

【三彩・緑釉】

三彩・緑釉陶器の鉛同位体比分析

Lead Isotope Analysis of Tricolored Glaze in Nara Period and
Green Glaze in Heian Period

齋藤 努

はじめに

- ① 資料
 - ② 分析方法
 - ③ 結果と考察
- まとめ

【論文要旨】

新しく開発された「高周波加熱分離-鉛同位体比測定法」によって、奈良三彩、平安緑釉陶器の鉛釉を対象として鉛同位体比測定を行った。産地、年代を明確におさえることができる窯跡出土資料を中心とした。ただし奈良三彩などについては考察に十分な数の窯跡の資料を得るのが困難であるため、消費地の資料を含めた。その結果、ほとんど全てのデータがきわめて狭い領域に集中する値を示した。これは、山口県美東町の長登銅山跡、平原遺跡から出土した鉛製錬関係資料や銅鋳石の数値とよく一致しており、この地域から一括して原料が供給された可能性が高い。

はじめに

ここでは、日本古代の三彩・緑釉陶器の釉薬について鉛同位体比測定を行った結果を報告する。三彩・緑釉の自然科学的な分析については、山崎一雄の多くの先行する研究があり、これらがPbOとして40-70%程度の鉛を含む鉛釉であることを明らかにしている[山崎1987]。山崎はまた、青銅器、ガラス、方鉛鉱などを対象に鉛同位体比の先駆的研究を行っているが三彩・緑釉は対象としておらず、その後になされた鉛同位体比の研究でも、奈良、平安期のこれらの資料については、まとまった成果は得られていない。そこで本共同研究では、対象の一つとして三彩・緑釉をとりあげ、生産地が特定できる窯跡出土の資料を中心として鉛同位体比測定を行い、原料供給の状況について考察することとした。本稿は前章の銭貨に関するものと同様、高橋照彦との共同研究によって実施された研究の結果をまとめたものであり、ここでは分析法およびデータから直接得られる解析結果について報告することにする。

①……………資料

分析に用いた資料は、奈良三彩および平安緑釉であり、産地、年代を明確におさえることができる窯跡出土資料を中心とした。ただし奈良三彩などについては考察に十分な数の窯跡の資料を得るのが困難であるため、消費地の資料を含めた。とりあげた窯跡群は、岸辺（大阪）、洛北、洛西、篠（以上、京都）、猿投、尾北、二川（以上、愛知）、多治見、恵那（以上、岐阜）、蒲生（滋賀）の10ヶ所であり、その他、窯跡は確認されていないが、生産地と推定される地域周辺から出土した資料として長門、周防（以上、山口）を対象とした。

②……………分析方法

1 試料調製

陶器表面から直接サンプリングする際は、ピンセットまたはキサゲを用いて釉薬部分を剥離させて採取し、分析に供した。試料採取量は0.5-2mg程度である。この場合、胎土部分がわずかに混入する場合もあるが、一般に胎土中の鉛濃度はppmのオーダーであり、釉薬中の鉛量に比べると無視できる量であるので、これを除くための処理は特に行わなかった。

試料の一部は、粉末の形で山崎一雄氏からご提供いただいた。これらは、主成分組成の化学分析のために、釉薬部分を胎土から削り取った後、重液（ヨウ化メチレン）によって混入している胎土を除き、精製された釉粉末をアセトンで洗い、乾燥したものである[山崎1987]。

2 鉛の分離

本書の銭貨の項で述べたのと同様に、本共同研究において開発された「高周波加熱分離法」によって分離を行った。簡単に述べると次の通りである。石英製小ビーカーの中に分析試料と炭素粉

末0.5-1mgを混合したものを入れ、カーボン封入石英製るつぼの中に置く。小ピーカーの外側にドーナツ型の石英板をかぶせる。これらの上に、石英製カバーをかぶせる。こうして組み合わされた試料容器を高周波加熱炉 (LECO, HF-10) 内に入れ、高周波によって15分間加熱する。これによって、石英製カーボン封入るつぼ内の炭素が1050-1100°Cに赤熱し、試料中の鉛が蒸発して石英カバー内壁に蒸着される。冷却後、試料容器を取り出し、分離された鉛を希硝酸で溶解して同位体比測定用試料溶液とする。

