

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 10 日現在

機関番号：12606

研究種目：基盤B 一般

研究期間：2009年度～2012年度

課題番号：21320035

研究課題名（和文）ラピス・ラズリ青色釉薬実現に向けての研究

研究課題名（英文）Research on the practical application of lapis lazuli to the ceramic blue glaze

研究代表者

豊福 誠 (TOYOFUKU MAKOTO)

東京芸術大学・美術学部・教授

研究者番号：30227665

研究成果の概要（和文）：ラピス・ラズリ原石の選別と粉碎、粉碎粉から高純度青色顔料の抽出を初年度に行った。同時に始めた粉碎粉による陶磁器素地への焼き付け試験と分析の試験結果を踏まえ、釉薬としての発色維持の可能性を22、23年度にかけて探った。その結果、高火度釉への応用は出来なかったが、低火度釉薬として安定した釉調と発色の釉薬を完成し、最終年度に陶磁器作品への展開と成果報告展として研究を締め括った。

研究成果の概要（英文）：This research was based on technical experiments and the analysis of the firing tests for practical application of grinded lapis lazuli to the ceramic glaze material. At the first fiscal year of the project, a high-purity blue pigment was extracted from powdered lapis lazuli which was sorted and grinded from a rough gemstone. Then, an investigation into the possibility of color development in firing process was conducted from the Heisei 22 to 23.

As a result, low-temperature lapis lazuli glaze characterized by stable texture and color development was completed. On the other hand, the studies clarified the fact that the material was not applicable to high-temperature ceramic glaze. The low-temperature lapis lazuli glaze was developed and applied to ceramic works. The final outcomes were presented at the exhibition as a research accomplishment report at the final fiscal year of the project.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	7,300,000	2,190,000	9,490,000
2010年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2011年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2012年度	2,300,000	690,000	2,990,000
年度			
総計	12,000,000	3,600,000	15,600,000

研究分野：人文学

科研費の分科・細目：芸術学・芸術史・芸術一般

キーワード：ラピス・ラズリ 青色釉薬 無鉛低火度釉

1. 研究開始当初の背景

古来から珍重されてきた半貴石のラピス・ラズリは、古王朝エジプトの黄金マスクに代表されるように多数の用例が認められている。また、イスラ

ム文化圏においては、陶器やタイルに青色釉薬による焼き付けが古くよりみられるが、ラピス・ラズリの陶器等への焼き付け例は、世界の美術史上認められていない。絵画への使用例は、6～7世

紀のパーミヤンやキジルの壁画に多く確認できるが、顔料としてのラピス・ラズリの使用は、この時代以後、極東アジアでは殆どなく、中東より西欧に於いて大きな拡がりを見せる。他の青色顔料に比べ物質的に安定し、圧倒的な透明性を示すウルトラマリン青は、その希少価値と共にシンボル化し、更にブランド化した背景を持っている。しかし、1824年ギメの人工ウルトラマリンの発明により、ラピス・ラズリから精製する天然ウルトラマリン青は美術史上から姿を消し、現在では、幻の顔料になっている。

ラピス・ラズリを精製して得られる天然瑠璃顔料の産学共同調査研究（ホルベイン工業株式会社、07～08）においてラピス・ラズリ顔料の対温度性が明らかになり、準備研究として釉薬・焼成法の可能性を研究室独自に進めている。天然顔料の多くは温度による物性の変化が著しく、数百度で黒変化・無色化してしまう。ラピス・ラズリにおいては、溶解しても特定の条件において釉薬化することが判明した。他の天然顔料同様に、ラピス・ラズリ原石そのものを焼成した場合には黒色・茶色化するが、ラピス・ラズリ高純度青色顔料そのものを釉薬化することで現われる色彩は、透明性から不透明性の広い幅と物質性を備え、釉薬におけるこれまでの青の色彩領域になかった特性を示すものである。偶然ともいえる条件において現われたラピス・ラズリ青色釉薬の組成および組成環境を本研究において明らかにし、「ラピス・ラズリ青色釉薬実現に向けての研究」と題して、ラピス・ラズリ焼成法の確立に向けて調査研究を行った。

