

令和 4 年 5 月 11 日現在

機関番号：50101

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K01130

研究課題名（和文）古銭や青銅製品の残留応力や組成の特徴から製作年・地域・集団を分類する研究

研究課題名（英文）Research to classify the year, region, and group of production based on the characteristics of residual stress and composition of old coins and bronze products

研究代表者

小林 淳哉（Kobayashi, Junya）

函館工業高等専門学校・物質環境工学科・教授

研究者番号：30205463

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：青銅銭の鑄造・加工方法の違いは、金属の残留応力や金属状態（粗大化）の違いとして現れることを明らかにした。これらの情報は同一の鑄造や加工技術を持つ地域や技術者集団の特徴を分類する指標となり得る可能性を意味し、文化的・技術的交流や技術伝承など検討するためのデータを与えることが可能になる。

寛永通寶に含有する主成分および不純物元素の濃度や古銭の各所のサイズを用いて階層クラスター分析したところ、鑄造地と時代が共に近い古銭は近接するクラスターに属した。さらに、永楽通寶の非階層クラスター分析では2つのクラスターに分類でき、中国および日本を鑄造地とする違いである可能性も示唆できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

古銭の分類に当時の「鑄造・加工技術」を取り入れることができる可能性を示すものである。地域や時代により技術がどう伝承されていったかを検討する切り口となりうる。

永楽通寶は近年、中国のみならず日本でも鑄造されていた可能性が示されているが、元素分析に加え古銭の各所のサイズや質量などを加えて非階層クラスター分析（機械学習）させることで、2つのクラスターに分類でき、これらが鑄造地の違いを意味するかさらなる検討の道筋をつけることができた。結晶状態や残留応力を組み合わせることで永楽通寶の技術分類ができれば、それが中国と日本の違いということになる可能性もある

研究成果の概要（英文）：This study reveals that differences in casting and processing methods of bronze coins manifest themselves as differences in metallic residual stress and metallic crystal growth. This finding may serve as an indicator for classifying the characteristics of regions and groups of technicians with the same casting and processing techniques, and may be a method for providing data for examining cultural and technological exchange and technical transmission. Hierarchical cluster analysis using the concentrations of main and impurity elements contained in the Kanei Tsuho and the sizes of various parts of the ancient coins revealed that ancient coins that were close to both the minting location and period belonged to clusters in close proximity. In addition, non-hierarchical cluster analysis of the Eiraku Tsuho coins showed that they could be classified into two clusters, suggesting that the difference may be due to their minting locations in China and Japan.

研究分野：化学分析

キーワード：青銅銭 残留応力 結晶成長 階層クラスター分析 非階層クラスター分析 機械学習 鑄造技術 結晶の粗大化

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

金属器、ガラス玉など出土遺物の元素分析を通して、当時の製造技術等を推定し、文化的・経済的な交流を明らかにしようとする研究がある。同一の原料組成でも一見して刻印がおかしいなど、私鑄銭の可能性が高いものがあり、寛永通寶など国内に複数の鑄造地がある場合、同一の組成であっても仕上げ加工などが異なる可能性もある。すなわち化学分析結果を技術的な個性に分類することは困難である。目視鑑定はいわば出来栄品質による識別と言えるが、出来栄を定量的に分析する方法があれば、化学分析(原料品質)と組み合わせて古銭の新たな分類指標にできるはずである。金属科学的な原則から、金属製品にはその製造・加工時に加えた熱や力により結晶の成長状態が異なりさらに残留応力がその内部に存在するのは必然であり、今日の金属材料の品質や物性評価では一般化しているので、古銭の研究にも用いることが可能と考えられる。

2. 研究の目的

結晶成長や残留応力から「用いた鑄型の特徴、製造工程、鑄造や打刻加工の区別、用いた工具の形状」などその後の出来栄につながる技術力に注目したグループ化が可能になり、一種の技術者集団がもつ独自技術を、目視からの出来栄鑑定ではなく、残留応力としての定量値であらわすことができると考えた。これは、今日でも金属製品は同形であっても各企業での製造方法が異なると整品内部の残留応力の分布は異なることから明らかである。したがって、結晶成長や残留応力による分類と、元素分析による組成分類や伝統的な鑑定眼(書体、各所のサイズ等)を組み合わせれば、時代と技術の関連から新たな歴史科学的なアプローチの手法を提案できると考えた。このため、古銭の鑄造加工技術の履歴が現れるかを結晶学的に検討することと、これまでの元素分析による分類をクラスター分析により再構築し、グループ化することを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 古銭の結晶学的検討