3 鉛同位体比測定

これも、銭貨の場合と同様に、表面電離型質量分析装置 (Finnigan MAT, 262: ファラデー・マルチ・コレクター) により、下記のような方法で測定した。すなわち、鉛300 ng相当量の試料溶液を分取し、テフロン容器内で蒸発乾固したのち、微量の純水で溶解してレニウム・シングル・フィラメント上にリン酸、シリカゲルとともに塗布し、電流の抵抗加熱によって蒸発乾固させて測定試料とする。こうして調製した10試料を、これらと同様にフィラメント上に塗布したビーム調整用およびフラクシオネーション補正用の鉛同位体比国際標準試料 (米国 National Institute of Standards and Technology (NIST) 発行のSRM-981) 3点とともにサンプル・マガジンに装着する。測定試料と後者の標準試料はいずれも同一条件でフィラメントを昇温し、1200°Cに保って、発生した鉛のイオン・ビームを質量分析し、同位体比を測定する。測定は10試料連続でオートマティックに行い、またその前後に同様にして標準試料1点ずつを測定し、そのデータを用いて試料測定時の質量分別効果の補正を行う。

③……………結果と考察

資料の特定は分析番号 (R****) によって行う。測定結果は馬淵, 平尾 [1987, 1990] の方法に準じて図示した。縦軸に $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$, 横軸に $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ をプロットする「A式図」と、縦軸に $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$, 横軸に $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ をプロットする「B式図」を用いた。また、銭貨の場合と同様に、彼らが弥生時代～平安時代における青銅器の分析結果に基づいて設定した同位体比のグルーピング範囲 (W, E, J, K) を、今回の測定結果とともに表示した。

表1に測定資料と鉛同位体比測定結果を示した。また、測定値を図1にプロットした。これを見ると、測定値は1点を除き、すべてがJの範囲内にあり、日本産の鉛が使用されていることを示している。また、きわめて狭い範囲に集中していることがわかる。これは、日本の銭貨の分析結果で、皇朝十二銭の大部分のデータが集中した領域とちょうど重なっており、またその報告中でも述べた通り、山口県の長登銅山跡・平原遺跡出土の鉛製錬時のからみ、鉛塊、銅鉱石の鉛同位体比の数値ともほぼ一致する。銭貨鑄造の場合と同様に、かなり一元的な原料供給が行われていたと見ることができる。この領域から外れている1点は洛西窯跡群に属する小塩窯出土資料 (R3101) であり、ちょうどKのライン上に乗るところから、朝鮮半島産の原料が使用されていると思われる。ただし、この資料は山崎一雄氏より粉末として提供を受けたものであり、陶器本体の形状などを確認することができず、サンプリングをやり直して再測定することもできないので、この測定値のみからこれ

表 1 - a 資料と鉛同位体比測定結果 (緑釉-1)

