

再現白天目と灰釉古陶の比較

岩瀬信洋*・安達信泰*・太田敏孝*・青山双溪**

*名古屋工業大学先進セラミックス研究センター
〒507-0071 岐阜県多治見市旭ヶ丘10-6-29**草の頭窯
〒507-0004 岐阜県多治見市小名田町4-3

Comparative Analysis of Reproduced 'Shiro Tenmoku' and Old Ash-Glazed Tea Bowl

Nobuhiro Iwase*, Nobuyasu Adachi*, Toshitaka Ota*, Sokei Aoyama**

*Advanced Ceramics Research Center, Nagoya Institute of Technology
10-6-29 Asahigaoka, Tajimi, Gifu 507-0071, JAPAN**Kusano Kashiragama
4-3 Onada-cho, Tajimi, Gifu 507-0004, JAPAN

'Shiro Tenmoku' is a white tea bowl that was made in the Muromachi period. By an excavational investigation, some old ash-glazed shards that resembles 'Shiro Tenmoku' were found at Onada Kamashita old kiln in Mino. After this incident, Aoyama succeeded in reproduction of the ash glazed 'Shiro Tenmoku' with great difficulty. In the present work, this reproduced 'Shiro Tenmoku' and some old ash-glazed shards excavated from old kilns of Mino were investigated by X-ray diffractometer and an electron microscopy with an elemental analyzer. Most of them were basically equivalent in analysis values. However, the reproduced 'Shiro Tenmoku' contained Ca and Na more than the old ash-glazed shards on the average. This must accelerate vitrification of glaze and densification of porcelain body that exists on the downside of the glazed layer. As a result, the distinguished white of 'Shiro Tenmoku' developed. A few samples of the old ash-glazed shards excavated from Onada Kamashita old kiln and Amagane old kiln had the same analysis values as that of the reproduced 'Shiro Tenmoku'. It is assumed that such a tea bowl remained as 'Shiro Tenmoku'.

Keywords: Shiro Tenmoku, old ash-glazed tea bowl, old kiln of Mino, electron microscopy, elementary analysis

1. はじめに

徳川美術館所蔵の「白天目」(図1)は、室町時代の茶人である武野紹鴎の所持と伝えられる日本で最も古い国産の白い焼き物として知られている。この「白天目」と類似した白さが際立つ灰釉を施した陶片が、平成7年度に行われた多治見市小名田窯下古窯群の発掘調査により、多くの陶片に混じって出土した。この発見を契機に、著者の一人である青山は、白天目の釉薬には灰釉が用いられていると考え、数々の実験を重ねた後、白天目の再

現に成功した^{1,2)}。図2は、再現した白天目を示す。素地及び釉薬には鉄分が少ない粘土及び灰釉を使用した。電子顕微鏡観察及び元素分析から、釉薬は完全にガラス化し、貫入や多くの気孔が見られ、また、カルシウムが多く含まれていた。さらに、釉薬と素地の界面においてカリウムが多く検出され、焼成中にカリウムを含む成分がまず先に溶解して素地に浸み込み、緻密化を促進したと考えられた。その結果、緻密化した白い素地の上に淡緑色の透明なガラスがコーティングされ、下地の白色が



図1 徳川美術館蔵「白天目」

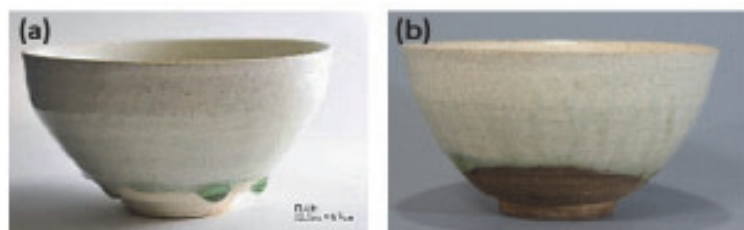


図2 再現白天目 (a) 使用前、(b) 使用后

より白く映えたと考えられた³⁾。さらに、図2 (b) に示すように、使用するうちに、貫入に茶渋が入り、図1の白天目のように、白とのコントラストが醸し出された。本報告では、この再現した白天目の特徴について、小名田窯下古窯跡及びその周辺的美濃古窯跡で出土した灰釉古陶片を比較分析した結果を報告する。

