

国宝油滴天目茶碗の光彩に関する一考察

海老塚 昇*・岡本 隆之**

*理化学研究所光量子工学研究センター 〒351-0198 埼玉県和光市広沢 2-1

**元 理化学研究所石橋極微デバイス工学研究室

A Consideration on Brilliance of the Oil Drop Tenmoku Tea Bowl of National Treasure

Noboru EBIZUKA* and Takayuki OKAMOTO**

*Center for Advanced Photonics, RIKEN, 2-1 Hirosawa, Wako, Saitama, 351-0198

**Advanced Device Laboratory, RIKEN (Retired)

We estimate the surface structure of the Yuteki (oil drop) Tenmoku tea bowl of national treasure from its photograph and the electron micrograph of a fragment of a Tate Hiyajiru Tenmoku tea bowl. In a part of showing blue-purple brilliance of the fragment, “wrinkles” with a period of 600 to 800 nm and a peak to valley height of about 100 nm can be seen on the surface of the glaze. From the position of the deformed light spot of the light source reflected on the inner surface of the photograph of the Yuteki Tenmoku tea bowl, an ellipsoid was fitted to the cross section of the inner surface. Finally the “wrinkles” period of 900 nm and peak to valley height of about 100 nm were estimated from the positions of the blue brilliance on the photograph of the tea bowl.

Key words: wrinkles of glaze, sinusoidal transmission grating, back reflective layer

はじめに

天目茶碗の多くは黒釉が厚くかかった茶碗であり、特に中国の宋時代（10～13世紀）に建窯（福建省）において焼成された鉄質黒釉の天目茶碗は建盞（けんさん）とよばれる¹⁻⁴。国宝に指定されている茶碗8点のうち建盞が4点を占め、建盞の3点が曜変天目茶碗、1点が油滴天目茶碗である。曜変とは漆黒の釉薬が厚くかかった建盞の内面に大小さまざまな斑点が浮かび、そのまわりが暈のように青く輝き、しかもその青紫色の光彩が茶碗を動かすと位置を変転させるものを指す¹⁻³、*1。油滴天目茶碗は、光沢のある黒釉に油の滴に似た釉色が表れるのが特徴である。Fig. 1は国宝の油滴天目茶碗であり、面光源の虚像（反射光）の周囲の油滴に青色の光彩がみられる⁵。また、Fig. 2の木葉天目茶碗（吉州窯、重要文化財）は面光源の虚像（上図の内側上方と下図の外側中央右）の位置に光彩がみられ

る⁶。本稿においては天目茶碗の光彩に関する先行研究を紹介し、光彩の原理について考察する。

1. 天目茶碗と甲虫の翅、回折光学素子の光彩

従来、曜変にみられる青紫色の光彩は薄膜干渉によるものと考えられてきた¹⁻³。屈折率が1.5程度の単層の薄膜干渉は、ほぼ表面と裏面の反射光の2光束干渉である。薄膜干渉の彩色がみられる方向と反射光が同じ方向であるために、陶磁器の表面に薄膜が形成されている場合など、薄膜の表面と裏面の反射率が異なると干渉色の可視度が低下する。Fig. 2の木葉天目茶碗の虚像の位置に、薄膜干渉によって説明できる光彩がみられる。

曜変の暈のような光彩は、薄膜干渉では説明できない。長江らによると、蓼冷汁天目とよばれる陶片の青銀色の光彩を示す部分の走査型電子顕微鏡（SEM）画像には、周期

E-mail: noboru.ebizuka@riken.jp

*1 山崎によると「大徳寺龍光院の曜変天目茶碗は外面は黒色無地、内面には不規則に分布した多数の斑点がある。（中略）また、黒色の釉薬の表面に青紫色の光彩を呈する部分がある。これは主として斑点の周囲に多く、形は不規則で一定の配列をしているわけではない。斑点は内面のみにあるが、青紫色の光彩は外面にも弱いながら認められる。この光彩は黒い釉薬の表面にうすい膜状に存在する。（中略）青紫色の光彩部分は見る方向を変えても色は変わらず、見る方向により光彩を呈する場所が移動しきわめて美しい。」と記述している¹。



Fig. 1 Oil drop Tenmoku tea bowl of national treasure: Southern Song Dynasty (12th-13th centuries), Jian ware, Museum of oriental ceramics, Osaka collection (Sumitomo group donation / Ataka collection)⁵⁾. Open data of collection image of museum is trimmed. Photo: Shigeru Nishikawa.



Fig. 2 Konoha Tenmoku tea bowl of important cultural property: Southern Song Dynasty, Jizhou Ware, Museum of Oriental Ceramics, Osaka collection (Sumitomo group donation / Ataka collection)⁶⁾. Open data of collection image of museum is trimmed. Photo: Shigeru Nishikawa.