2. 研究の目的

本研究は、美術史上に存在しなかった、陶磁器色材としてのラピス・ラズリの可能性を探るものであり、陶磁器におけるラピス・ラズリ焼成法の研究、絵画顔料としての高純度青色顔料抽出において、焼成による可能性を探ることを目的としている。

この研究に成功すれば、陶芸界における世界初のラピス・ラズリ焼成法が確立されるとともに、陶磁器の色彩に新たな青の領域を構築することになる。また、幻の色彩を復活するとともに、すでに失われようとしている素材に新たな表現の可能性を見だし、研究成果を陶芸・絵画作品として社会に発信することは、芸術研究教育活動の社会への貢献とともに、国民の芸術文化への関心を促し、より豊かな文化社会形成への貢献に繋がるであろう。時間や文化を超えた美の価値の共有と、現代の日常生活における新たな青の色彩領域の提唱・発信が、我が国にとどまらず、世界の芸術文化の展開と発展に寄与して行きたい。

3. 研究の方法

本研究にあたっての実質的な課題は、焼成温度・環境とラピス・ラズリの関係性の調査である。研究初期段階では、焼成温度によるラピス・ラズリ基礎情報を構築する計画である。準備研究では、ラピス・ラズリ焼き付けによる、色彩の確保と釉

薬としての可能性を確認したが、焼成法の確立にあたっては、以下の研究課題を明確にする必要性がある。

① 焼き物素地に対する釉薬の固着

素地物性と釉薬固着の関係性を調査することで、器としての使用に耐えられる固着強度を確保するための焼成温度、時間、粘土素材選定を調査する。また、素地と色彩の関係性を調査し、焼き物素地とラピス・ラズリ釉薬に関する基礎資料を作成する。

② 釉薬としての発色維持

ラピス・ラズリは、原石各々に元素比率が異なる可能性が高く、当然焼成時の温度により色分解が起きたり、起きなかつたりすることを準備研究において確認している。先の実験では合成ウルトラマリンが1200℃で色分解があったが、天然ウルトラマリンは色彩を保った。原石は、1200℃で溶解し、1250℃で硫黄分が蒸発し透明に焼き付くことを確認している。天然ウルトラマリンの焼成温度・時間と発色限界を確認し、焼成による色変化を調査研究する計画である。青色純度が、釉薬の色彩表情に与える影響を調査し、透明で彩度の高い色彩からグレー・黒色までの色彩の幅を調査する。「焼成温度・時間」「顔料純度」「顔料濃度」の側面から焼成における発色維持と色彩変化の基礎資料を作成する。

平成21年度計画／ラピス・ラズリ原石基礎調査

・ラピス・ラズリの溶解温度と焼成環境の特定を調査

・ラピス・ラズリ原石選鉱ならびに、チェンニーニ精製法による高純度青色顔料の抽出

・焼き物素地に対する釉薬の固着研究

平成22年度計画／精製ラピス・ラズリ焼成基礎調査

・釉薬としての発色維持研究

・ラピス・ラズリ粉碎粉とチェンニーニ精製法による高純度青色顔料の化学分析

平成23年度計画／焼成法、精製法基礎資料構築

・ラピス・ラズリ焼成法基礎資料構築

・ラピス・ラズリ高純度青色顔料の化学分析による基礎資料構築

・陶磁器におけるラピス・ラズリ焼成法の表現への展開

平成24年度計画／表現への展開

・陶器におけるラピス・ラズリ焼成法の表現への展開

・研究成果展覧会および研究報告会（東京藝術大学アトスペース）

4. 研究成果

① 大西博におけるラピス・ラズリ青色釉薬実現

に向けての研究の実際

2009年5月からの科学研究費のもとでのチェンニーニ法による抽出は、これまでの経験から材料、用具、環境すべてにおいて最適なものを選ぶことができた。チェンニーニ法によるラピス・ラズリ抽出の失敗成功を繰り返し、チェンニーニ法のより精密な手法にたどりついた。これは、約 10