出土遺跡名	遺跡種別	窯跡群名	時代	分析番号	$^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$
永田4号窯	窯跡	恵那	10世紀後半頃	R00011	0.8473	2.0897	18.400	15.590	38.450
本山官山窯	窯跡	洛北	平安(9C中葉~後半)	R0101	0.8471	2.0897	18.418	15.603	38.486
本山官山窯	窯跡	洛北	平安(9C中葉~後半)	R0102	0.8475	2.0908	18.410	15.602	38.492
本山官山窯	窯跡	洛北	平安(9C中葉~後半)	R0103	0.8475	2.0908	18.408	15.600	38.487
本山官山窯	窯跡	洛北	平安(9C中葉~後半)	R0104	0.8474	2.0904	18.402	15.592	38.468
本山官山窯	窯跡	洛北	平安(9C中葉~後半)	R0105	0.8474	2.0905	18.401	15.594	38.467
本山官山窯	窯跡	洛北	平安(9C中葉~後半)	R0106	0.8473	2.0905	18.408	15.598	38.482
本山官山窯	窯跡	洛北	平安(9C中葉~後半)	R0107	0.8475	2.0909	18.410	15.601	38.493
本山官山窯	窯跡	洛北	平安(9C中葉~後半)	R0108	0.8472	2.0902	18.402	15.592	38.464
本山官山窯	窯跡	洛北	平安(9C中葉~後半)	R0109	0.8472	2.0893	18.399	15.587	38.441
本山官山窯	窯跡	洛北	平安(9C中葉~後半)	R0110	0.8475	2.0909	18.409	15.601	38.491
本山官山窯B地点	窯跡	洛北	平安(9C中葉~後半)	R0201	0.8474	2.0903	18.405	15.595	38.472
本山官山窯B地点	窯跡	洛北	平安(9C中葉~後半)	R0202	0.8470	2.0895	18.397	15.585	38.441
本山官山窯B地点	窯跡	洛北	平安(9C中葉~後半)	R0203	0.8471	2.0897	18.401	15.589	38.453
北丘15号窯	窯跡	多治見	10世紀後半(虎溪山1号窯式)	R0301	0.8475	2.0906	18.411	15.603	38.490
北丘15号窯	窯跡	多治見	10世紀後半(虎溪山1号窯式)	R0302	0.8473	2.0901	18.404	15.594	38.466
周防国府 9次	消費地	(周防)	10世紀後半	R0404	0.8476	2.0910	18.410	15.604	38.495
周防国府 9次	消費地	(周防)	10世紀後半	R0406	0.8474	2.0903	18.407	15.598	38.475
周防国府 40次	消費地	(周防)	10世紀後半	R0411	0.8475	2.0909	18.411	15.603	38.496
周防国府 40次	消費地	(周防)	10世紀後半	R0415	0.8475	2.0937	18.416	15.608	38.558

表 1 - b 資料と鉛同位体比測定結果 (緑釉 - 2)

出土遺跡名	遺跡種別	窯跡群名	時代	分析番号	$^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$
亀ヶ洞窯	窯跡	猿投	9世紀中葉	R0501	0.8472	2.0898	18.410	15.595	38.473
亀ヶ洞窯	窯跡	猿投	9世紀中葉	R0502	0.8474	2.0902	18.407	15.595	38.474
亀ヶ洞窯	窯跡	猿投	9世紀中葉	R0503	0.8473	2.0905	18.405	15.595	38.476
亀ヶ洞窯	窯跡	猿投	9世紀中葉	R0504	0.8476	2.0913	18.414	15.607	38.509
熊の前 第1地区	窯跡	猿投	9世紀後半	R0601	0.8473	2.0902	18.406	15.596	38.472
熊の前 第1地区	窯跡	猿投	9世紀後半	R0602	0.8476	2.0914	18.423	15.614	38.529
熊の前 第4地区	窯跡	猿投	9世紀後半	R0603	0.8471	2.0889	18.392	15.580	38.418
篠岡 81号窯	窯跡	尾北	10世紀前葉	R0701	0.8472	2.0895	18.399	15.588	38.445
篠岡 81号窯	窯跡	尾北	10世紀前葉	R0702	0.8476	2.0916	18.420	15.613	38.528
篠岡 81号窯	窯跡	尾北	10世紀前葉	R0703	0.8476	2.0911	18.414	15.607	38.506
篠岡 81号窯	窯跡	尾北	10世紀前葉	R0704	0.8472	2.0895	18.401	15.589	38.450
岩崎 24号窯	窯跡	猿投	9世紀後葉	R0801	0.8475	2.0905	18.407	15.599	38.479
黒笹 30号窯	窯跡	猿投	9世紀末	R0901	0.8471	2.0891	18.396	15.584	38.431
大沢 A-2号窯	窯跡	二川	10世紀後半	R1001	0.8475	2.0921	18.423	15.614	38.543
大沢 A-2号窯	窯跡	二川	10世紀後半	R1002	0.8472	2.0946	18.412	15.599	38.568
大沢 A-2号窯	窯跡	二川	10世紀後半	R1003	0.8475	2.0908	18.425	15.615	38.523
大沢 A-2号窯	窯跡	二川	10世紀後半	R1004	0.8475	2.0910	18.423	15.614	38.521
瓦坂窯	窯跡		8世紀	R1101	0.8476	2.0914	18.417	15.610	38.518
岸辺 (吉志部) 窯	窯跡	岸辺	8世紀末~9世紀初	R1201	0.8476	2.0912	18.414	15.606	38.507
篠岡 5号窯	窯跡	尾北	9世紀後半~10世紀	R1301	0.8476	2.0912	18.415	15.607	38.509