2. 分析方法

灰釉古陶片試料は、図3に示す15世紀後半から16世紀に焼かれた小名田窯下古窯、尼ヶ根古窯、下石西山古窯、白山古窯などの美濃古窯群跡で採取した。それらの大きさは、約5cm×3cmで、小名田窯下古窯と尼ヶ根古窯の試料は貫入が入った透明な淡緑色で、下石西山古窯と白山古窯の試料は、薄茶色であった。

評価方法としては、X線回折測定(XRD)及び電子顕微鏡(SEM-EDS)を用いた。XRD試料は、各陶片を約1cm×2cmの大きさに切り出し、さらに2～5mmの厚みになるように縦に半分に切断することにより作製した。この素地部分と釉薬部分の面をそのままの状態、粉末X線回折装置(Rigaku RINT1100)を用いて測定した。SEM-EDSの試料は、陶片を各々約5mm角の大きさに切断ないし破断して、走査型電子顕微鏡(JEOL JSM-7000F, JED-2300F)を用いて微構造観察及び元素分析を行った。元素分析は、それぞれ2～3ヶ所について面分析を行い、組成を算出した。

3. 実験及び考察

3-1. 素地の分析

図4 (a) に示すようにXRD測定では、灰釉古陶片及び再現白天目ともに、いずれも同様に主相が石英で、

他にクリストバライトとムライトが検出された。それらのSEM-EDSによる元素分析結果は、表1に示すように、美濃古窯群の試料においてはシリカ63～80%、アルミナ17～30%、アルカリ・アルカリ土類成分2～6%、鉄成分1～3%で、再現白天目の組成はその範囲内であった。当然のことではあるが、いずれも同じ地域の粘土から作製されているためと考えられる。なお、SEM-EDSを用いた古陶器の分析に関しては、山本らによる「中近世施釉陶器の自然科学的研究」が報告されている⁴⁾。その中で、美濃焼の灰釉に関する胎土の分析値としてシリカ72～80%、アルミナ16～22%、アルカリ・アルカリ土類成分2～3%、鉄成分1%が報告されている。これらの値は、本実験の分析値とほぼ一致しており、分析結果は妥当なものであると考えられる。

3-2. 釉薬層の分析

XRD結果は、図4 (b) に示すように、下石西山古窯の試料に石英のピークが少し見られたが、再現白天目を含めていずれの試料もガラスに特徴的なブロードなピークを示し、大きな差異はなかった。表2は、釉薬破断面の元素分析結果を示す。素地部分と比べて、ガラス相で均一のため、ばらつきは比較的少なかった。文献値⁴⁾も含めた美濃古窯群の試料ではシリカ63～68%、アルミナ13～17%で、再現白天目の値も同様であった。一方、アルカリ・アルカリ土類成分に関しては、再現白天目は美濃古窯群の試料と幾分異なり、Na₂OとCaOを多く含んでいた。このことは、釉薬をよりガラス化するように働き、より透明になったと考えられる。また、Fe₂O₃に関しては、薄茶色の下石西山古窯及び白山古窯の試料で多く含まれ、淡緑色の尼ヶ根古窯と再現白天目