年間の大西博のラピス・ラズリに対する熱意の成果である。平成21年度科学研究費「ラピス・ラズリ青色釉薬実現に向けての研究の報告書(2010年5月28日)」によると、おおよそ次の通りである。原石60kgを、一辺が約0.5cmの立方体に破碎し(写真1)、色相(濃青、貴青、黄青澄)と品質(特上、上、並、雑)による分類をおこない(写真2)、品質が特上のものでは、濃青11kg、貴青12kg、黄青澄11kgが得られ、上品質もの3種が、計21kg得られている。それぞれの原石を200番の篩を通る細かさに粉碎し、焼き付けの際に褐色化を引き起こす要因となる黄鉄鉱を除去した。特上の3種類の色相のものの粉碎粉末化作業と鉄鉱成分の除去作業は、「ナカガワ胡粉」がおこなっている。高純度青色顔料抽出には、イタリア13世紀のチェンニーニ抽出法を採用している。この抽出法は、現在においても天然ウルトラマリンを得るための最も有効な方法として知られており、ヨーロッパ絵画に使用された天然ウルトラマリンのほとんどがこの方法によるものか、もしくはこれを基にしたものである。濃青特上11kgの原石粉から73個のラピス樹脂団子をつくり、3時間ごとに分けた4番絞りをおこなうためには、揉みだし作業総時間数が876時間になる。この抽出によって得られる高純度青色顔料は、原石粉総量の約15%であり、最終的には、1266.41gの高純度天然ウルトラマリンを抽出することができた。(佐藤 一郎)

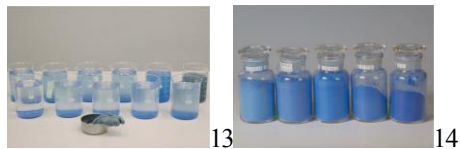
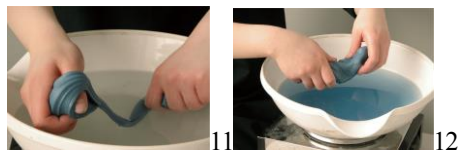
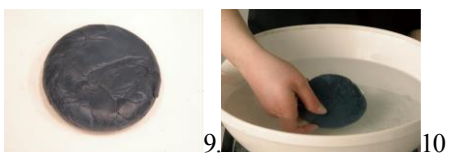
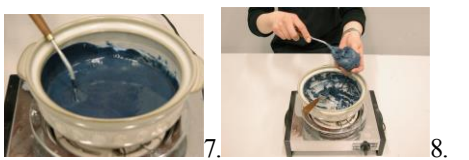
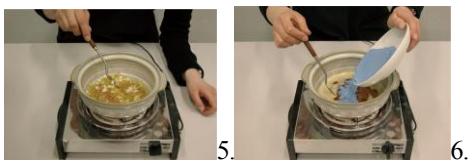
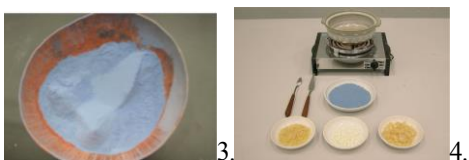
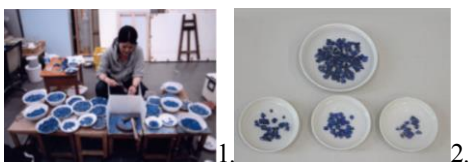


写真3,4ラピスラズリ原石粉、松脂、蜜蝋、マスティック樹脂
写真5,6,7,8土鍋に松脂、蜜蝋、マスティック樹脂を入れゆっくり溶かし、原石粉を入れて混ぜ合わせる。冷めたら団子状にまとめ3日間寝かせる。

