えられる。日本列島におけるアルカリ珪酸塩ガラスの流通状況から見ると、古墳時代中期前半までは、東南アジアから遠くは地中海周辺で生産されたガラスが海路で流入するというルートが中心であったが、古墳時代中期後半以降はササン朝ペルシアやその周辺地域で生産されたガラスが、ユーラシア大陸の中央部を通して大量に流入するという重要な画期が明らかになった。

註

- 1) 藤田 (1994) は、このほかに土井ヶ浜遺跡の青色小玉をカリガラスと報告しているが、筆者らの分析で、ガラス小玉ではなく天河石（アマゾナイト）製の小玉であることが明らかとなっている。
- 2) 東山田一本杉 SJ078 甕棺墓出土の緑色ガラス小玉は、バリウムを含まない鉛ガラスであると報告されている（藤田 1994）。
- 3) ただし、淡緑色のガラスについては、同色の勾玉が引き伸ばし法（B）による青紺色ガラス小玉の出現よりも先行して流入している（岸和田市）。これらの淡緑色の勾玉や甕玉などの分析例はないが、仮にこれらがソーダ石灰ガラスⅡであれば、日本列島へのソーダ石灰ガラスⅡの流入時期は、古墳時代中期前半に、まず着色剤なしの淡緑色ガラスが流入し、少し遅れて中期後半からコバルト着色の紺色ガラス小玉が大量に流入するという変遷が認められる可能性がある。
- 4) 前述したように、古墳時代後期の甲山古墳から、引き伸ばし法(変 B)の出現に先行する黄色のソーダ石灰ガラスⅡが見つかった。ただし、いずれにしてもソーダ石灰ガラスⅢに錫酸鉛が使用された黄緑色が出現するのは弥生後期であり、錫酸鉛による着色技法適用されたソーダ石灰ガラス

Ⅱが遅れて出現するという理解に影響はない。

- 5) ここでいう東地中海沿岸地域は、いわゆるレヴァントと呼ばれる地域をさす。おおむね現在のシリア、レバノン、イスラエル、パレスティナ自治区に相当する。

引用・参考文献

- 大賀克彦, 2002, 「日本列島におけるガラス小玉の変遷」, 『小羽山古墳群』, (『清水町埋蔵文化財発掘調査報告書』V), 127-145 頁。
- 大賀克彦, 2003, 「紀元三世のシナリオ」, 『風巻神山古墳群』, (『清水町埋蔵文化財発掘調査報告書』VII), 72~90 頁。
- 大賀克彦, 2010a, 「弥生時代におけるガラス製管玉の分類学的検討」, 『小羽山墳墓群の研究』, 福井市立歴史博物館・小羽山墳墓群研究会, 213~230 頁。
- 大賀克彦, 2010b, 「群集墳築造の二つの契機」, 『遠古登攀 遠山昭登君追悼考古論集』, 289~304 頁。
- 小田幸子, 1977, 「新沢千塚 126 号墳出土のガラス器とガラス玉」, 『新沢千塚 126 号墳』, 84~90 頁。
- 窪添慶文, 2010, 「南北朝時代の国際関係と仏教」, 『古代東アジアの仏教と王権 王興寺から飛鳥寺へ』, 勉誠出版, 269~292 頁。
- 肥塚隆保, 1995, 「古代珪酸塩ガラスの研究—弥生~奈良時代のガラス材質の変遷—」, 『奈良国立文化財研究所創立 40 周年記念論文集 文化財論叢Ⅱ』, 929~967 頁。
- 肥塚隆保, 1997, 『日本で出土した古代ガラスの歴史的変遷に関する科学的研究』, 博士学位論文。
- 肥塚隆保・降幡順子, 2006, 「西谷 2 号墓出土ガラス釦などの考古科学的調査」, 『奈文研紀要 2006』, 38~39 頁。
- 齋藤あや, 2012, 「御茶屋通遺跡第 3 地点 1 号墓方形周溝墓出土のガラス小玉について」, 『上ノ山遺跡群御茶屋通遺跡第 3 地点』, 盤古堂, 44~50 頁。
- 白瀧絢子, 阿部善也, タンタラカーン・クリアンカモル, 中井泉, 池田朋生, 坂口圭太郎, 後藤克博, 2010, 「熊本県の古墳から出土したガラスビーズの考古化学的研究」, 『日本文化財科学会第 27 回研究発表要旨集』, 254~255 頁。
- 谷一尚, 1988, 「金層ガラス珠の技法と伝播」, 『民族藝術』4, 102~109 頁。
- 谷澤亜里, 2011, 「弥生時代後期におけるガラス小玉の流通—北部九州を中心に—」, 『九州考古学』, 第 86 号, 1~39 頁。
- 中村大介, 2008, 「韓半島における玉類の理化学的分析と流通」, 『訪韓学術研究者論文集』, 第 9 巻。
- 魯 視玟, 2010, 『銅・鉛・ガラス製品からみた日本・韓国と東南アジア地域との歴史時代の交流』, 別府大学博士学位論文。