表1-c 資料と鉛同位体比測定結果 (緑釉-3)

出土遺跡名	遺跡種別	窯跡群名	時代	分析番号	$^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$
篠岡5号窯	窯跡	尾北	9世紀後半~10世紀	R1302	0.8473	2.0900	18.405	15.594	38.466
春日山の神窯	窯跡	蒲生	10世紀後半	R1401	0.8475	2.0910	18.413	15.605	38.501
石作窯	窯跡	洛西	9世紀後半	R1501	0.8475	2.0912	18.415	15.607	38.509
十禅谷窯	窯跡	蒲生	10世紀中頃	R1601	0.8474	2.0906	18.408	15.599	38.483
奈良興福寺一条院址	消費地		8世紀	R2101	0.8467	2.0884	18.407	15.585	38.441
奈良興福寺一条院址	消費地		8世紀	R2102	0.8471	2.0890	18.394	15.582	38.425
奈良興福寺一条院址	消費地		8世紀	R2103	0.8465	2.0886	18.425	15.597	38.482
奈良興福寺一条院址	消費地		8世紀	R2104	0.8475	2.0912	18.392	15.587	38.462
奈良興福寺一条院址	消費地		8世紀	R2105	0.8471	2.0888	18.394	15.580	38.420
奈良平城宮跡	消費地		8世紀	R2201	0.8472	2.0905	18.404	15.593	38.473
奈良平城宮跡	消費地		8世紀	R2202	0.8472	2.0900	18.402	15.590	38.460
奈良平城宮跡	消費地		8世紀	R2701	0.8473	2.0899	18.404	15.594	38.463
奈良平城宮跡	消費地		8世紀	R2702	0.8473	2.0901	18.404	15.594	38.466
新田青柳窯	窯跡	篠	10世紀	R2801	0.8474	2.0912	18.424	15.612	38.527
大飛鳥洲本	消費地		8世紀後半	R3001	0.8476	2.0915	18.418	15.611	38.521
小塩窯	窯跡	洛西	9世紀後半~10世紀中頃	R3101	0.8414	2.1020	18.653	15.695	39.208
永田第1窯	窯跡	恵那	10世紀後半	R3201	0.8473	2.0900	18.403	15.593	38.461
鳴海 NN245 号窯	窯跡	猿投	9世紀中葉	R3401	0.8473	2.0900	18.407	15.595	38.468
鳴海 NN245 号窯	窯跡	猿投	9世紀中葉	R3402	0.8475	2.0910	18.410	15.603	38.496
鳴海 NN245 号窯	窯跡	猿投	9世紀中葉	R3403	0.8472	2.0897	18.407	15.595	38.468