写真11,12アルカリ性の灰汁 (pH9~11) の中で揉み解すと顔料が溶け出てくる。

写真13水漥をしながら、沈殿させ粒度の選別をする。

写真14完成したラピス・ラズリ青色顔料

②ラピスラズリ陶磁器釉薬の観察

この試験はアフガニスタンのラピスラズリ原石を粉碎したものが、陶磁器の絵具あるいは着色剤として利用出来るか検討するために行ったものである。そのために、ラピスラズリがどのような鉱物でどのような熱的性質を持っているのかを確認する必要があった。陶磁器の釉薬あるいは絵具に利用される着色剤は、特に熱に対してその発色が安定しているもの、若しくは熱処理によって所望の色が得られる性質が要求される。前者の場合は19世紀西洋における化学の発展に伴って、磁器の下絵具の研究が進み、所望の色を初めから作り出して用いたもので、陶磁器では一般に顔料と云われるものである。また、後者の場合は陶磁器を焼成する過程で、配合された原料同士で化合物或は混合物を生成し、結果的に求める色が得られるものである。この技術は顔料の発明以前から見られ色釉や上絵の具に利用されて来た。紀元前(1504~1348B.C)の頃エジプトのアルカリ釉に銅を用いる青釉がある。後に、低火度の技術は鉛を用いる事を中心にイスラム陶器、ヨーロッパの陶器、中国の陶器、日本の陶器等の釉や上絵等に変転して行く、青釉は当時エジプトにおいて希少の鉱物であるラピス・ラズリやクジャク石等の紫青、緑青の系統の色を得る過程で作られたと考えられている。この数千年の間にラピスラズリ自体を陶磁器に利用して来なかったのは、顔料あるいは絵具として使えない事が分かったからではないかと思われる。勿論、希少岩石であるラピスラズリは当時から大変高価なもので、陶器の原料として扱う事には抵抗があったに違いない。しかし、その他にも技術的な理由が何かあるはずである。そこで、ラピスラズリを陶器の原料として扱った場合の特性について理解を深める為に色の測定、熱分析(DTA, TG), X線回折試験、化学分析を行った。その上で一般的な釉への応用の試験を行った。

各測定試験に供した試料は原石を粗砕し分別した物を夫々粉末にしたものと、チェンニーニ法によって精製したものを用いた。原石の選鉱と粗砕物の分別は大西によって行われた。最初にラピスラズリ原石はその発色を目視で確認して分けられた。その基準は大西の経験によるもので、まず明暗に分け、暗い物についてはその色調を濃青、紫、貴青の三種類とし、明るい物は青澄、澄明の二種類に分けた。その上で、夫々について発色の純度から極上、上等、並の等級に分けられた。これら 13 種の他に、後に脱鉄試料とその残滓が加えられた。また、最初に示した極上の原石も試料に加えた。これら全てに #1~#18 までの通し番号を付した。#14 原石(極上)、#14 粉末(極上)、#15 粗(黄・青澄(極))、#15 細(黄・青澄(極))、#16 脱鉄粗目、#17 脱鉄細目、#18 脱鉄残滓は等級外として扱った。

更に、#19~25 の試料が追加された。これは原石粉砕物を中目、細目の篩に通したもの。初めに与えられた 18 種類の試料については上記の様に試験機器を用いて各種測定を行った。しかし、後から追加された試料については、時間的な余裕がなく、また最初の試験でその特性がある程度理解できたので、全ての試料について同じ試験は行わなかった。最終的に釉に応用するに当たっては #19 粉砕物を使った。

分析試験の結果、ラピスラズリはアルミノ珪酸塩、硫酸塩、硫化物、炭酸塩などの幾種類かの鉱物が共存する複雑な鉱石である事が分かる。その主要な組成鉱物は雲母鉱物とソーダライト、透輝石、鉄化合物である。鉄化合物としては菱鉄鉱、硫化鉄、酸化鉄、鉄スピネル等が観察された。

熱分析(示差熱分析:DTA 熱重量測定:TG.) 曲線の 3 例を次に示す。ラピス・ラズリ原石の加熱特性を熱分析曲線(図 1)で見ると、450~550°C の範囲で僅かな発熱反応とそれに伴う減量が見られ、950°C 付近から始まる緩やかな減量が始まるが、それに伴う吸熱反応が微妙ではあるが見られる。次に 1050°C 付近から始まる緩やかな吸熱と急な減量、更に 1200~1250°C 付近の発熱反応と急激な減量が特徴として現れる。これらの反応はラピス・ラズリの組成鉱物である菱鉄鉱が影響していると考えられる。脱鉄粉砕試料(図 2)では 1000°C 付近からの熱分析曲線に大きな違いはないが、700°C 付近に他の試料とは全く逆の吸熱反応が観察される。脱鉄処理によって、菱鉄鉱の影響が小さくなっていると考え、この吸熱反応は黄鉄鉱の物と考えられる。ラピス・ラズリ原石にはカルサイトグループの菱鉄鉱の他に黄鉄鉱が含まれているのが X 線分析によって確認出来る。チェンニーニ法精製物(図 3)では 250°C 付近に減量を伴う緩やかな発熱反応、次に 640~960°C の間で僅かな減量を伴う緩やかな吸熱反応、1050°C 付近から始まる吸熱反応は急な減量を伴い、1250°C 付近で小さいが鋭い吸熱反応があり、急激な減