- 福岡県教育委員会, 1980, 『三雲遺跡Ⅰ』(『福岡県文化財調査報告書』第58集。
- 藤田 等, 1994, 『弥生時代ガラスの研究—考古学的方法—』, 名著出版。
- ブリル・R／山崎一雄(訳), 1993, 「古代アジアガラスの科学的研究」, 『奈良国際シンポジウム'91 報告書』, 71～81頁
- 丸山次雄, 1973, 『ガラス古代史ノート』, 雄山閣。
- 김규호, 강형태, 이윤희, 2007, 「유리제품의 특성분석(Ⅲ)」, 『武寧王陵—출토 유물 분석 보고서(Ⅱ)—』, 국립공주박물관, (韓文), 104-131頁。
- 国立扶餘文化財研究所, 2009, 『王興寺址Ⅲ 木塔址金堂址発掘調査報告書』(『国立扶餘文化財研究所 学術研究叢書』, (韓文), 第52輯。
- 成倩・張建林, 2011, 「北周武帝孝陵出土玻璃珠的科学分析与研究」, 『考古与文物』, 2011年, 第1期, (中文), 107～112頁。
- Brill, R.H. (1986), Scientific Investigations of the Jalame Glass and Related Finds. Excavations at Jalame Site of a Glass Factory in Late Roman Palestine Gladys Davidson Weinberg, Editor, University of Missouri Press, Chapter 9, pp.257-294.
- Dussubieux, L. (2001) PhD dissertation, Southeast Asian beads, compositional analysis.
- Foster, H.E. and Jackson, C.M. (2010), The Composition of Late Romano-British Colourless Vessel Glass: Glass Production and Consumption. *Journal of Archaeological Science*, 37, pp.189-204.
- Francis, P. (2002), Asia's Maritime Bead Trade, University of Hawaii Press.
- Freestone, I.C., Gorin-Rosen, M.Y., Hughes, M.J. (2000), Primary Glass from Israel and the Production of Glass in Late Antiquity and the Early Islamic Period. *Travaux de la Maison de l'Orient Meditteraneen*, 33, pp.65-83.
- Freestone, I.C., Ponting, M., Hughes, M.J. (2002), The Origins of Byzantine Glass from Maroni Petra, Cyprus. *Archaeometry*, 44, 2, pp.257-272.
- Jackson, C.M. (2005), Making Colourless Glass in the Roman Period. *Archaeometry*, 47, 4, pp.763-780.
- Lankton, J.W. and Dussubieux L.E. (2006), Glass in Asian Maritime Trade: A Review and an Interpretation of Compositional Analyses., *Journal of Glass Studies*, 48., pp.121-144.
- Lankton, J.W. and Dussubieux, L. and Gratuze, B. (2006), Glass from Khao Sam Kaeo: Transferred technology for an early Southeast Asian exchange network., *BULLETIN DE L'ECOLE FRANCAISE D'EXTREME-ORIENT*, 93, pp.317-351.
- Lankton, J.W., et al. (2009), Bactrian Glass Vessels in Korean Tombs? *Annales du 17e Congres de l'Association Internationale pour l'Histoire du Verre*, Anvers, 2006, University Press, Antwerp, pp.579-589.
- Sayre, E. (1965), Summary of the Brookhaven Program of Analysis of Ancient Glass Application