寛永通寶、永樂通寶、開元通寶を対象とした。古銭の結晶状態と残留応力の測定はX線回折装置(Rigaku SmartLab)による非破壊分析を図1の位置に対して行った。X線源はCuK α 線(管電圧40 kV、管電流20 mA)で、多層膜ミラーを用いて照射X線の直径を0.5 mmとした。検出器は2次元半導体検出器(PILATUS 100K)を用いた。露光時間を600秒として回折環(デバイ環)を取得した。

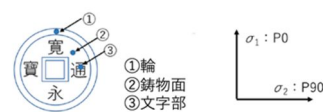


図1 古銭の測定点と応力方向

残留応力は2次元検出器を用いて取得したデバイ環から表面残留応力を評価する2D法で評価した。2D法では平面および3軸応力状態を評価できるが、2が低角度の領域では、試料に対するX線進入深さが約1.0 μm であることから、厚み方向の応力は0と仮定した平面応力状態として取り扱った。また、古銭の微細金属組織は不均質であり表面の粗さも均質ではないため、残留応力は2次元回折像を角度(2 θ)対X線強度の1次元回折図形に変換して $2\theta - \sin^2\psi$ 線図を描いて算出した。残留応力については鈴木らの方法を参考にしている(鈴木賢治ほか、材料63(7),527-532(2014))。

(2) クラスター分析

寛永通寶と永楽通寶についてそれぞれ階層クラスター分析と非階層クラスター分析を行った。寛永通寶の約 300 枚は階層クラスター分析した。その内訳は、古寛永通寶、新寛永通寶は背文字が「文」の文銭、背文字がそれぞれ「元」「足」「小」「佐」「長」の大阪、足尾、東京（江戸小梅村）、佐渡、長崎で鑄造されたもの、背文字なし、そして真鍮銭（二十一波銭）である。元素分析は携帯型のエネルギー分散型蛍光 X 線分析装置（Niton XL3t）を用い、銅、スズ、鉛と、真鍮銭もあるため亜鉛、さらには不純物としての鉄について定量した。測定場所は、古銭の表面の「寛永通寶」の各文字部と同位置の裏面の合計 8 箇所である。また、サイズ測定は 3D スキャナ（キーエンス VR-3000）を用いて輪内径の縦横、郭外径の縦横、郭内径縦横のそれぞれの平均を算出した。以上の元素分析およびサイズ測定位置は図 2 に示した。また質量は電子天秤で測定した。すなわちクラスター分析の因子は、元素濃度として 5 次元、サイズ情報 7 次元、質量の合計 13 次元である。階層クラスター分析はクラスター間の距離を最長距離法で求めて進め、デンドログラムで可視化してクラスター間の関係を考察した。

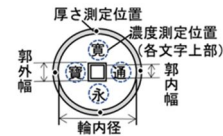


図2 古銭の元素分析とサイズ測定位置

永楽通寶は近年日本でも鑄造されていたことを示す枝銭など見つかったが、日本で鑄造されたという最終的な結論には至っていない。鑄造地が明らかな古銭があれば、それと比較することで類似性を可視化していく階層クラスター分析を用いることも可能であるが（教師あり学習）、鑄造地が確定していないので困難である。このため教師なし機械学習として非階層クラスター分析の一つである k-means 法で分類した。このため約 200 枚の永楽通寶（北海道知内町涌元遺跡出土）について寛永通寶同様に元素分析と質量測定した。ただし古銭のサイズは輪内径の縦横の平均値のみを用いた。したがって、濃度 4 次元、質量、輪内径の平均の 6 次元である。k-means 法ではあらかじめいくつのクラスターに分類するかを決定する必要があるが、このためにエルボー法を用いた（Kodinariya, T. M. and Makwana, P. R. 2013 “Review on degerming number of cluster in K-means clustering” International Journal of Advance Research in Computer Science and Management Studies, Vol.1, No.6, pp.90-95.）。さらに k-means 法で分類されたクラスターは、次元削減(PCA)により 2 次元データの散布図として可視化した。

4. 研究成果

(1) 結晶状態

図 3 は図 1 中の輪部()の X 線回折像である。寛永通寶の 2D 像はほとんどが連続した回折環になっているが、これは表面層に均質な微細結晶が存在することを反映している。一方、永楽通寶では各回折環の明るさが均一ではない。これは表面に加工集合組織が形成され、結晶異方性が存在していることによると考えられる。粗大な結晶が存在していると、回折環の中に明るい斑点が現れるが、寛永通寶と永楽通寶の 2D 像にはそうした斑点が確認できないので、結晶の粗大化は起こっていないと考えられる。

