

標準試料を用いて測定誤差などについて調査した。その結果、測定誤差を大きくする最も大きな原因は測定資料の層厚がX線的に無限厚でない場合であり、薄いガラスは注意を要することが明らかになった。

風化による成分の変動を調べた結果、鉛珪酸塩ガラスの風化が最も顕著であった。鉛ガラス(PbO-SiO₂系)は新鮮な部分に比べて表層の風化した部分ではSiO₂含有量が減少してPbO成分が増加することが認められた。鉛バリウムガラス(PbO-BaO-SiO₂系)はBaOやPbOは減少してSiO₂は増加する傾向が認められた。これら鉛珪酸塩ガラスの表面には風化生成物として炭酸鉛や磷酸鉛が生じていることが多かった。アルカリ珪酸塩ガラスは酸性土壌に対して耐酸性があると言われているが、出土遺物ではNa₂O、K₂Oなどのアルカリ成分の減少が著しく、表面はSiO₂に富んでいた。ソーダ石灰ガラスのなかではAl₂O₃含有量の多いガラスの化学組成の変動はやや少ないようであった。

第3章 ガラスの化学組成の歴史の変遷

紀元前2世紀頃から後14世紀までの50数遺跡から出土した約800点の遺物の材質調査を行い、ガラス材質の歴史の変遷を明らかにした。一部の資料に関しては、鉛同位体比の測定を行い、原料産地を推定した。

日本にガラスが伝えられたのは紀元前2世紀頃からで、後3世紀後半(弥生時代)までの期間に流通したのは鉛バリウムガラスとカリガラス、そして少量の鉛ガラスである。一部地域ではソーダ石灰ガラスも出土しているが1~2点のみであり、一般的に流通したものではなかった。弥生時代の遺跡から最も多量にかつ広範囲な地域から出土するのはカリガラスであった。本論では鉛同位体比法を用いてカリガラスに使用された原料の産地を推定した結果、中国産の可能性を示した。また、コバルトによって着色された青紺色のカリガラスは他の色調のガラスとは異なり、必ず1%以上のMnOを伴うことが明らかとなった。これは中国産のコバルト鉱石の特徴とも符合しており、中国で製造されたカリガラスが日本に伝えられた根拠にもなる。

後3世紀後半以降からソーダ石灰ガラスは多量に出現した。これらはAl₂O₃含有量が少なくCaO含有量が多いタイプと(エジプトや地中海周辺諸国から西アジアにかけて発達したガラス)、Al₂O₃含有量が多くCaO含有量が少ないタイプ(インドから東南アジアにかけて発達したガラス)に分類できた。

日本で出土する青紺色のソーダ石灰ガラスはAl₂O₃含有量が少なくCaO含有量が多いタイプに属することが明らかになった。青紺色のソーダ石灰ガラスはコバルトによって着色されたもので、その特徴はMnO含有量は少なく、青紺色のカリガラスに使用されたコバルト鉱石とは異なっていた。しかし、6世紀中~後半頃になるとMnO含有量が多い青紺色ソーダ石灰ガラスが出現することがわかった。この事は異なるコバルト鉱石を着色原料とした2種類の青紺色ソーダ石灰ガラスが6世紀中~後半以降の日本に伝えられたことを示しており、MnO含有量の多いコバルト鉱石が中国産の特徴とすれば、当時の中国ではすでにソーダ石灰ガラスの製造がはじまったことを示している。

黄色、黄緑、オレンジ色などの色調のガラスはAl₂O₃含有量の多いタイプで、PbOを数%含有し、TiO₂含有量も多い特徴を示し、インドに起源をもつガラスの特徴を示した。

古墳時代はソーダ石灰ガラスの全盛期となったが、弥生時代以降途絶えていた鉛ガラスは古墳時代後期の終わり頃の6世紀後半頃から再び流通した。そして、7世紀末頃には日本産の鉛鉱石を使用した鉛ガラスが製造されたことが明らかになった。日本で最古の川原寺出土の緑釉の磚も日本産の鉛鉱石で作られたことが明らかになった。8世紀は鉛ガラスの全盛期となり、寺院の装飾品などに多量に使用されたと考えられる。また、一部は緑釉などにも利用されている。しかし、10～11世紀頃にはガラスは衰退するようである。11世紀後半頃になると中国で開発されたカリウム鉛ガラスが日本に伝えられた。日本で出土する13世紀頃のカリウム鉛ガラスは中国産の鉛鉱石を原料としたものと、長崎県対州鉱山産と推定できる鉛鉱石を原料としたものが流通したことが明らかとなった。

第4章 鉛ガラスの製造方法

古代のガラスがどのような方法で製造されたかについては、従来から正倉院に現存する「造仏所作物帳」の解釈が一般的である。本論文では飛鳥池遺跡出土遺物の研究から鉛ガラスの製造方法を推定し、実験により検証をおこなった。その結果、当遺跡では、微粉状にした方鉛鉱、石英（水晶）、それに少量の輝安鉱をガラスバッチとし、中間物を作らず直接加熱して鉛ガラスを製造したことが明らかになった。