600~800 nm の“シワ”がみられた⁴⁾。蓼冷汁天目は茶色味を帯びた透明感のある緑色の釉の上にあられた銀色の細い線条がウサギの毛のように見えることから、中国では兎毫盞といい、日本ではこれを穀物の穂の細い毛に見立てて禾目天目とよんでいる⁷⁾。なお、SEM 画像が撮影された陶片試料にみられる兎毫あるいは禾目は、その実体顕微鏡画像から、焼成時に流れて引き伸ばされた細長い油滴と考えられる。SEM 画像において“シワ”に異方性がみられ

る範囲 (FFT-1) は砂の風紋のような一次元に近い“シワ”構造であり、周期は 600 nm 程度であった。一方、等方的な“シワ”の範囲 (FFT-2) は脳珊瑚⁸⁾ や縮み塗膜 (結晶塗装)⁹⁾ の表面のシワに似ており、周期は 800 nm 程度であった。結晶塗装はリンクル塗装や縮み塗装ともよばれ、粉末状の塗料が被塗物の表面で焼結乾燥の際に収縮してシワが生じる⁹⁾。さらに釉薬断面の暗視野走査透過電子顕微鏡 (DF-STEM) 画像から、“シワ”の高低差は 100 nm 程度であり、非晶質の釉薬の表面に厚さ 40 nm 程度の多結晶層 (エネルギー分散型 X 線分光 (EDS) 分析から、Fe サイトに Si, Mg, Al, Mn, Cu などが固溶した磁鉄鉱質 (Fe₃O₄) の多結晶と推察される) が形成されている⁴⁾。この釉薬の“シワ”は表面の多結晶層より非晶質の線膨張係数が大きく、冷却の過程で非晶質の体積収縮が大きいために形成されたと推察される。

長江らは陶片の曜変の光彩を薄膜干渉ではなく、「シワの周期が、可視光の波長と同様な 700~800 nm 程度であるために反射される光の干渉による光彩」と述べているが、その解釈は回折格子の特性とは若干異なる⁴⁾、*2。また、長江らは FFT-1 の範囲には曜変がみられない⁴⁾とも述べているが、“シワ”の周期が 600 nm の場合、波長 400 nm の垂直入射光の回折角は 41.8° なので、周期が 800 nm の FFT-2 の範囲の波長 400 nm の回折角 30° より大きく、“シワ”に異方性があるために光彩 (回折光) が視野に入らなかったと推察され、光線の入射角と回折角および方位角を調整すれば光彩を観察できる可能性がある。

Mychocerus sp. という甲虫は表面に微細な突起がある翅による回折 (準コヒーレント散乱) による光彩がみられる¹⁰⁾。Mychocerus sp. の翅の表面の微細な突起はサイズや間隔が完全には均一ではないが、ほぼ揃っているために文献 10 (Seago, 2009) の写真では反射光の周りに着色した光彩がみられる。釉薬の“シワ”による彩光も Mychocerus sp. と同様の彩色がみられると推察される。

光彩がみられる釉薬表面の“シワ”や Mychocerus sp. の微細ドットのパターンは、ある種の回折光学素子 (DOE: diffractive optical element) と似ている^{11,12)}。DOE は多重干渉を利用する広い意味の回折格子であり、透過光や反射光 (0 次光) とは異なる方向に回折光が進むために構造色が見やすく、1 次回折光は虹と同様に彩度が高い光彩である。

*2 長江らによると「本陶片試料のシワの周期が、可視光の波長と同様な 700~800 nm 程度であるために反射される光の干渉によって光彩が見られると考えられる。一方、周期が 600 nm 以下の部分では、この周期が可視光の範囲を外れているために光彩は見られない。すなわち光彩の発現の有無は、このシワのように微細構造の大きさが可視光の波長に適合するかしないかの違いである。適合すれば光線の散乱や回折が起こり光彩が見られるが、適合しなければ光彩が見られない。」と記述している⁴⁾。

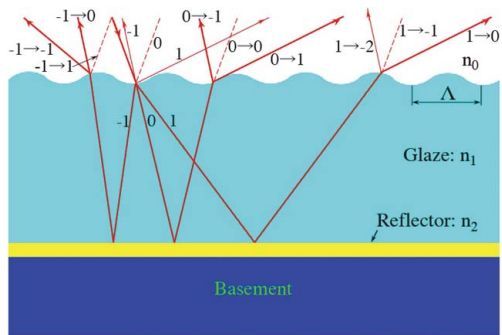


Fig. 3 Diffraction by sinusoidal transmission grating with back reflective layer. Numbers of -2, -1, 0 and 1 are diffraction orders. Solid lines indicate incident and diffracted beams, and dashed lines indicate beams which propagate reflection beam direction.

2. 蓼冷汁天目茶碗の光彩を生じさせる“シワ”構造

油滴は融解した釉薬の中で泡ができ、泡の中の気体が酸化性であるため、そこに赤褐色の Fe_2O_3 (酸化鉄(III), 赤サビ) 結晶が析出すると考えられている。また、油滴の斑点の色は加える成分によって変化し、青味を帯びたものも作られている²⁾。澤村は「 Fe_2O_3 のみの釉薬では暗褐色の地釉に油滴の斑は赤褐色 (小豆色) の油滴斑が現れるが、釉薬に炭酸マンガンを添加すると黒釉上に銀油滴が現れる」と記述している^{13,14)}。前述のように、蓼冷汁天目茶碗の破片のEDS分析ではマンガンを検出されている⁴⁾。これらの油滴に関する記述、および前述の蓼冷汁天目の陶片の電子顕微鏡写真から、光彩がみられる油滴部分は裏面に金属鉄の反射層をもつ二次元の正弦波形状の“シワ”構造であると考えた。

計算を容易にするために Fig. 3 のような、裏面に反射層をもつ、表面が一次元の正弦波回折格子構造を採用した。ここで釉薬の屈折率は $n_1 = 1.5$ (文献 1, 2 において建蓋の陶片の釉薬の屈折率の測定値が 1.538 とある。本稿では計