表 1 - d 資料と鉛同位体比測定結果（緑釉 - 4）

出土遺跡名	遺跡種別	窯跡群名	時代	分析番号	$^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$	$^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$
鳴海 NN245 号窯	窯跡	猿投	9 世紀中葉	R3404	0.8473	2.0905	18.409	15.598	38.484
鳴海 NN246 号窯	窯跡	猿投	9 世紀中葉	R3501	0.8474	2.0902	18.407	15.597	38.475
鳴海 NN249 号窯	窯跡	猿投	9 世紀中葉	R3601	0.8473	2.0899	18.404	15.594	38.463
秋根遺跡	消費地	(長門)	9世紀	R4805	0.8471	2.0888	18.393	15.581	38.419
秋根遺跡	消費地	(長門)	9世紀	R4817	0.8472	2.0892	18.391	15.581	38.423
延行条里遺跡	消費地	(長門)	9世紀	R4901	0.8473	2.0900	18.420	15.599	38.478
延行条里遺跡	消費地	(長門)	9世紀	R4906	0.8473	2.0904	18.410	15.600	38.484
長門国分寺跡	消費地	(長門)	9世紀	R5003	0.8474	2.0903	18.406	15.597	38.474
長門国府跡	消費地	(長門)	9世紀	R5106	0.8469	2.0880	18.386	15.572	38.390
長門国府跡	消費地	(長門)	9世紀	R5111	0.8475	2.0924	18.470	15.652	38.644

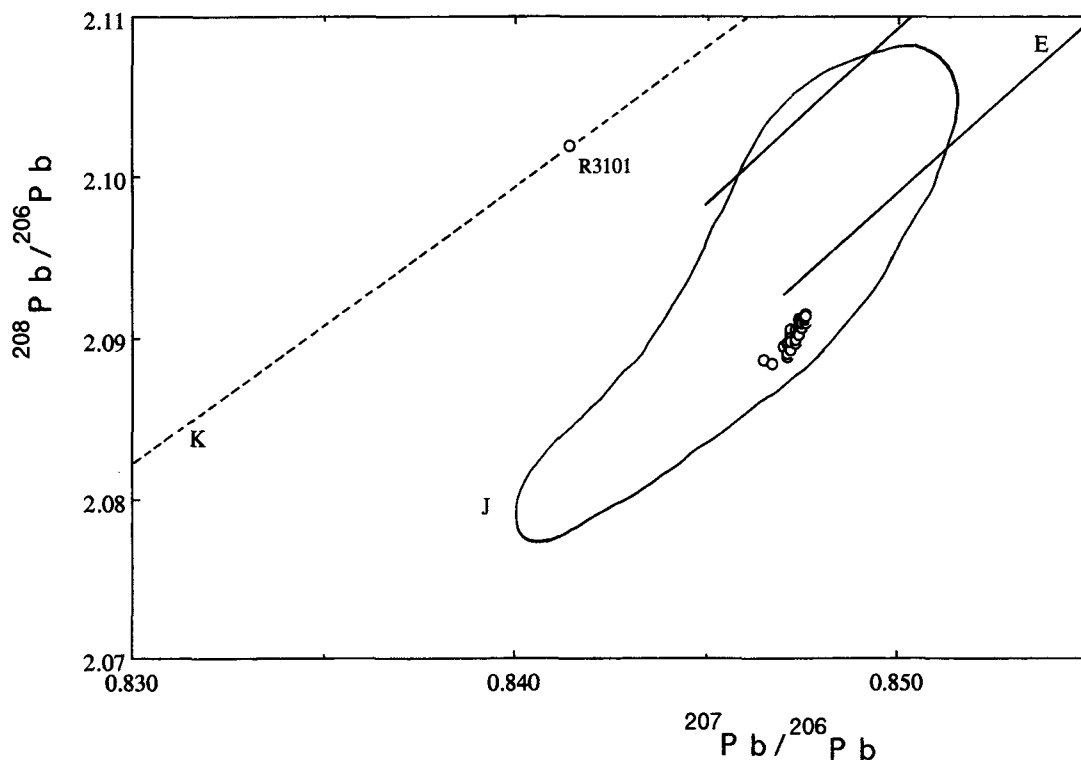


図1 奈良三彩・平安緑釉の鉛同位体比測定結果

以上の検討は加えられない。また、同じく洛西窯跡群に属する石作窯出土資料（R1501）の同位体比は上記のデータが集中する領域内に含まれている。従って、確認のため、将来、同窯跡群出土の別資料をあらためて入手し、分析を行う必要があると考える。