一方、開元通寶では回折環の中に明るい斑点が確認できるので、粗大結晶が古銭の表面部に存在していること示している。図 4 は寛永通寶について、図 1 の と の部分を分析した結果である。文字部()の回折像は図 2 に示した寛永通寶の輪部とほぼ同じ結晶状態であり、表面層に均質な微細結晶が存在する。しかし、 の鑄物部は回折環に明るい斑点が現れ、粗大結晶が多く含

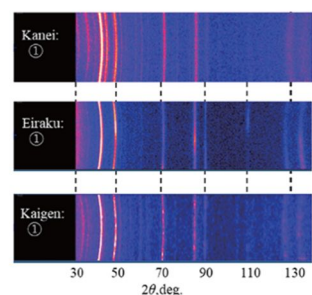


図3 古銭輪部の2D回折像
上から寛永通寶、永楽通寶、開元通寶

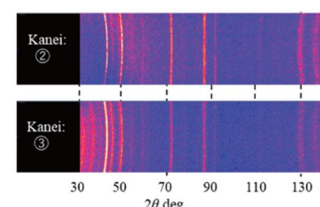


図4 寛永通寶の2D回折像
上：鑄物部、下：文字部

まれていることを示している。の傾向は永楽通寶および開元通寶も同じであった。これらの結果から、各古銭の鑄物部には鑄造による粗大結晶が形成されており、鑄造後の仕上げ過程における研削加工により加工変質層が表面に形成されていることがわかる。X線の表面からの侵入深さが古銭の種類によらず同じと考えると、開元通寶は他の2つに比べて加工変質層の厚みが小さいことになり、研削加工の程度が少ないことを反映している可能性もある。すなわち、鑄造による熱履歴と仕上げ加工の違いは、結晶の粗大化が起こっている層や変質層の厚みの違いから区別できる可能性がある。

古銭の結晶組織を評価するため、2次元回折像を角度(2θ)対X線強度の1次元回折図に変換してICDDカードにより定性分析した結果を図5に示した。永楽通寶と開元通寶はCu_{0.952}Sn_{0.068}[PDF No. 01-071-7874]の組成のCu-Sn結晶と推定されるが、強度の小さい回折線も複数確認でき、別の結晶層もまた共存する。永楽通寶では111回折線が非常に強くなっているが、Cu-Sn合金はCuを基本とする面心立方格子であり、この場合塑性変形におけるすべり面が(111)面となる。したがって永楽通寶では鑄造後の研磨加工により[111]軸の集合組織を有することになったと考えられ、回折線が111面で強く検出されていた実験結果を裏付けている。このように結晶の定性と結晶面の回折ピークから加工の履歴を確認できる可能性を示したが、強度が小さく定性が困難な回折線も多く確認できたことから、他の結晶面の形成も考えられる。さらにPbやその他の不純物元素がCu-Sn層に拡散することでの回折ピークのずれなども想定されるので、今後さらに検討する必要がある。

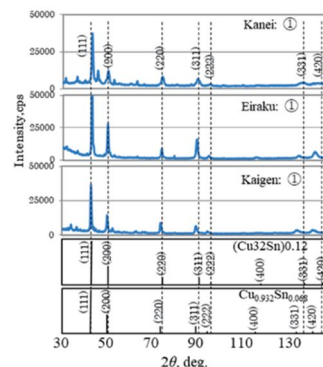


図5 各古銭の輪部からのXRDパターンと定性分析結果

(2) 残留応力評価

各古銭の220、311、222、331、420の各回折線から残留応力を評価した。評価にはX線の弾性定数が必要だが、実測されていないため、青銅(Cu-Sn)合金のヤング率(98.0 GPa)、純銅のポアソン比(0.34)を用いて算出した。計算した残留応力を表1に示した。なお数値に下線を引いてあるのはデータのばらつきが大きく信頼性が低いと考えられる値である。寛永通寶では220、311、222回折では約-240~280 MPaの圧縮残留応力が存在している。また軸方向(P₀の1方向とP₉₀の2方向)の数値がほぼ同じなので、等2軸応力状態であることがわかる。永楽通寶では図3の結晶状態の解析から、加工集合組織を有していたので、せん断残留応力の存在が考えられる。P₀とP₉₀方向の数値にも大きな違いがあることも加工集合組織の影響と考えられる。開元通寶は220回折では約-360 MPaの等2軸の圧縮残留応力となっているが、311回折ではP₀とP₉₀で数値が大きく異なる。開元通寶には粗大結晶粒が多く加工変質層の厚みも薄いことが図3からわかっている。このためX線侵入深さが浅い311回折線(2θ=87.7°)のような低角度での回折ピークにおいても粗大結晶粒の影響を受けていると考えられる。