算波長領域の釉薬の屈折率を 1.5 と仮定)、反射層は厚さ半無限大の金属鉄とし、複素屈折率は文献値¹⁵⁾ を用いた。金属鉄の複素屈折率は波長 400 nm において $n = 2.2606 + 2.5931i$, 550 nm において $n = 2.9497 + 2.9318i$, 700 nm において $n = 2.8653 + 3.1820i$ である。また、金属鉄と釉薬界面 ($n = 1.5$) との垂直入射の反射率は波長 400 nm において 35%, 550 nm において 38%, 700 nm において 41% である。なお、金属鉄内に透過した光波はすべて金属鉄内で吸収される。釉薬内の光波の伝搬はインコヒーレント (薄膜内の多重反射光は互いに干渉しない) として扱い、厳密結合波解析 (RCWA) によって回折効率を求めた。ただし、RCWA の数値計算では光波をインコヒーレントとして扱うことができないために、実際には釉薬の厚さを 4,000 から 28,000 nm まで 10 nm ずつ変化させ、2,401 の異なる釉薬層の厚さの回折効率の平均値を求めた。また、比較のため、黒釉の部分に相当する反射層がない正弦波回折格子構造についても計算を行った。ここで、厚膜内での多重反射をコヒーレントとして扱った場合は膜厚の変化によって生じる位相差に伴って反射率や透過率が正弦波状に変調される。一方、インコヒーレントとして扱った場合、厚膜に吸収がなければ、反射率や透過率は膜厚に依存しない。したがって、厚膜内での伝搬をコヒーレントとして扱った計算において膜厚を変えた反射率や透過率の平均値は厚膜内での伝搬をインコヒーレントとして扱ったときの値に一致する。

Fig. 4 は正弦波回折格子の格子周期 $\Lambda = 600$ nm と 700, 800 nm, 深さを 100 nm としたときの垂直入射光に対する回折効率を求めた結果である。なお, Fig. 3 において垂直入射では入射光と反射光が重なってしまうため, 斜入射で図示されている。回折格子と反射層が平行である場合, 屈折率が同一の媒質中では回折次数の和が等しい光波は同じ方向に伝搬するために, 反射層がある場合は反射層がない場合 (表面反射の回折光のみ) と比較して反射の回折効率

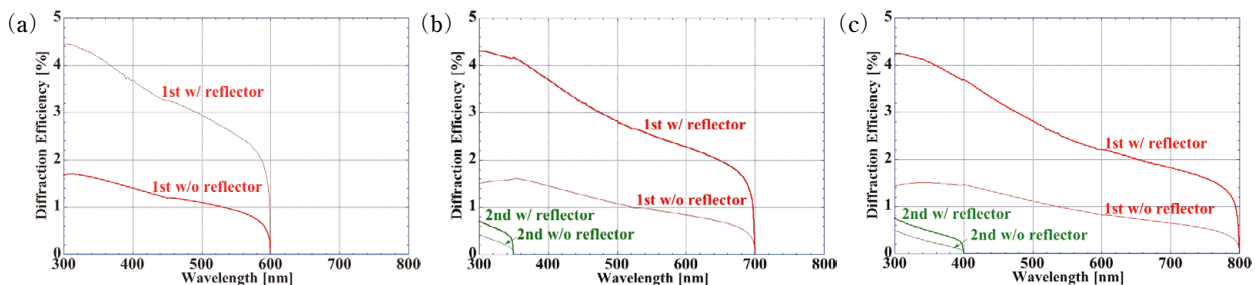


Fig. 4 Diffraction efficiency of vertical incident by sinusoidal grating with structure shown in Fig. 3 when refractive index of glaze is $n_1 = 1.5$, reflective layer is metallic iron, and grating amplitude is 100 nm. Grating periods are 600 (a), 700 (b) and 800 nm (c), respectively. 1st and 2nd indicate primary and secondary diffraction efficiency, respectively. w/ indicates “with” and w/o indicates “without” in these figures.

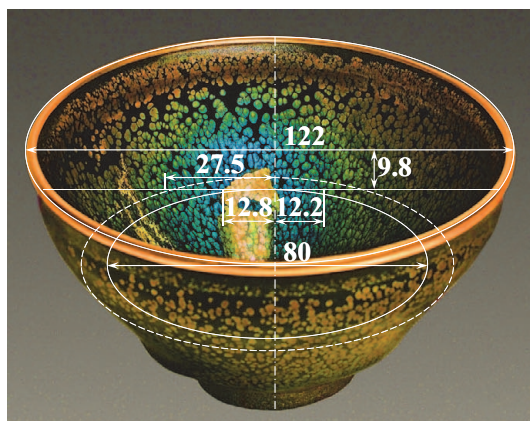


Fig. 5 Position of reflected light of light source and blue brilliance projected on inner surface of oil drop Tenmoku tea bowl of national treasure.