量が起る。

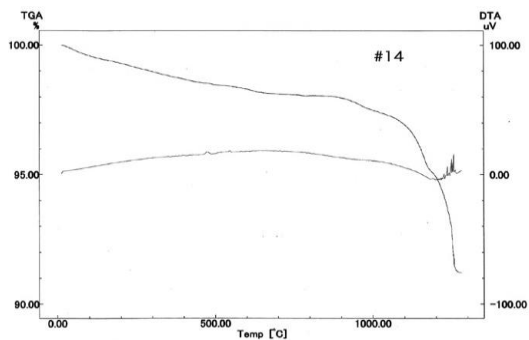


図 1. 最良(極上)原石の DTA・TG 曲線

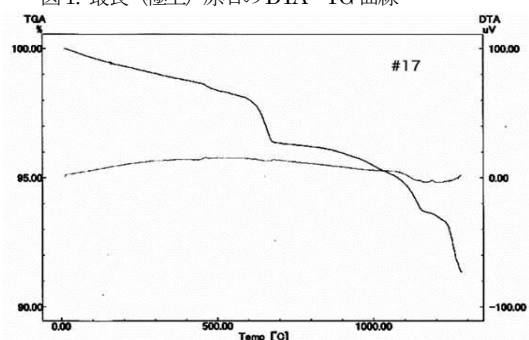


図 2. 脱鉄粉砕(細目)試料の DTA・TG 曲線

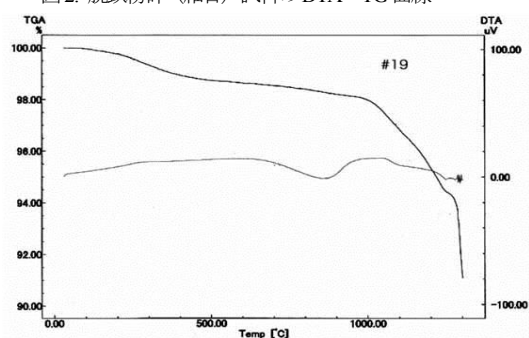
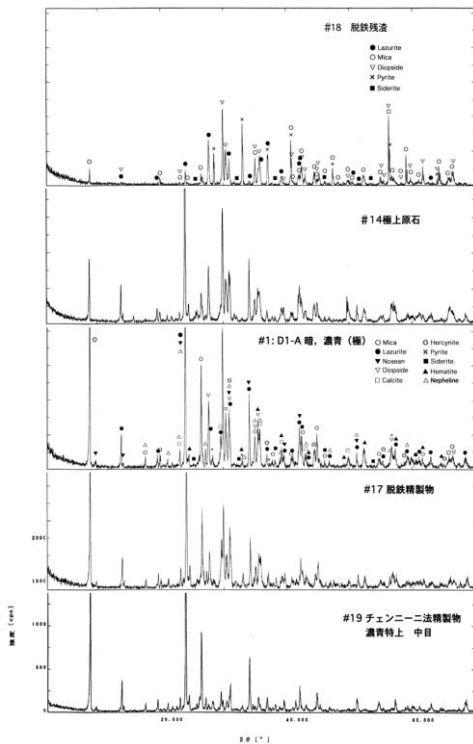