- of science in examination of works of art. Proceedings of the seminar: September., conducted by the Research Laboratory, Museum of Fine Arts, Boston, Massachusetts, pp.7-16.
- Sayre, E.V. and Smith, R.W. (1974), *Analytical Studies of Ancient Egyptian Glass*. Recent Advances in Science and Technology of Materials 3, edited by Bishay,A.
- Shi Meiguang, He Ouli, and Zhou Fuhwng (1986), *Investigation on Some Chinese Potash Glasses Excavated in Han Dynasty Tombs* Proceedings of 14th International Congress on Glass, Indian Ceramic Society, pp.15-20.
- Song, S. (2010), *A study of glass beads from Phum Snay Iron Age archaeological site and settlement, Cambodia* Data from excavation in 2001 and 2003., *Museologia Scientifica e Naturalistica* Vol.6. Universita di Ferrara, pp.43-51.
- Wadia, D.N. (1990), *Geology of India*, 4th ed, Delhi: Tata Mc-Graw-Hill, pp.449-450.
- Zhang Fukang (1991), *Scientific Studies of early glasses excavated in China.*, Scientific research in early Chinese glass, The Corning Museum of Glass, pp.157-165.

第5章 総括

本研究では、弥生～古墳時代の日本列島で大量に流通したアルカリ珪酸塩ガラス小玉について、製作技法、基礎ガラスの化学組成および着色剤の三要素を組み合わせることにより、生産地や交易ルートの解明を試みた。その結果、弥生～古墳時代の日本列島には、これまで考えられてきた以上に多様な起源（生産地）をもつアルカリ珪酸塩ガラス小玉が流通していたことが明らかとなった。さらに、日本列島へ流入するアルカリ珪酸塩ガラス小玉の変遷から、古墳時代中期にガラスの交易ルートが大きく変化するという、古代の交易関係史上、重要な画期を見出した。以下、本研究で得られた成果について総括する。

①日本列島で流通したカリガラスは、着色剤が異なるだけで、基礎ガラスの化学組成に大きな差異はないと考えられてきたが、珪砂に由来するとみられる酸化アルミニウムと酸化カルシウムの含有量から、2種類（カリガラスⅠおよびカリガラスⅡ）に細分できることがわかった。そして、それぞれが、銅イオンによる淡青色を呈するものと、コバルトイオンによる青紺色および紫紺色を呈するものに対応することも判明した。

さらに、これら2種類のカリガラスはそれぞれ生産地が異なり、カリガラスⅠはインド産、カリガラスⅡはベトナム北部～中国南部で生産された可能性が明らかになった。

②ソーダ石灰ガラスは、これまで、酸化アルミニウムと酸化カルシウムの含有量から、低アルミナソーダ石灰ガラスと高アルミナソーダ石灰ガラスの2種類に分類されてきた。本研究では、低アルミナソーダ石灰ガラスには、鉍物（ナトロ）を利用したもの（ソーダ石灰ガラスⅠ）と、植物灰を利用したもの（ソーダ石灰ガラスⅡ）が流通していたことを明らかにした。

③ソーダ石灰ガラスⅠは、ローマ帝国期を中心に地中海周辺地域で生産されたナトロングラスと化学組成の特徴が類似することから、地中海周辺地域で生産された可能性が高い。さらに、弥生時代後期のものからアンチモンが検出され、古墳時代中期のものからはアンチモンが検出されず、代わって一部の資料からマンガンが検出されるという変化が明らかとなった。これは、地中海周辺地域のナトロングラスにおけるアンチモン消色からマンガン消色への移行、という変化に対応する可能性がある。