が大きく向上する。例えば入射の1次と釉薬から空気に出射する1次回折光の組み合わせは反射の2次回折光、1次と-1次回折光の組み合わせは0次回折光（反射光）の方向に伝搬する。また、正弦波回折格子に平行光束を垂直入射させた場合に、大部分の強度が反射と透過の0次と±1次回折光に分配され、次数の絶対値が大きいほど強度が弱くなる。さらに垂直入射の場合に2次回折光は Λ が800 nm以下では可視光領域に現れず、 Λ が800 nm以上であっても回折角が大きい（ $\Lambda = 800$ nm, 波長400 nmの場合に 90° ）ために観察しにくい。

油滴部分の釉薬の表面がFig. 3のような裏面に反射層を有する深さ100 nm程度の“シワ”構造であれば、見る角度によって虹色に見える。しかし、青紫色の回折光は回折角が小さく、反射光の近くに観察しやすいため、曜変の反射光を中心とした青紫色の暈のような光彩を説明できる。また、油滴（反射層）がない黒釉部分の回折光強度については山崎の「斑点は内面のみにあるが、青紫色の光彩は外面にも弱いながら認められる。」*1の記述とも一致する。

3. 国宝油滴天目茶碗の光彩と回折格子構造

3.1 油滴天目茶碗の形状モデル

前章で推測した釉薬の断面構造を検証するため、Fig. 1の油滴天目茶碗の写真に写った光彩が、回折格子構造によって説明できることを示す。Fig. 5は、画像編集ソフト（Adobe Photoshop Element 2022）により彩度を上げたFig. 1の写真である。Fig. 5の写真から、油滴天目茶碗の内面に写った面光源の変形した虚像や青緑色の光彩の位置を計測した。Fig. 5において直径122 mmの外縁と相似の楕円を描き、肉厚を仮定して面光源の虚像の上部における茶碗の内径を80 mmと推定した。なお、Fig. 5に書かれた数字は、茶碗の内径80 mmを除き、写真上の寸法と茶碗の外縁の直径から求めた値であり、視差を含んでいない。内径80 mmの円上の虚像の一端と茶碗の中心線がほぼ一致し、この茶碗の外径が122 mmであることから⁵⁾、内径80 mmの円と接する直線（水平線）上における虚像の見かけの幅が約12.8 mmであった。また、水平線上の面光源の虚像の端から両側に青色、水色、青緑色、緑色、黄色、橙色の順に光彩が見られる。青緑色の光彩は茶碗の中心から左端の見かけの位置が27.5 mm、右端が12.2 mmであった。

Fig. 1（Fig. 5）の写真は、Fig. 6のようにレンズ交換式デジタルカメラ（シグマ製、sd Quattro H+f = 30 mm, F1.4レンズ）、LED面光源（栗原工業製、L・エコライト、幅30 mm×長さ220 mm）を用いて撮影された。カメラレンズの前玉と茶碗の中心の距離が約300 mm、面光源はカメラレンズの上方に置かれている（撮影者の西川茂氏に確認）。

ほぼ真横から撮影された写真⁵⁾から茶碗の外面の中間部は頂角が約 77° の円錐であり、内面は頂角 80° の円錐と仮定した。すなわち、Fig. 6において内面の円錐の中心線と交差する照明から茶碗に向かう光線と茶碗からカメラに向かう光線の反射位置における二等分線は中心線に対する傾きが 50° である。さらに前述の面光源の虚像の上部にお

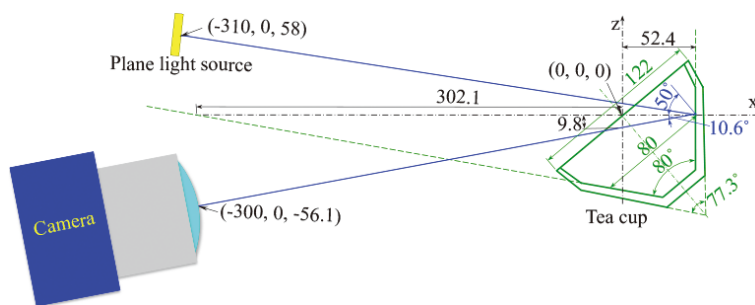


Fig. 6 Positions of light source, tea bowl obtained and camera from light source projected on inner surface of oil drop tenmoku tea bowl of national treasure (side view).

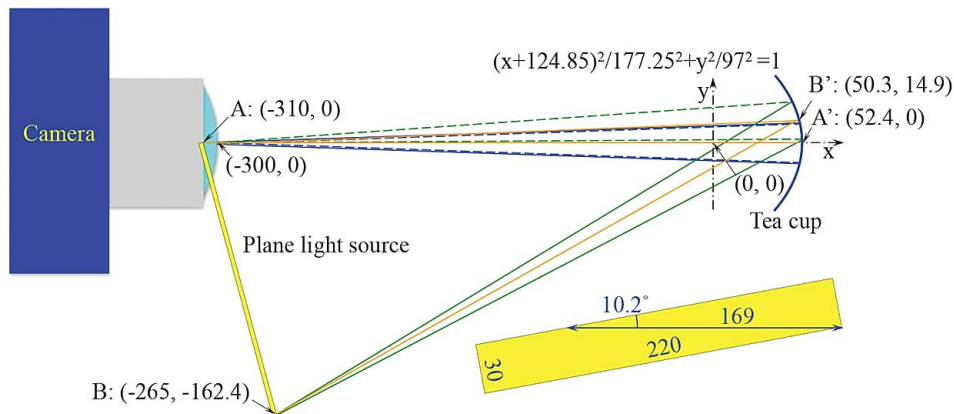


Fig. 7 Positions of light source, tea bowl obtained and camera from plane light source projected on inner surface of oil drop tenmoku tea bowl of national treasure (top view). Position A' indicate reflection point on tea bowl of ray emitted from position A of light source, and position B' indicate reflection point of ray emitted from position B.

