東京国立博物館本館に使われた鉄釉窯変調瓦の製造技術の解明



川角 久子 かわら美術館の瓦談話会



愛知県高浜市内に残る伝承「博物館(上写真1:現在の東京国立博物館本館、昭和 13 年竣工当時は東京帝室博物館、関東大震災被災で建て替えたので復興本館ともいう。重要文化財) の瓦を焼いた」をもとに調査した結果、独特な製造方法の痕跡から、鬼瓦を除くほとんどの釉薬瓦は市内の土管坂地区で製造されたことを解明した。それは、土管製造用製管機を使い 筒型に押出成形し、釉薬をかけて焼成後に瓦を縦方向に割った跡が、博物館に所蔵されている瓦と一致した事による。このような独特の製造方法を採用しなければならなかった理由は、 要請された瓦が、大寺院なみの大型本葺瓦であり、かつ単色ではない斑模様の入った高温焼成の鉄釉瓦であったためである。この鉄釉の窯変調瓦がどのように製造されたのかを、高浜 市内に残されている焼成後の製品の分析から解明出来ないかと考え応募した。

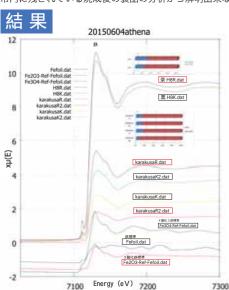


図1: 瓦釉薬の鉄元素の XANES 解析結果 あいち SR センタ

瓦釉薬表面の茶色部分と里色部分の鉄含有量と酸化度を調 べるため、XAFS 測定を行った。一部の試料については遷移金

属のマンガン・コバルト・銅・亜鉛も調査した。鉄と銅の酸

化度判定は「ATHENA の線形結合フィッティング」で行った。

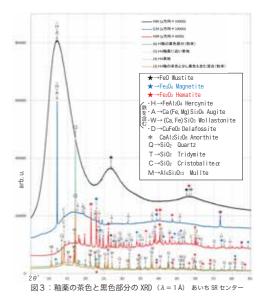
判定は XANES 領域とした。

写真 2: H8K・G2K・H8R 測定試料

karakusaR・K2・K・R2 測定 あいち SR センタ

元素	釉の茶 色部分	釉の黒 色部分
С	8. 02	11. 72
0	38. 96	37. 79
Na	0. 27	0. 27
Mg	0. 13	0. 15
ΑI	2. 69	2. 62
Si	28. 48	26. 54
CI	0. 02	0. 04
K	2. 17	2. 02
Ca	7. 38	6. 14
Mn	0. 43	0. 51
Fe	8. 61	9. 64
Cu	0. 28	0. 24
0s	2. 57	2. 33
合計	100. 01	100. 01

図2:釉薬の茶色と 黒色部分の FPMA



蛍光X線回折(XRD)の鉱物結晶回折データは『JCPDS 1980』を引用した。測定試料の H8K・G2K・H8R は平板で、(3)~ (6) は粉末の釉薬と素地である。(6) は釉の黒色部分、(3) は釉の茶色部分であるが素地も含んでいる。また、回折結果 の分析には、地質鉱物研究者S氏のアドバイスと試験場の研究報告等を参照すると同時に、釉の黒色部分と茶色部分の 含有元素を、EPMA で求め(図2)、その元素より晶出可能な鉱物をノルム計算で確認した。