表1 各古銭の輪部から得られた回折線からの残留応力

Direction	Residual stress of each (hkl) diffraction, MPa				
	(220)	(311)	(222)	(331)	(420)
P ₀ (σ ₁)	-235.1	-257.1	-228.7	-91.7	-204.0
P ₉₀ (σ ₂)	-240.0	-281.6	-222.9	<u>-121.2</u>	<u>-158.6</u>

Direction	Residual stress of each (hkl) diffraction, MPa				
	(220)	(311)	(222)	(331)	(420)
P ₀ (σ ₁)	-210.2	-269.6	-155.0	<u>-89.2</u>	<u>-156.6</u>
P ₉₀ (σ ₂)	-126.9	-259.1	-148.3	<u>-98.3</u>	<u>-184.2</u>

Direction	Residual stress of each (hkl) diffraction, MPa				
	(220)	(311)	(222)	(331)	(420)
P ₀ (σ ₁)	-353.5	-137.4	<u>-118.1</u>	<u>-76.0</u>	<u>-3.9</u>
P ₉₀ (σ ₂)	-366.6	-253.7	<u>-103.6</u>	<u>-101.1</u>	<u>-168.7</u>

以上の結果から、異なる鑄造古銭についてX線回折による結晶状態の違いや残留応力の違いが現れ、その違いによって分類が可能になることを明らかにした。結晶状態や残留応力は同一種古銭であっても鑄造条件や加工方法に大きく依存する。言い換えれば、同一古銭であっても鑄造条件や加工方法が異なると結晶状態や残留応力の違いが現れることになり、結果として鑄造

地や同じ技術を持つ集団に依存した特徴として分類できる可能性があることを明らかにできた。今後は多くの古銭に対してデータを蓄積し、分類精度を向上させていくことも必要である。

(3) 寛永通寶の階層クラスター分析の結果

図6に約300枚の寛永通寶の階層クラスター分析結果のデンドログラムを示した。クラスター境界はクラスター数が9になる位置とした。また表2には9つのクラスターへの古銭の内訳を示した。新寛永通寶には背文字で鑄造地が識別できるものと背文字がなく鑄造地が一見してわからないものを含む。クラスター3と6は真鍮銭である新寛永通寶（二十一波銭）のみで構成された。このように同一の銭種がはっきりと二つのクラスターに分かれていることから鑄造時期や時代による違いを反映していると推定できる。背文字から鑄造地が識別できる銭は、大阪がクラスター1、佐渡がクラスター2、足尾と東京小梅がクラスター5、そして長崎がクラスター8に分類された。東京小梅での鑄造は1737年頃、足尾での鑄造は1741年頃とされているが（日本貨幣カタログ：2020）、立地や時代が近いので技術的なつながりの近さを反映している可能性がある。クラスター1には1741年頃に大阪で鑄造された新寛永通寶が、クラスター8には1767年頃に長崎で鑄造された新寛永通寶が含まれているが、クラスターが最も離れていることから、関係性は薄い。各クラスターの特徴を結晶状態や残留応力の特徴として関連付けることで、鑄造地間の鑄造・加工技術の関係性という技術的関係性がわかると考えられる。

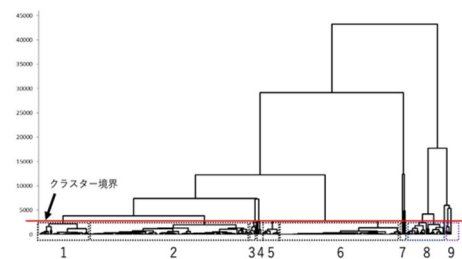


図6 寛永通寶の階層クラスター分析によるデンドログラム表示

表2 各クラスターの古銭の内訳

クラスター番号	古寛永	新寛永 (背無し+背有り)	新寛永 (真鍮)	新寛永 (文銭)
1	22	5	0	11
2	48	3	0	70
3	0	0	7	0
4	2	0	0	1
5	9	4	0	1
6	0	0	93	0
7	1	1	0	1
8	18	2	0	9
9	2	0	0	4