ける茶碗の内径が 80 mm とした仮定と矛盾しないことがわかった。

Fig. 5 において直径 80 mm の円と接する水平線および Fig. 6 において、この円と接する二等分線を含む平面内において二等分線を x 軸、水平線を y 軸とし、円と接する円錐曲線を図形から求めると、長半径 177.25 mm、短半径 97 mm の楕円であった。その結果、偶然にも、Fig. 6 において楕円を含む平面に茶碗上面の中心が含まれるので、茶碗上面の中心を原点とした。ここで、直径 80 mm の円と楕円が接する点の x-y 座標は (52.4, 0) である。よって、楕円の式は

$$(x+124.85)^2/177.25^2 + y^2/97^2 = 1 \quad (1)$$

である。

Fig. 5 において直径 80 mm の円弧上の面光源の虚像と茶碗上面の中心の距離が 9.8 mm であることから、y-z 平面に投影したカメラに向かう反射光線が楕円を含む平面に対して 10.6° 傾いていることがわかる。視差や回折光の位置を計算するのに、厳密には照明やカメラの立体配置を考慮すべきであるが、10.6° の傾きであれば、x-y 平面における面光源やカメラと茶碗の距離や角度が大きく変化しないことから、Fig. 7 のように楕円が含まれる平面内に、面光源から発し、茶碗で反射あるいは回折してカメラに入射する光線を投影し、茶碗に写った面光源の虚像の位置から、面光源と茶碗、カメラの配置を求めた。ここで、面光源のカメラ直上の端と原点の距離を 310 mm とし、原点とカメラレンズの前玉との距離を 300 mm とした。

Fig. 7 においてカメラ直上の面光源の位置を A 点、楕円上における面光源の虚像の両端の位置を A' 点と B' 点とすると、A 点の座標が (-310, 0)、A' の座標が (52.4, 0) お

Table 1 Position of reflected light of light source and blue brilliance on y-axis projected on inner surface of oil drops tenmoku tea bowl of national treasure [mm].

Brilliance on the left side	Virtual image	Brilliance on the right side
27.5 ↔ 12.8 >	12.8 ↔ 0	> 0 ↔ -12.2

よび B' 点の座標が (50.3, 14.9) である。B' 点の座標は、Fig. 5 の面光源の虚像の端の位置、すなわち y 軸上の座標 (0, 12.8) を通るカメラからの直線と楕円との交点として求めた。さらに B' 点におけるカメラからの光線の角度および楕円の接線の法線の角度から、B' 点に虚像が位置する面光源の位置 B 点からの光線の角度を求め、A 点から A' 点までと同一距離 (362 mm) に位置すると仮定して求めた B 点の座標は (-265, -162.4) である。また、A 点と B 点の距離 (169 mm) から、面光源は Fig. 7 の右下の図のように楕円を含む平面と垂直な面内において 10.2° 傾いていると見積られる。

3. 2. 油滴天目茶碗の形状モデルと二次元の“シワ”構造、釉薬の吸収から導かれる光彩の色

Fig. 5 から面光源の虚像と青緑色の光彩の両端の位置を測り、Table 1 に示した。なお、Table 1 の値は Fig. 7 の座標を用いているために左が正、右が負である。また、Table 1 の値は光彩の色から求めたため、電子写真の色分解・合成処理や色調の調整などによる波長の不確定要因を含む。一方、Fig. 7 の配置から面光源の両端から発した波長 400 nm の光線の回折光が面光源の虚像の両端近傍に位置する場合の“シワ”の周期を求めると $\Lambda = 900$ nm であった。すなわち $\Lambda = 900$ nm がほぼ格子周期の下限值であるといえる。実際には“シワ”の周期は均質でなく、例えば $\Lambda = 900$ nm を極大とした正規分布であると考えられる。

Table 2 Existence range of diffracted light with transmission grating of 900 line pair mm on y-axis in Fig. 7 obtained from positions of light source, bowl, and camera [mm].

		Wavelength (order)			
		700nm (1st)	400nm (1st)	400nm (-1st)	700nm (-1st)
Grating period	900 nm	42.6 ↔ 22.7	27.4 ↔ 12.2	0.3 ↔ -12.2	-9.3 ↔ -22.7

Table 2 は、 $\Lambda = 900 \text{ nm}$ の“シワ”による波長 400 nm と 700 nm の面光源の両端 A 点と B 点から発した光線の回折光の $x = 0$ における y 軸上の位置を示す。なお、Table 2 の値も Table 1 と同様に Fig. 7 の座標を用いているために左が正、右が負である。Fig. 8 は“シワ”の周期が $\Lambda = 900 \text{ nm}$ 、深さが 50 nm および $100, 200, 300, 500 \text{ nm}$ の裏面に金属鉄の反射層がある場合と、ない場合の正弦波回折格子について、垂直入射光に対する回折効率を計算した結果である。なお、Fig. 8 の 1 次と 2 次回折光にみられる小さ