奈良三彩、平安緑釉を対象とした化学的研究としては、山崎一雄による元素組成分析の詳細な報告がある【山崎 1985 など】が、鉛同位体比に関する測定例はない。ここでは、釉薬との関連性が考えられる、ほぼ同時代と考えられるガラス玉について鉛同位体比測定を行った結果と比較する。山崎らが正倉院や飛鳥・奈良時代のガラス玉などを対象に分析を行った結果は Brill ほか [1979]、山崎ほか [1980]、山崎 [1987a, b] に報告されている。それによると、色と形の大小で区別して選択された正倉院のガラス玉（「塵芥」の中、すなわち古裂の断片などの入っている櫃を整理する際の残渣中に見出された破片）11 点の測定値はほぼ一点に集中し、本研究の三彩、緑釉の大部分が示す値と重なる。このほか、薬師寺本尊台座内から発見されたガラス（8 世紀初頭）について測定した結果でも、これらと同じ同位体比の範囲に入り、同一鉱山から鉛原料が供給されていたと考えられる。

まとめ

奈良三彩、平安緑釉陶器の鉛釉を対象として鉛同位体比測定を行った。その結果、ほとんど全てのデータがきわめて集中する値を示した。これは、銭貨分析の項でも述べたように、長登銅山跡、平原遺跡から出土した鉛製錬関係資料や銅鉱石の数値とよく一致しており、この地域から一括して

原料が供給された可能性が高い。

本研究にあたっては次の機関から資料をご提供いただいた。ご協力を賜った担当者の方々の氏名とともに記して感謝したい（五十音順）。

京都大学考古学研究会，小牧市教育委員会（中嶋隆氏），下関市教育委員会（水島稔夫氏），多治見市文化財保護センター（田口昭二氏・桃井勝氏），豊橋市教育委員会（贅元洋氏），名古屋市博物館（梶山勝氏），日進町教育委員会（高柳俊之氏），防府市教育委員会（吉瀬勝康氏），美東町教育委員会（池田善文氏，森田孝一氏），三好町教育委員会（安田幸市氏）。

山崎一雄氏からは多数の粉末試料を提供していただいた。また，齋藤孝正氏には，試料のサンプリングにご同行下さり有益な助言をいただくことができた。御礼申し上げます。

参考文献

- Brill, R.H., Yamasaki, K., Barnes, I.L., Rosman, K.J.R. and Dias, M., "Lead isotopes in some Japanese and Chinese glasses" *Ars Orientalis*, 11, 87-109 (1979).
- 馬淵久夫，平尾良光 「東アジア鉛鉱石の鉛同位体比—青銅器との関連を中心に—」、『考古学雑誌』，73, 71-117 (1987).
- 山崎一雄 「日本出土の緑釉陶の化学的研究」、『三上次男博士喜寿記念論文集』陶磁編，平凡社，367-380 (1985).
- 山崎一雄 「正倉院ガラス玉の産地」、『古文化財の科学』，思文閣出版，265-273 (1987a).
- 山崎一雄 「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 (1987b).
- 山崎一雄，室住正世，中村精次，湯浅光秋，渡会素彦 「中国および日本のガラスの鉛同位体比」、『日本化学会誌』，821-827 (1980).

(国立歴史民俗博物館情報資料研究部)

(1999年7月6日 審査終了受理)

Lead Isotope Analysis of Tricolored Glaze in Nara Period and Green Glaze in Heian Period

SAITO Tsutomu

Lead isotope analysis of ancient Japanese lead glaze, i.e. tricolored glaze in Nara period (Nara *sants'ai*) and green glaze in Heian period, was carried out. Most of the samples was collected from ancient kilns which we can certainly estimate the locations and the ages, however, in case of Nara tricolored glaze few number of samples have ever been found and the samples excavated from ruins at which they were used were also analyzed. Lead in the samples was separated by high-frequency heating method. As the result, most of the isotope ratio data except one is centered on almost the same point. They are also the same values as lead ingot, lead smelting slags and copper ores excavated from the ruins of Naganobori copper mine and the Hirabara lead smelting ruins, Yamaguchi Pref. From archaeological study and the lead isotope data this mine was most plausible as the source of the material lead.