図3 陶片試料とその採取地

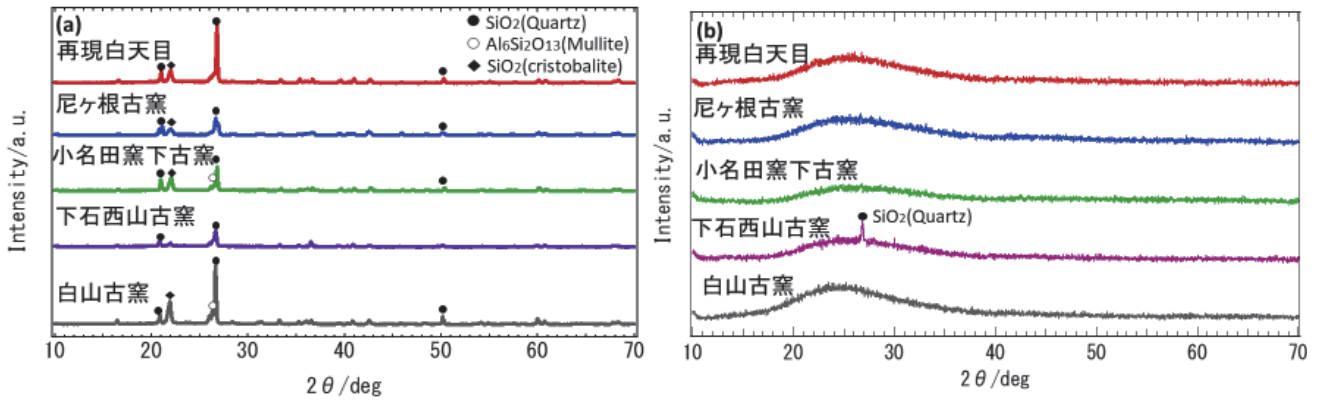


図4 素地 (a) 及び釉薬 (b) 面の XRD パターン

表1 素地の組成分析

組成	再現白天目	小名田窯下	尼ヶ根	下石西山	白山	文献値(3)
Na ₂ O	0.3	0.1	0.1	0.2	0.1	-
MgO	0.2	0.4	1.1	0.7	0.3	0.1 (0.1-0.2)
Al ₂ O ₃	22.6	21.8	29.2	22.5	17.2	19.9 (16-22)
SiO ₂	73.2	73.4	62.8	71.9	80.2	76.0 (72-80)
K ₂ O	2.1	2.4	4.1	2.9	1.2	1.7 (1.4-2.2)
CaO	0.1	0.1	0.2	0.1	-	0.1
Fe ₂ O ₃	1.4	1.7	2.5	1.8	1.0	1.1 (0.7-1.4)

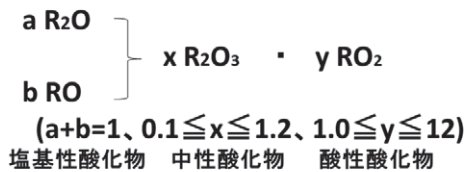
表2 釉薬層の組成分析

組成	再現白天目	小名田窯下	尼ヶ根	下石西山	白山	文献値(3)
Na ₂ O	0.7	0.2	0.2	0.2	0.2	-
MgO	1.9	1.8	2.2	3.0	3.1	1.6 (0.7-1.9)
Al ₂ O ₃	13.9	13.3	13.3	13.7	16.4	15.9 (15-17)
SiO ₂	62.2	66.7	67.5	64.5	68.3	65.2 (63-68)
K ₂ O	1.8	2.1	2.0	2.7	2.4	2.7 (2.1-3.1)
CaO	17.6	14.5	13.7	14.2	8.0	11.4 (8.7-12.4)
Fe ₂ O ₃	1.0	1.4	1.0	1.8	1.7	1.4 (1.0-1.7)

の試料で少なく含まれ、鉄分量による発色の違いが顕著に表れていた。

次に、平均的分析値ではなく、個々の分析値について、モル比で表すゼーゲル式により検討した。ゼーゲルプロットは、次式で表されるように、アルカリ・アルカリ土類成分を1とした時のシリカとアルミナの量をプロットしたものである。図5に示すように、プロットの範囲は、透明・光沢釉の領域の中心に位置していた。そして、再現白天目と尼ヶ根古窯及び小名田窯下古窯試料のプロットは、 Al_2O_3/SiO_2 比が約0.12の傾きの直線状に並んでいた。一方、下石西山古窯試料及び白山古窯試料のプロットは、ややアルミナリッチ側にずれていた。中でも再現白天目のプロットは、シリカとアルミナの少ない領域に位置し、ゼーゲル式からわかるように、これは相対的にアルカリ・アルカリ土類成分が多いことを意味し、よりガラス化が促進されたと考えられる。また、再現白天目のプロット領域には、尼ヶ根古窯及び小名田窯下古窯の一部試料のプロットが重なっていた。すなわち、そこで作製された灰釉は、ばらつきはあったが、再現白天目と同様の組成のものが存在した可能性が考えられる。

ゼーゲル式



さらに、アルカリ成分とアルカリ土類成分の構成比に関して検討するため、図6のプロットを行った。 $R_2O + RO$ の値は1であるので、図6(a)に示すように、 $Na_2O + K_2O$ と $CaO + MgO$ の各軸の1を切片とする直線上に位置する。これを拡大した図が、図6(b)で