なりリップルは、2,401 の異なる釉薬層の厚さの回折効率の平均によっても除去できなかった残余である。

反射層がある場合に“シワ”が深くなるほど 1 次回折光のピークが長波長側にシフトして強度が大きくなる。“シワ”の深さが 50 nm と 100 nm では、 400 nm の効率が 700 nm の、それぞれ 2.5 と 2.0 倍である。深さが 200 nm や 300 nm では、緑や赤色の光彩が明るくなり、深さが 500 nm では赤色の光彩が明るくなると考えられる。一方、反射層がない場合は“シワ”が深いほど効率のピークが長波長

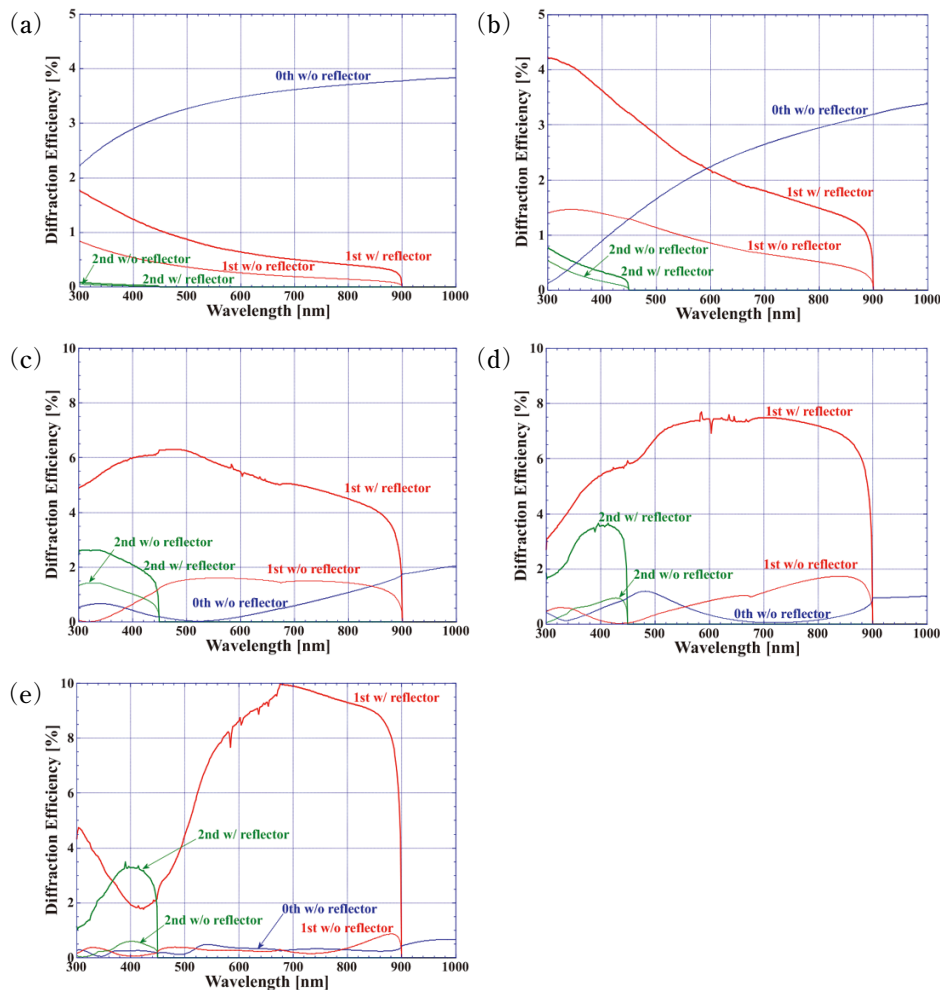


Fig. 8 Diffraction efficiency of vertical incident by sinusoidal grating with structure shown in Fig. 3 when refractive index of glaze is $n_1 = 1.5$, reflective layer is metallic iron, grating period is 900 nm , and grating amplitudes are 50 nm (a) and 100 nm (b) and 200 nm (c), 300 nm (d), 500 nm (e). 1st and 2nd indicate primary and secondary diffraction efficiency, respectively. w/ indicates “with” and w/o indicates “without” in these figures.

側にシフトする。深さが500 nmの場合には、1次回折光の可視光の回折効率が低下して、波長400~700 nmにおいて0.006~0.38%、平均0.25%、反射光(0次回折光)が0.11~0.48%、平均0.29%であり、可視光全域において反射防止構造になっていることがわかる。

前述の蓼冷汁天目茶碗の釉薬表面の等方的な“シワ”の範囲(FFT-2)は畝の幅がほぼ一定で、多くが枝分かかれた脳珊瑚のような二次元の“シワ”構造である。FFT-2の範囲のような二次元の“シワ”構造に光束が垂直入射した場合には±次の回折光が入射光を対称軸とする円錐状に伝搬する。ここで、回折格子から距離 a の回折光が作る円錐の半径を r とすると、回折角 θ に対して

$$r = a \sin \theta \quad (2)$$

である。回折光は円錐の底辺の円周上に広がるので、一次元の“シワ”の回折光強度を I_0 、入射光の半径を d とすると、二次元の“シワ”の回折光強度 I_{Diff} は

$$I_{\text{Diff}} = I_0 \pi d^2 / (2d \cdot 2\pi a \sin \theta) \\ = I_0 d / (4a \sin \theta) \quad (d \ll a \sin \theta) \quad (3)$$

