

# 放射化分析による常滑および渥美出土古陶の分類

河島達郎・上西時司・松野外男

## 1. はじめに

平安、鎌倉、室町時代にかけて、猿投窯の流れをくんだ知多半島の常滑窯と、同時代に海をへだてた半島の渥美窯とは、中世の大窯業地帯としてよく比較される。これらの地域で生産された両古陶の判別は、従来の考古学的手法によれば、比較的容易であるとされている。<sup>1)</sup> にもかかわらず、戦後国宝第一号に指定された有名な「秋草文壺」は、現在では渥美窯の所属として落ち着いているが、<sup>2)</sup> 渥美か常滑かの出生地をめぐる長年の論争<sup>1)</sup>のような問題点もあり、明確な判別は地元の専門家でも、必ずしも容易ではない。

両古陶片の胎土を放射化分析し、地域特性を示す指標元素を探索し、両者の分類をこころみた。

## 2. 実験

### (1) 試料

常滑古陶は陶ヶ峯、有松谷古窯などの出土品8試料と、板山土などの原料4試料を、渥美古陶は大アラコ、惣作、坪沢、大沢、焼下古窯などよりの出土品12試料を用いた。試料の詳細は表1に示した。

### (2) 放射化分析

粉末試料15mg前後を京大原子炉Pn-3において、4分および40分照射した。63cc Ge(Li) 井戸型半導体検出器(Philips社APY58型) - 2000ch PHA (Canberra社8100型) システムにより、 $\gamma$ 線計測をおこなった。

4分照射した試料は、6時間後より検出器の井戸上にて1回、また40分照射した試料は、5日後より検出器の井戸内に入れて、1年後まで数回測定した。 $^{56}\text{Mn}$  ( $T_{1/2} = 2.58 \text{ hr}$ ) より $^{152}\text{Eu}$  ( $T_{1/2} = 12.2\text{y}$ ) までの寿命の核種を利用し、同時照射した標準試料(NBSのSRM-1571, 1577, 1632, 1633および地質調査所のJG-1, JB-1など)をもとに25元素を定量した。

表 1 試料の説明

Table 1. Description of samples

Sample No.	Pottery or clay	Sampling locality (Kiln)	Other
Tokoname			
TNC-1	Clay, Yamatsuchi	Tokoname	
-2	" (white)	Itayama	
-3	" (black)	"	
-4	" Tanotsuchi (Shudei clay)	Tokoname	Sedimentated
TNP-1			
Pottery, Jar		"	Heian-period
-2	" "	"	"
-3	" "	"	Kamakura-period
-4	" Small dish	Tougamine	
-5	" Jar	Arimatsudani	
-6	" "	"	
-7	" "	"	
-8	" Small dish	"	
Atsumi			
AMP-1	Pottery, Small ball	Sousaku	
-2	" "	"	
-3	" "	"	
-4	" Jar	"	
-5	" Jar (red)	Ooarako	
-6	" Jar	"	
-7	" Jar (red)	Tsubosawa	
-8	" Jar (black)	"	
-9	" Jar	"	
-10	" "	"	
-11	" "	Oosawa	
-12	" "	Yakeshita	

### 3. 結果と考察

放射化分析の結果を表2に示した。

総体的に知多半島と渥美半島の原料土は同質であり、<sup>3)</sup> 両者の元素濃度はきわめて類似しており、表2をみただけでは、明確な地域特性を与えるような指標元素を見いだすことは難しい。そこでコンピュータを利用して主な20元素について、全元素間の濃度相関図(190図)を画かせたところ、かなりの重複部分はあるが、相互に分別することの可能性の高い元素がいくつか見いだされた。これらの元素はカルシウム、鉄、コバルト、ルビジウムおよびバリウムなどであった。図1にバリウム-ルビジウム、バリウム-コバルトおよびルビジウム-コバルトの相関図を示した。

表2 試料の分析結果 (ppm)

Table 2. Analytical results of samples (ppm)