ある。灰釉は炭酸カルシウムをベースとした釉薬であり、全体にアルカリ土類リッチな組成であるが、特に再現白天目と尼ヶ根古窯、そして小名田窯下古窯試料のプロットの一部が重なってアルカリ土類リッチであった。また、図6(c)に示すように、白山古窯試料のプロットを除き、再現白天目を含めていずれの試料も CaO と MgO の割合は同様であった。一方、 Na_2O と K_2O の割合は、再現白天目では Na_2O が明らかに多く、美濃古窯試料では少なかった。

3-3. 素地と釉薬層の界面の分析

図7は、再現白天目のSEM-EDSによる元素マッピングを示す。上側が釉薬層で、下側が素地部分である。特徴として、 Ca が釉薬層にのみ存在し、釉薬層直下の界面にある素地部分に K が高濃度に検出され、緻密化していた。これは釉薬に用いられた長石が先に溶けて素地に浸み込み、その部分が焼結したためであると考えられた³⁾。この界面部分の Ca と K の濃度分布を線分析によって表した結果を図8に示す。 Ca は、釉薬層では高い強度であるが、素地部分では急激に低下した。一方、 K は、 Ca の低下した付近において、大小はあるもののピークを示した。美濃古窯群の試料も、再現白天目ほどではなかったが、同様に界面における K 元素の高濃度化が検出された。なお、 Na も K と同様に素地に浸み込んだと思われるが、 Na の方が絶対量が少ないこと、軽元素であることなどから、本実験においては検出することはできなかった。

4. おわりに

再現白天目は、美濃古窯群の中で鉄分が少なく比較的透明な釉薬層である尼ヶ根古窯及び白天目類似の灰釉陶片が出土した小名田窯下古窯の灰釉陶片に近い組成分析値を示した。ただし、再現白天目には Ca と Na が多く