であるが、±の次数が重なるので、2倍の

$$I_{\text{Diff}} = I_0 d / (2a \sin \theta) \quad (4)$$

となる。ここで、波長を λ 、回折次数を m 、格子周期を Λ とすると、垂直入射の回折の式は

$$m\lambda = \Lambda \sin \theta \quad (5)$$

なので、式(5)を式(4)に代入すると

$$I_{\text{Diff}} = I_0 d \Lambda / (2a m \lambda) \quad (m \neq 0, \lambda \neq 0) \quad (6)$$

が得られる。なお、回折光の半径は θ 方向に $\cos \theta$ 倍になるが、単位面積あたりの強度が $1/\cos \theta$ 倍になるので、相殺される。その結果、一次元の“シワ”による回折光の強度が等しければ、回折格子からの距離 a が等しい場合に二次元の“シワ”構造による400 nmの回折光強度が700 nmの1.75(=700/400)倍になる。さらに、油滴部分が裏面に金属鉄の反射層がある深さが50~100 nmの二次元の“シワ”構造をもつとすれば、一次元の“シワ”の400 nmの回折効率が700 nmの2.0~2.5倍なので、釉薬の吸収がない場合に400 nmの回折光強度が700 nmの3.5~4.4倍である。

次に釉薬の吸収について検討する。文献16(津坂, 1987)のFig. 8の鉄釉の還元率 $\{Fe^{+2}/(Fe^{+2}+Fe^{+3})\}$ とカラーメーターで測定したLab値(Hunter)¹⁷⁾から得られた主波長(λ_d)¹⁷⁾をプロットした図によると、還元率が10%では主波長が570 nm、30%では540 nm、40~55%では495 nm前後で最も短波長となり、70%では510 nm、80%では560 nmである¹⁶⁾。また、文献19(田中, 2019)の図6によると、還元焼成の鉄釉である、淡い青緑色の青磁釉

の反射スペクトルは400 nmが約36%、520 nmがピークで約44%、700 nmが約28%の凸形の分光特性である¹⁹⁾。この青磁の反射スペクトルのCIE XYZ色空間^{17,18)}から主波長を求めると520 nm近傍であることから、文献16のFig. 8から対応する還元度が30~35%あるいは70~75%と見積もられる。なお、Lab色空間はRGB色空間の非線形変換であり、主波長を簡単には求められないため、ここでは、CIE XYZ色空間から主波長を求めた。

油滴天目茶碗の釉薬は鉄釉であり、文献19の図6を測定した青磁の写真を比較すると、図1の左の真上から写された茶碗の中心から半径の3分の2近傍までが濃い青色から水色であることから、青磁釉の反射スペクトルより長波長の吸収が大きく、主波長が短波長にあると考えられる。また、半径の3分の2近傍の油滴は油滴の部分が茶碗の中心寄り(下側)の水色から縁寄り(上側)の黄土色に変化し、縁側に向かって油滴は黄土色の比率が増えて、茶碗の縁近傍の油滴は茶色に変化する。このことから、茶碗の縁寄りほど釉薬の層が薄くなり、陶器の地肌が透けて見えると考えられる。あるいは釉薬の還元率が茶碗の中心近傍とは異なり、主波長が長波長に変化している可能性も考えられる。

油滴天目茶碗の光彩の見かけの幅が、12.8 mmの面光源の虚像が0次光となる $\Lambda = 900$ nmの二次元の“シワ”による回折とすると、Fig. 7において $0.3 > y > -9.3$ と $12.8 < y < 22.7$ では面光源の虚像の端より400 nmから徐々に長波長成分が増えて、光彩は青紫色から水色または青緑色に変化し、 $-9.3 > y > -12.2$ と $22.7 < y < 27.4$ では400~700 nmの可視光全体のスペクトルが重なり、光彩は水色または青緑色を呈すると考えられる。さらに $-12.2 > y > -22.7$ と $27.4 < y < 42.6$ において400 nmから徐々に短波長成分から欠けて、水色または青緑色から緑色、黄色、橙色そして赤色に変化し、 $y = -22.7$ と $y = 42.6$ において700 nmの単色の赤色を呈すると考えられる。ただし、 $y < -12.8$ および $y > 26.9$ においては二次回折光の成分も加わる。また、面光源の白色LEDは励起光源の青色LEDの強いピークが450~460 nmに存在するため、この波長を含む位置の光彩は青味が強くなる。

実際にFig. 5の彩度を上げた油滴天目茶碗の写真では、面光源の虚像の端の $y = 0$ と $y = 12.8$ から両側に青色から水色、緑色の順に光彩が変化する。その外側($y < -12.2$ と $y > 27.5$)の油滴は緑が緑色、内部が黄色であり、外側ほど黄色の割合が増える。この現象の説明として、油滴の縁と内部でシワの周期が異なる場合が考えられる。さらに外側($y < -32$ と $y > 43$)の油滴部分は橙色から茶色であ

り、前述のように陶器の地肌が透けていると考えられる。また、左側 ($31 < y < 34$) には2回反射の面光源の虚像がみられる。

以上のように、Fig. 1やFig. 5の油滴天目茶碗の光彩は裏面に金属鉄の反射層がある格子周期 $\Lambda = 900$ nm、深さが50~100 nmの釉薬の二次元の“シワ”構造による回折光(準コヒーレント散乱)と仮定しても矛盾しないことから、面光源の近傍にみられる青紫色の光彩を説明できる。なお、釉薬による長波長の吸収も光彩が青く見える一因であると考えられるが、定量的な議論は困難である。