また、ソーダ石灰ガラスⅠは、インド・パシフィックビーズとは異なる特殊な形態のガラス小玉に認められる。大多数は、地中海周辺で小玉に加工されたものが製品として

流通したと考えられるが、一部に南～東南アジアで加工された可能性のあるものも存在し、海路による流通を示唆する。

④ソーダ石灰ガラスⅠと化学組成の特徴が類似するものの、酸化カリウム含有量がやや多い傾向にある一群（ソーダ石灰ガラスⅠ'）の存在を見出した。引き伸ばし法(L)によるインド・パシフィックビーズで、カリガラスⅠと同じコバルト原料で着色されている。ガラスそのものの生産地の推定には至らなかったが、着色および小玉への加工は、カリガラスⅠの生産地と技術的な関係のあった地域でおこなわれた可能性が高い。

⑤ソーダ石灰ガラスⅡは、化学組成の特徴から、ササン朝ペルシアやその文化圏で生産されたと考えられる。大多数を占める青紺色のガラス小玉の製作技法は、これまでインド・パシフィックビーズに適用された引き伸ばし法と区別されていなかったが、吹き技法が用いられた可能性がある。着色剤も、カリガラスⅠなど、アジアのガラスに用いられたコバルト原料とは異なることから、ササン朝ペルシアやその文化圏で製品となったものが流入したと考えられる。

⑥古墳時代後期末に出現する特殊な引き伸ばし法（引き伸ばし法(変 B)）による多彩なガラス小玉が、ソーダ石灰ガラスⅡであることが明らかとなった。これまで、ガラス小玉の色調の多様性を実現したのは、高アルミナソーダ石灰ガラス（本論文におけるソーダ石灰ガラスⅢ）と考えられてきたが、ソーダ石灰ガラスⅡにも多彩な色調のものが存在することが判明した。

また、引き伸ばし法(変 B)によるガラス小玉の出現によって、ソーダ石灰ガラスⅡに錫酸鉛で着色された黄色や黄緑色のものが一定量存在するようになるのは、先行してこれらの着色技法を多用していたソーダ石灰ガラスⅢの生産者集団との技術交流を示すと考えられる。

⑦従来の分類では高アルミナソーダ石灰ガラスに相当するソーダ石灰ガラスⅢは、弥生時代後期のものと、古墳時代前期後半から後期にかけて流通したものでは、一部を除いて基礎ガラスの化学組成が異なることが明らかとなった。弥生時代後期に流通した黄緑色と赤褐色ガラス小玉は、化学組成および色調の類似性から見て、南インドのアリカメドゥで生産された可能性がある。古墳時代の同色のガラス小玉は、弥生時代のものと化学組成の特徴が異なっており、日本列島へ流入するソーダ石灰ガラスⅢの生産地が変化した可能性が高い。

⑧弥生～古墳時代の日本列島におけるアルカリ珪酸塩ガラスの流通状況から、当該時期のガラスの交易ルートについて考察することができた。古墳時代中期前半までは、東南アジアから遠くは地中海周辺で生産されたガラスが海路で流入するというルートが中心であったが、古墳時代中期後半以降、ササン朝ペルシアやその周辺地域で生産されたガラスがユーラシア大陸の中央部を通して大量に流入する、という重要な変化が明らか

になった。

以上、本研究により、ユーラシア大陸の東西を結ぶ古代ガラスの交易史の一端を明らかにすることができた。一方で、アルカリ珪酸塩ガラス小玉が日本列島へ流入する最終的な経由地については不明な点も残された。本研究で、製作技法や色調など可視的な特徴と基礎ガラスの化学組成や着色剤との対応関係が判明したことから、今後、日本列島近隣諸国で出現するガラス小玉のバリエーションや変遷、あるいは地域性などを詳細に把握することにより、東アジア地域の交易関係に関する詳細な議論が可能となるであろう。また、このような研究を、ガラス製品の流通で結ばれたさらに遠隔の地域にも広げれば、ガラス製品の生産地や交易ルートの特定も可能となろう。