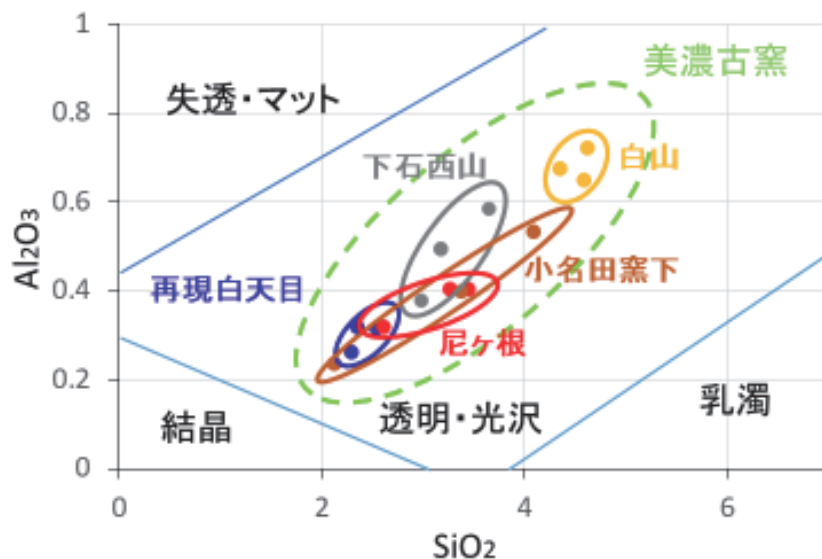


図5 釉薬層のゼーゲルプロット

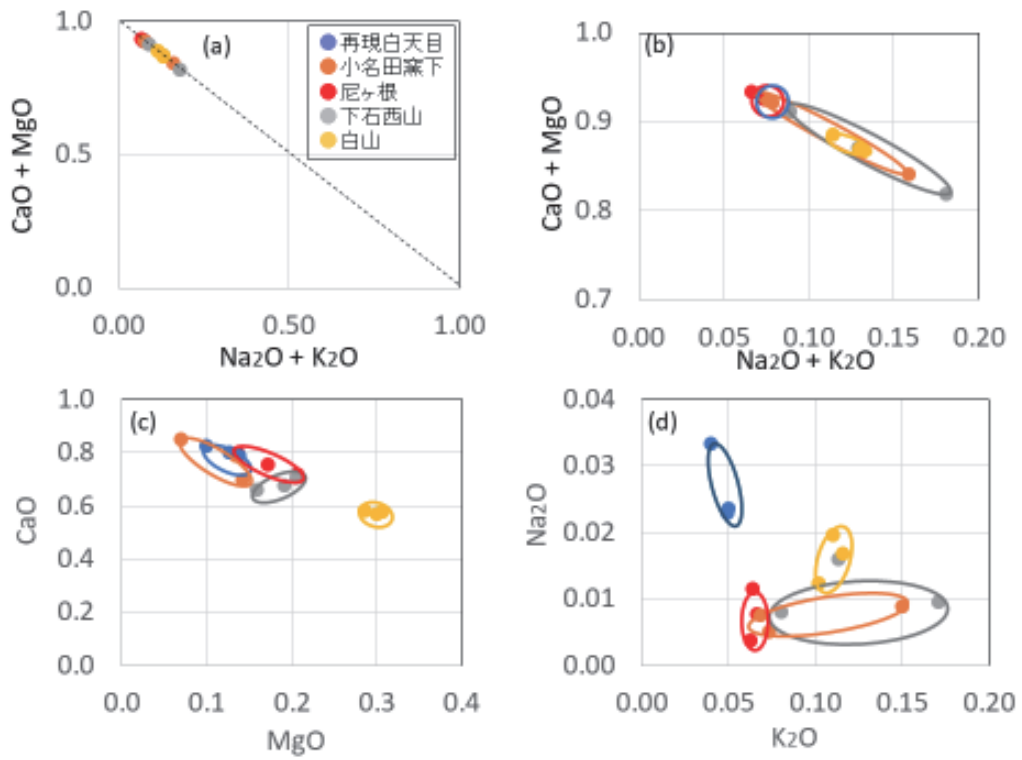


図6 アルカリ・アルカリ土類成分の構成比

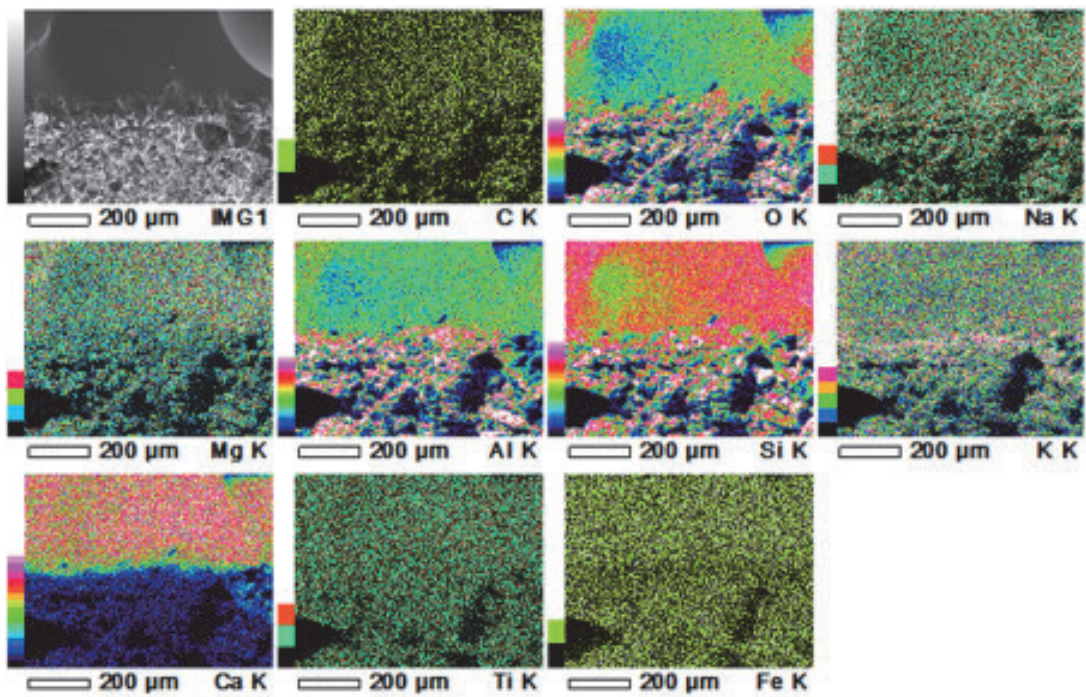


図7 再現白天目の元素マッピング

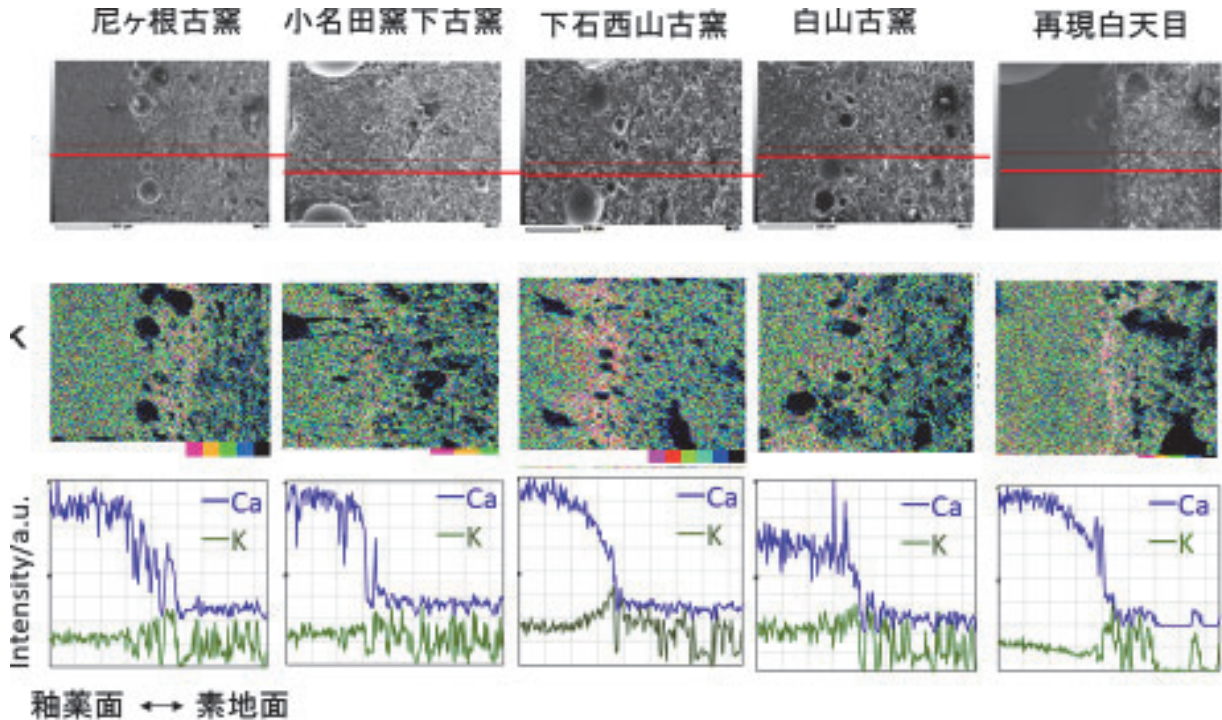


図8 素地と釉薬層界面の状態

(上段：微構造写真、中段：K元素マッピング、下段：KとCaの線分析)

含まれ、相対的にシリカ及びアルミナが少なく、よりガラス化しやすくなったと考えられる。また、美濃古窯群の陶片試料に比べて、釉薬と素地の界面でKの高濃度化が進行し、より緻密化しやすかったと考えられる。以上により、再現白天目は、素地及び釉薬に鉄分が少ない原料を用いたこと、そして釉薬にCa及びNaを比較的多く用いたことにより、無色透明なガラス相と釉薬ガラスの下に白い緻密な層が形成されて多くの光が反射されて白さが際立つ白天目の釉調がえられたと考えられる。そして、小名田窯下古窯や尼ヶ根古窯でも、同様な組成の灰釉が調合され、白天目として伝わったのではないかと推測される。

謝辞：本研究結果の一部は、東洋陶磁学会45回大会において発表し、その後、貴重な意見を頂いた。ここに感謝の意を表す。

参考文献

- 1) 青山双男, 「出土した白天目茶碗の器形・胎土・釉薬について～作陶の立場からの一考察～」瑞浪市陶磁資料館研究紀要第13号(2010)
- 2) 多治見市美濃焼ミュージアム企画展「白天目 灰釉古陶の再現」解説パンフレット(2015)
- 3) 太田敏孝, 日比野寿, 「青山双男作「白天目」の微構造」名古屋工業大学先進セラミックス研究センター年報, 3 23-28 (2014)

- 4) 山本さざり, 斎藤務, 高塚秀治, 田口勇, 「中近世施釉陶器の自然科学的研究」日本文化財科学誌, 42 55-80(2001)

注：カラー図版はホームページ上に公開