おわりに

従来、曜変の光彩は金属酸化皮膜等の高反射率の薄膜干渉と考えられてきた¹⁻³⁾。Fig. 2の木葉天目茶碗(吉州窯)などは薄膜干渉の光彩の特徴と一致する。しかし、曜変天目茶碗に関する先行研究の文献を調査の過程で釉薬の表面に形成された二次元の“シワ”の電子顕微鏡画像⁴⁾を目にして、二次元の“シワ”の回折による光彩について検討した。まず、Fig. 3のような裏面に反射層を持つ透過型正弦波回折格子のモデルを構築し、格子周期 $\Lambda = 600$ nmと700, 800 nmの正弦波回折格子についてRCWAによる数値計算を行い(Fig. 4)、反射層をもつ透過型回折格子は反射層がない場合と比較して反射の回折効率が大きく向上することを確認した。次にFig. 1の彩度を上げたFig. 5の国宝油滴天目茶碗の写真に写った面光源の虚像から照明と茶碗、カメラの位置関係(Fig. 6, Fig. 7)を求めて、Fig. 7において $\Lambda = 900$ nmの回折光の位置を計算した結果(Table 2)が、写真にみられる青緑色の光彩の位置(Table 1)とほぼ一致した。

さらにFig. 3のような裏面に反射層を持つ $\Lambda = 900$ nmの透過型正弦波回折格子についてRCWAによる数値計算を行った回折効率(Fig. 8)、および二次元の“シワ”構造によって回折光が円錐状に伝搬することによる長波長の回折光の拡散から予想される回折光強度から、Fig. 7のy軸上における回折光の色を見積もった。このFig. 7のy軸上における回折光の色と、Fig. 5の写真の光彩の色や先行研究の記述¹⁻³⁾と矛盾せず、曜変の反射光を中心とした青色の量のような光彩や油滴(反射層)がない黒釉部分の弱い光彩を説明できることがわかった。

国宝の曜変天目茶碗や油滴天目茶碗などを、研究者が適切な照明のもとにおける写真撮影や分光計測などを行うことは困難であり、先行研究や既存の写真から曜変の光彩を推測するのみである。この作業はパズルを組み立てるように楽しいが、実物を測定して答え合わせを行いたい。

天目茶碗の光彩の調査のきっかけをいただいた、写真家の西川茂氏および(株)栗原工業の坂口弘明代表取締役と高野純一氏に感謝する。今回の研究のきっかけは、西川氏が国宝の油滴天目茶碗を撮影した際に(株)栗原工業製のLED面光源:L・エコライトを照明に使用すると、国宝の油滴天目茶碗や重要文化財の木葉天目茶碗の彩色が鮮やかであることに気づいたことによる。(株)栗原工業の依頼を受けて、筆者らは天目茶碗の彩色と照明の関係を調査することになった。理化学研究所の山形豊チームリーダーには曜変に対する有用なコメントと本論文の作成を後押ししていただいた。

文 献

- 1) 山崎一雄: 東洋陶磁, **4** (1974-1977) 35-40.
- 2) 山崎一雄: 金沢大学考古学紀要, **21** (1994) 169-172.
- 3) 出川哲朗: 科学と教育, **64** (2016) 口絵 19, 296-297.
- 4) 長江惣吉, 福嶋喜章: 東洋陶磁, **41** (2011) 35-45.
- 5) 大阪市立東洋陶磁美術館: 収藏品画像オープンデータ. https://jmapps.ne.jp/mocoor_o/det.html?data_id=25 (2023年5月15日閲覧).
- 6) 大阪市立東洋陶磁美術館: 収藏品画像オープンデータ. https://jmapps.ne.jp/mocoor_o/det.html?data_id=44 (2023年5月15日閲覧).
- 7) 文化庁: 禾目天目-文化遺産オンライン. <https://bunka.nii.ac.jp/heritages/detail/527770> (2023年5月15日閲覧).
- 8) T. Asakura: *Neurol. Med. Chi.*, **40** (2000) 244-246.
- 9) 勝山広樹, 岡本信吾: 色材, **63** (1990) 281-289.
- 10) A. E. Seago, P. Brady, J.-P. Vigneron and T. D. Schultz: *J. R. Soc. Interface*, **6** (2009) S165-S184.
- 11) 菅野明宏, 宮口孝司, 山田敏浩, 小林泰則: 新潟県工業技術総合研究所研究報告書, **51** (2022) 118-121.
- 12) AGC: 回折光学素子(DOE)・ガラス拡散板. https://www.agc.com/products/electronic/detail/doe_and_diffuser.html (2023年5月15日閲覧).
- 13) 澤村滋郎: 大日本窯業協会雑誌, **48** (1940) 105-110.
- 14) 澤村滋郎: 大日本窯業協会雑誌, **48** (1940) 168-171.
- 15) P. B. Johnson and R. W. Christy: *Phys. Rev. B*, **9** (1974) 5056-5070.
- 16) 津坂和秀, 長坂克巳: 窯業協会誌, **95** (1987) 676-681.
- 17) 小寺宏暉: 日本画像学会誌, **43** (2004) 73-81.
- 18) 久下靖征: 色材, **56** (1985) 591-593.
- 19) 田中由理: “施釉陶器色調計測の基礎的研究”, 科研費16K16950研究成果報告書(2019).