(4) 永楽通寶の非階層クラスター分析（k-means法）の結果

k-means法ではあらかじめクラスター数を決定する必要があるため、図7に示したようにエルボー法で残渣平方和の変化を調べたところクラスター2の位置に変曲点があることができた。そこでクラスター数2としてk-means法で非階層クラスター分析し、その後次元削減して散布図にした結果を図8に示した。2つのクラスターの特徴として、各因子の重みをレーダーチャートで表すと図9のようになる。クラスター1では銅濃度が高く、鉛濃度や不純物としての鉄濃度が低い。一方、クラスター2はその逆の傾向になっている。また、スズ濃度、輪内径、重量はそれぞれのクラスター間で大きな差はなかった。各クラスターがそれぞれ中国および日本で鑄造されたものに対応しているか確認するには、各クラスターを構成する古銭の結晶状態の解析や残留応力分析なども対応させることが有効と考えられるので、今後これを進める予定である。

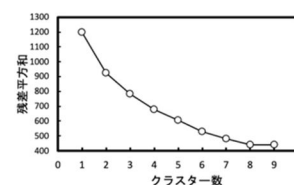


図7 エルボー法によるクラスター数の決定

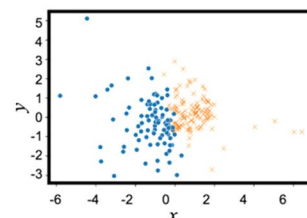


図8 k-means法の結果を次元削減した散布図

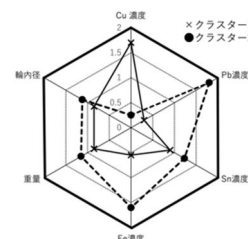


図9 各因子の影響のレーダーチャート

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 MATSUE Tatsuya, TAKAHASHI Eko, KOBAYASHI Junya, NAKAMURA Kazuyuki, YAMADA Makoto	4. 巻 71
2. 論文標題 Evaluation of Crystal State and Residual Stress in the Work-Affected Layer of the Casting Old Coin	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Society of Materials Science, Japan	6. 最初と最後の頁 374 ~ 380
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2472/jsms.71.374	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Matsue Tatsuya , Takahashi Eko , Kobayashi Junya, Nakamura Kazuyuki, Yamada Makoto	4. 巻 55
2. 論文標題 Evaluation of crystal state and residual Stress in the work hardened surface layer of the copper-based casting coin	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Proceedings of the Symposium on X-Ray Studies on Mechanical Behaviour of Materials	6. 最初と最後の頁 8~11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 E.Takahashi, T.Matsue, J.Kobayashi, K.Nakamura, M.Yamada	4. 巻 2021
2. 論文標題 Evolution of X-ray residual stress in the surface-treated layer of bronze castings	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Digest (Extended abstract) for the Award for Encouragement of Research in the 31st Annual Meeting of MRS-J	6. 最初と最後の頁 M-P14-005
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 小林 淳哉, 松英 達也, 山田 誠, 中村 和之
2. 発表標題 鑄造青銅銭の鑄造地のつながりの推定のためのクラスター分析
3. 学会等名 日本文化財科学会第38回大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松英 達也,高橋 慧光,小林 淳哉,山田 誠,中村 和之
2. 発表標題 銅系鑄造錢の加工変質層における結晶状態と残留応力評価
3. 学会等名 日本材料化学会第55回X線材料強度に関するシンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 E.Takahashi ,T.Matsue ,J.Kobayashi ,K.Nakamura ,M.Yamada
2. 発表標題 Evolution of X-ray residual stress in the surface-treated layer of bronze castings
3. 学会等名 日本MRS第31回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高橋 慧光,松英 達也,小林 淳哉,山田 誠,中村 和之
2. 発表標題 銅錢の結晶状態と残留応力に関するX線の検討
3. 学会等名 日本材料科学界第70期学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 福井彰太,松英 達也,小林 淳哉,山田 誠,中村 和之
2. 発表標題 銅系古錢の分類における残留応力の活用に関する研究
3. 学会等名 日本材料科学会四国支部第29回講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小林淳哉、松英達也、山田 誠、中村和之
2. 発表標題 元素分析と残留応力から見た青銅貨の分類に関する研究
3. 学会等名 日本文化財科学会第37回大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松英達也、小林淳哉、中村和之、山田 誠
2. 発表標題 Cu 系古銭の残留応力評価に関する研究
3. 学会等名 日本材料科学会第69期学術講演会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	山田 誠 (Yamada Makoto) (20210479)	函館工業高等専門学校・生産システム工学科・教授 (50101)	
研究 分担者	松英 達也 (Matsue Tatsuya) (60270352)	新居浜工業高等専門学校・環境材料工学科・教授 (56301)	
研究 分担者	中村 和之 (Nakamura Kazuyuki) (80342434)	函館工業高等専門学校・一般系・特命教授 (50101)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------