図 3. チェンニーニ 濃青特上(中目)の DTA・TG 曲線

今回は、この様に複雑な鉱物の発色機構の解明を行う方法が良く分からず、ラピスラズリの色について説明出来なかった。しかし、鉄化合物の種類の多さから、その主要な着色元素は鉄によるものである事が考えられる。その他、化学分析から分かる様に微量成分であるクロム、マンガンなども着色元素としてあり、更にハシナイトとの固溶関係も考えられるものである。このような鉱石をそのまま高火度釉の原料として使うために行った試験で、加熱試験はその原料としての利用価値がない事を決定的にした。熱分析試験では 1000°C を越えた辺りから軟化が始まり、1150°C 前後では熔融が始まり、1200°C 辺りで融解して完全に青を失ってしまう事が観察された。その原因の一つとして 1200°C の融解に伴って磁硫鉄鉱の分解が起こる事が考えられる。



ラピス・ラズリ試料のX線回折図形

また、X線で確認される主要成分であるラズライトやノーゼアン等は準長石のソーダライト族の一員で、シリカの量が少ないのが特徴となる。ソーダライトはマグマからの遊離のシリカと反応して出来るもので石英やクリストバライト、トリジマイトなどと共しない事はX線回折図形とも符合する。陶磁器で普通に利用されるアルカリ長石ではソーダライト族よりシリカの量が多い事と石英が共生する事である。この違いは熔融物に顕著に現れ、陶磁器で利用するアルカリ長石は白濁するがラピスラズリは完全に透明なガラスになり、それが着色元素の多くを占める鉄によって薄茶色に呈色する事である。ラピスラズリのこの様な特徴は高火度釉への応用が出来ない事を示すものである。

一方、同時に低火度釉に応用出来る可能性も確認出来た。温度が850°C前後のもので、この範囲の温度であればラピスラズリ特有の色が若干変色をするものの、青に呈色する釉、或いはその粉末を融着させる事が可能である。そこで、低火度釉での利用に焦点を絞って、幾つかの釉を調製しラピスラズリ釉を作る試みを行った。ラピスラズリ低火度釉の応用と試験は豊福によって行われた。はじめに、ラピスラズリを釉焼した磁器にそのまま上絵付の様に850°Cで焼付けてみたが、発色の状態は良好であるが擦ると剥げてしまうものであった。これを改善する為に低火度釉と混合し、上絵具として

のラピスラズリの利用を試みた。硼酸釉が鉛釉に代わるものとして何種類か市販されているので、6種類の無鉛フリットを用いてラピスラズリの発色を確かめた。この試験は、市販品をそのまま用いる場合と、それ等を混合して組成を変えたものについて行った。これらの何れの場合も基礎釉の段階では良好な低火度釉になったので、その中から釉性状の好ましいものを選び、ラピスラズリを添加或いは焼付けた上に施釉した。その結果、ラピスラズリを生のまま添加したり筆で塗りつけただけの場合には釉に発泡痕が残り、焼付けた上に施釉したものではそのような欠点が出難い事が分かった。

このような性質は先の熱分析による加熱特性とも符合するものである。600°C前後の減量を伴う発熱反応と、800°C付近からのブロードな吸熱反応を経て、分解に伴う残留物や分解物が850°C前後で釉成分と反応して発泡する事が考えられた。そこで、実際の使用方法として先に800°C前後で煨焼しておく事と、更に別な方法として850°C前後で直に焼付ける事が良いと思われた。試験に供したラピスラズリは色分けされた原石粉砕物、脱鉄物、チェンニーニ法精製物で、それらについてその時々試験結果に応じて条件を変えながら発色や釉性状を観察した。

ラピスラズリの色を著しく損なわずに定着させる事が出来たのはチェンニーニ精製物で、施釉した磁器よりも白雲陶器素地を締焼した上に直に焼付けたものであった。(滝次陽)

③ラピスラズリ青色釉薬実現への展開

ラピス・ラズリ釉の試験体を使う陶磁器素地と研究成果発表の作品用の素地の選定作業を初年度の準備として行った。当初、高火度域から中火度、低火度域まで対応する素地とし、中・低火度域の素地は、一度高火度焼成(1230~1300°C)した素地にラピス・ラズリ釉を塗布して、もう一度各温域で焼き付けるものとした。ラピス・ラズリ青色釉薬の発色を良好にするため、特に焼き上がりの白さを重視し、香田陶土製のえり上陶土と丸石窯業原料製の白磁50を重量比3対2の割合で混合した坯土と、低火度域で使用するための磁器素地にドロマイトを添加した白雲陶土を用いる事とした。