回折の分析結果を(図3)に示す。グラフを見やすくする為に回折強度の位置をいじっているが、バックグラウンドは、 H8R→G2K→H8K の順に高く、特に釉の黒色部分の平板試料 (H8K, G2K) は、表面ガラス層の影響が強いと考えられる。さ らに、釉の黒色部分(H8K)のピークでは、鉄が2価(ウスタイト FeO)の組成で含まれた化合物が優位に存在している。 反対に釉の茶色部分(H8R)には、3価の鉄へマタイト Fe203のピークが顕著にみられる。その中間である G2K には、釉 の黒色表面に茶色釉も目視でき、回折曲線のピークは、石英と鉄の2価・3価の混合であるマグネタイト Fe₃O₄ や FeO 組成の化合物、それに Fe203 がみられる。G2K は中間を示す。この3点資料の分析結果より、「釉の黒色部分は2価の鉄 が多く、釉の茶色部分は3価の鉄が多い」といえる。粉末試料はみな似た結果を示している。これは、素地の結晶が主 に検出され、優位であったと考えられる。しかし、釉薬を含む (6) と (3) には $2\theta=10\sim20^\circ$ 付近に灰長石がみられ、「鉄 釉薬に石灰を10%以上添加して酸化焼成すると黒色になる」という著名な陶芸家の証言や各報告を裏付ける。粉末でも、 Fe₃0₄ の最大強度の面間隔 d = 2.532 Å では釉の黒色部分 (6) の曲線がわずかに高い。逆に茶色部分 (3) は、Fe₂0₃ のピー ク位置で黒色部分よりも高い所がある。XRD では、ここに釉の黒色部分と茶色部分の差を確認することができる。また、 前記S氏がSR実験場で大型掛唐草瓦をみて、「黒い部分はマグネタイトが出ている。磁石にくっつく」と言われた。 釉薬を小さく削り釉の黒色部分が磁石につくことを確認(写真5)した。写真には、釉の茶色部分も見られ、そこは3 価の Fe_2O_3 で磁石につかない。しかし、茶色には Fe_3O_4 があったり、黒色にはFeO化合物がある。これは今後の課題である。 石灰は「安価で耐久性を増し、釉薬の融点をさげ、焼成時の膨張を低下させる」必要な原料である。と同時に今回は

斑模様の生成に使われている。石灰を加えると融点がさがり、鉄は Ca と Si に取り込まれスカルン鉱物と言われる珪灰 石や輝石になる。この時の鉄の状態は FeO である。焼成が進むと鉄は酸 化が進み Fe₂O₃ や Fe₃O₄ となる。釉薬が黒から茶に変化する状態は、ベン ガラを 10%含有し SK9 OF の長石と藁灰と土灰の灰釉基礎 DB (産総研中 部センターで、釉薬原料の含有比によって黒から茶、茶から黒に変化す ることを指摘された。) で確認した。加えて斑模様には製管機が粘土を押

黒色部分



2. 下に黒色がある茶色部分とその裏側 写真5:磁石と釉の黒色と茶色部分

図1は結果の一部である。H8RとH8Kでは、目視による釉の茶 と黒の差は明らかだが、色の決め手と考える鉄の含有量と酸 化度の差は小さい。測定部分の断面を顕微鏡観察(写真4)し

た結果、調査試料を顕微鏡で調べ各色の釉片を厳密に選択す る必要があると判明した。また、釉の黒色部分の酸化度が低 いのは不思議に感じた。これは、測定が釉表面のいかなる深 度にフォーカスするのか等、非破壊釉層調査の難しさを認識 させる結果でもあった。

以上、今回の XAFS 解析は状況を正確に測定してくれている ものの、試料の雑な選定で想定した結果が得られなかったも のと推測される。

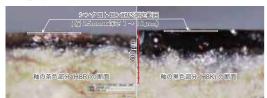


写真4: 釉薬の茶色部分と黒色部分の断面写真 あいち産業科学技術総合センターマイクロスコープ撮影

期待される効果・社会的インル

シンクロトロン光装置の利用はトライアル・レベルで、試料作成の失敗もあり、結果は十分とは言えないが、東博本館釉薬瓦の斑模様は、「釉薬の焼成過程で出来るガラス中の酸化鉄 分子の酸化状態の揺れと熱エネルギーによる変質」を利用したものと考えられる。陶磁器の釉薬製造研究は精力的に行われている。だが、出来あがった製品からその特徴を知る資料や 研究は比較的少ない。したがって今回の分析結果の妥当性を判断することさえ困難な点があるが、一応前掲の仮説が考えられる。東京帝室博物館復興本館の実施設計担当者であった宮 内省技師の御子息から、「父は芸大を出ているので建物の形と色にはうるさい、単色は使わない。茶色い釉に緑の斑模様が流れたものが所望であった」とお聞きした。昨今の陶器瓦は 100%近く均一に焼くことはできる。しかしそれでは単調なので数種類の色瓦を混ぜ葺きしたりしている。またアクセントをつけるために吹付け等を施している場合もある。いつの時代 にも屋根が単調にならないよう苦労してきた。特別な施釉調整や還元焼成を行わずに、一枚の瓦の内で色の変化を出して瓦葺き屋根の趣きを醸しだしている博物館の瓦には学ぶべきも のがある。今後、研究を深めて東博本館屋根瓦の再現や高級で奥床しく趣きのある屋根を造るために利用できるものと考える。 (引用・参考文献は省略)

し出す流れとの素地の凹凸が加わっている。