謝 辞

本研究にあたっては京都大学大学院 人間・環境学研究科 高妻洋成准教授から数々の指導・ご教示を賜った。奈良文化財研究所 肥塚隆保博士には本稿を作成するにあたり長期間にわたり多大なるご指導をいただいた。心より感謝申し上げる。

日本考古学会員の大賀克彦氏には考古学的な情報をはじめ、数々のご助言を賜った。

本論文での主要な分析調査にあたり、資料の提供に関して多大な協力をいただいた関係機関に対し深く感謝申し上げる。

論 文 要 旨

論文題目 日本出土アルカリ珪酸塩ガラスの考古科学的研究

ー弥生～古墳時代に流通したガラス小玉の再分類ー

論文要旨

ガラスは古くから陸や海のルートを通して活発に交易され、ユーラシア大陸に広く分布することが知られている。日本列島でも、弥生時代以降、多くのガラス製品が流通していた。弥生～古墳時代のガラス製品はそのほとんどが舶載品であり、当時の交易関係や技術伝播などを解明する上で非常に重要な情報を内包している。

本研究では、弥生～古墳時代の日本列島で大量に流通したアルカリ珪酸塩ガラス小玉について、製作技法、基礎ガラスの化学組成および着色剤の三要素の組み合わせることにより、生産地や交易ルートの解明を試みた。その結果、弥生～古墳時代の日本列島にはこれまで考えられてきた以上に多様な起源（生産地）をもつアルカリ珪酸塩ガラス小玉が流通していたことが明らかとなった。さらに、日本列島へ流入するアルカリ珪酸塩ガラス小玉の変遷から、古墳時代中期にユーラシア大陸の東西を結ぶガラスの交易ルートが大きく変化するという重要な画期を見出した。

第1章では、古代ガラスの研究史を整理するとともに、日本列島におけるアルカリ珪酸塩ガラス研究の現状と問題の所在を確認し、本研究の目的を提示した。

第2章では、本研究を進めるにあたって実施した調査法とその解釈について論じたものである。研究対象が文化財資料であることによる特殊性に関するもので、非破壊分析で得られる測定値の取り扱いと資料の風化が測定値に与える影響について論じた。

第3章では、弥生～古墳時代の遺跡から出土した約 5900 点のアルカリ珪酸塩ガラス小玉を、製作技法、基礎ガラスおよび着色剤によって分類し、それらの対応関係を明らかにした。その結果、これまで1種類のみが流通していたと考えられてきたカリガラスが大きく2種類に分かれることが判明した。さらに、これまで具体的な生産地が不明であったソーダ石灰ガラスについても、ソーダ原料の異なる2種類のガラス小玉が流通していたことを見出し、生産地に関する研究を大きく進展させた。

第4章では、日本列島で流通したアルカリ珪酸塩ガラス小玉の製作技法、基礎ガラスおよび着色剤の特徴を、アルカリ珪酸塩ガラスの生産地が存在した地中海周辺地域や西アジア、南～東南アジアの事例と比較検討することによって、生産地を推定した。その結果、日本列島で出土するアルカリ珪酸塩ガラスは、その初現期（弥生時代前期末）から古墳時代中期前半までは、東南アジアから遠くは地中海周辺地域で生産されたガラスが海路で流入するというルートが中心であったが、古墳時代中期後半以降、ササン朝ペルシアやその周辺地域で生産されたガラスがユーラシア大陸の中央部を通して大量に流入するようになるという、古代の交易史上重要な変化が明らかになった。

第5章では本論文を総括し、結語を述べた。