高火度釉の試験と中火度域での呈色材の試験を初年度より2年間に渡り行ったが、良好な結果を得るに至らなかった事と化学分析結果も踏まえ、低火度域での釉薬の完成を目指す事とした。

低火度釉の調合は、滝次陽の提案により無鉛硼酸バリウム釉と無鉛硼酸釉2種の3種のフリット調整および焼成試験を行った。少量のフリット調整には、小型の試験炉を使い、1200°C、6時間保持で熔融した後、水中に投入急冷してフリット化した。カレット状になったガラスを乾燥し、スタンパー粉砕した後、自動乳鉢で湿

¹ 「鉱物学」森本信男, 砂川一郎, 都城秋穂, p.577. (株)岩波書店 1975, 第1刷。

式研磨して粉末にしたフリットを釉薬試験に供した結果、下記の3種のフリットと脱鉄ラピスラズリ粉末による試験焼成した結果、MB-2系が最も良好な発色を呈した。

- BB系

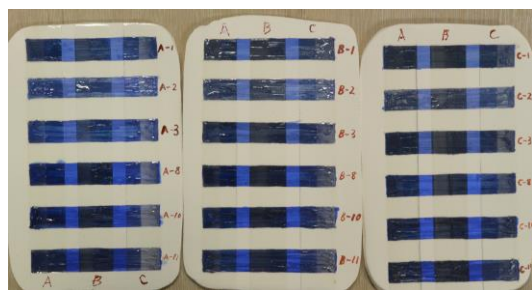
0.20 K ₂ O		
0.30 Na ₂ O	0.20 Al ₂ O ₃	2.2 SiO ₂
0.20 CaO		0.60 B ₂ O ₃
0.30 BaO		
- MB-1系 (SK021:650°C)

0.50 Na ₂ O		1.04 SiO ₂
0.25 MgO	0.02 Al ₂ O ₃	1.00 B ₂ O ₃
0.25 CaO		
- MB-2系 (SK019:690°C)

0.50 Na ₂ O		1.16 SiO ₂
0.25 MgO	0.08 Al ₂ O ₃	1.00 B ₂ O ₃
0.25 CaO		

陶磁器作品の釉薬とするには、フリットをある程度量を多く調整する必要がある。その為、取手第二構地の共通工房にある表面処理工房のフリット窯を使って調整を行った。

無鉛硼酸釉を使った低火度釉の試験を脱鉄ラピスラズリ粉末とチェンニーニ精製法による粉末を使って、その比較を行った所、発色に明らかな違いがあり陶磁器作品への展開はチェンニーニ粉末にしぼって調合試験を進めた。チェンニーニ粉末は大西の選別により粒度の違いと色の違いで、少量づつではあるが5種類に選別されていた。この試料とフリット MB-2系を使ってそれぞれの調合比を変えて試験焼成を行った。その結果、フリットとラピスラズリの混合比2対8(無艶釉)と4対6(艶釉)の調合が、最も良好な釉薬として完成した。



白雲陶器を素地とした試験体



チェンニーニ法によるラピスラズリ粉末

左から7、8、9、10、11



フリット4対ラピス・ラズリ6(艶釉) 白雲素地



フリット2対ラピス・ラズリ8(無艶釉) 磁器素地

6. 研究組織

(1) 研究代表者

豊福 誠 (TOYOFUKU MAKOTO)
東京芸術大学・美術学部・教授
研究者番号：30227665

(2) 研究分担者

佐藤 一郎 (SATOU ITIROU)
東京芸術大学・美術学部・教授
研究者番号：30143639
大西 博 (OONISHI HIROSHI)
東京芸術大学・美術学部・准教授
2011年3月死去

(3) 研究協力者

滝 次陽 (TAKI TUGUHARU)
東京芸術大学・美術学部・非常勤講師
植本 誠一郎 (UEMOTO SEIITIROU)
東京芸術大学・美術学部・非常勤講師
小杉 弘明 (KOSUGI HIROAKI)
ホルベイン工業株式会社・技術部