Sample No.	TNC-1	TNC-2	TNC-3	TNC-4	TNP-1	TNP-2
Na (%)	0.87±0.08	0.57±0.05	0.28±0.04	0.81±0.04	0.28±0.02	0.30±0.02
K (%)	2.0±0.1	2.2±0.1	1.6±0.1	1.9±0.1	1.7±0.1	1.8±0.1
Ca (%)	1.8±0.1	1.6±0.1	1.6±0.1	1.7±0.1	1.7±0.1	1.9±0.1
Sc	12.5±0.4	6.5±0.2	11.7±0.4	13.3±0.4	13.0±0.4	10.6±0.4
Mn	65±2	265±6	57±2	276±6	96±2	82±2
Fe (%)	1.5±0.1	1.3±0.1	2.1±0.1	3.1±0.2	2.7±0.2	1.1±0.1
Co	8.3±0.3	3.7±0.2	5.2±0.3	9.5±0.4	6.3±0.3	4.8±0.2
Zn	72±7	23±3	49±5	81±8	47±6	38±4
As	3.1±0.9	2.9±0.6	2.7±0.6	7.3±1.2	1.1±0.6	nd
Br	3.1±1.6	2.6±1.2	1.9±1.1	3.9±1.8	2.5±1.4	2.1±1.0
Rb	130±10	120±10	150±10	140±10	130±10	120±10
Sb	1.2±0.1	0.61±0.08	0.69±0.09	1.1±0.1	0.68±0.11	0.71±0.08
Cs	7.6±0.8	4.5±0.5	8.7±0.8	8.0±0.8	9.5±0.9	7.2±0.7
Ba	520±90	580±80	540±90	590±110	580±110	560±80
La	59±2	41±1	51±1	50±1	50±1	43±1
Ce	96±3	64±2	87±3	87±3	80±3	69±2
Sm	7.3±0.1	4.9±0.1	7.4±0.1	6.3±0.1	6.1±0.1	5.5±0.1

Table 2. Analytical results of samples ( ppm )

Sample No.	TNC-1	TNC-2	TNC-3	TNC-4	TNP-1	TNP-2
Eu	1.3±0.1	0.87±0.08	1.4±0.1	1.1±0.1	1.1±0.1	0.99±0.08
Tb	1.2±0.2	0.64±0.12	1.0±0.2	1.0±0.2	0.64±0.14	0.72±0.12
Yb	3.7±0.4	2.9±0.3	3.4±0.4	3.3±0.4	2.9±0.4	2.8±0.3
Lu	0.63±0.09	0.47±0.06	0.52±0.07	0.49±0.07	0.50±0.07	0.54±0.07
Hf	8.5±0.7	10±1	6.5±0.6	5.7±0.5	7.0±0.6	8.3±0.7
Ta	0.92±0.17	0.74±0.13	0.73±0.13	0.84±0.19	1.3±0.2	0.82±0.15
Th	15.9±0.2	10.4±0.2	15.6±0.2	16.9±0.2	19.7±0.3	13.3±0.2
U	3.4±0.4	3.0±0.4	3.5±0.4	3.9±0.5	3.2±0.5	3.2±0.3

nd = not detected

Table 2 ( 2 ) continued

Sample No.	TNP-3	TNP-4	TNP-5	TNP-6	TNP-7	TNP-8
Na (%)	0.71±0.04	0.65±0.04	0.37±0.02	0.35±0.02	0.23±0.01	0.29±0.02
K (%)	1.9±0.1	2.2±0.1	1.6±0.1	1.9±0.1	1.8±0.1	1.8±0.1
Ca (%)	1.9±0.2	1.8±0.2	0.85±0.06	0.72±0.06	0.89±0.07	0.79±0.07
Sc	12.3±0.4	8.4±0.3	6.8±0.3	10.3±0.4	13.2±0.4	9.4±0.3
Mn	141±4	83±4	89±3	118±3	79±3	80±2
Fe (%)	1.5±0.1	1.5±0.1	2.0±0.1	1.3±0.1	2.0±0.1	0.93±0.07
Co	9.0±0.3	4.4±0.2	5.9±0.1	2.9±0.1	5.3±0.1	3.7±0.1
Zn	86±8	34±4	27±3	32±3	45±4	28±3
As	4.0±1.0	nd	nd	nd	1.6±0.6	nd
Br	9.3±2.0	nd	nd	nd	nd	nd
Rb	120±10	120±10	90±8	110±10	120±10	100±10
Sb	0.88±0.12	0.71±0.08	0.52±0.09	0.76±0.11	0.91±0.12	0.75±0.09
Cs	6.5±0.7	5.7±0.6	5.9±0.2	8.2±0.3	9.1±0.3	7.3±0.3
Ba	610±100	630±90	530±60	560±60	560±70	540±60
La	57±2	44±1	41±1	43±1	40±1	36±1

Sample No.	TNP-3	TNP-4	TNP-5	TNP-6	TNP-7	TNP-8
Ce	96±3	74±2	76±3	78±3	74±3	62±2
Sm	8.0±0.1	5.5±0.1	4.9±0.1	5.1±0.1	4.8±0.1	4.6±0.
Eu	1.4±0.1	0.96±0.08	0.79±0.04	0.95±0.05	0.86±0.05	0.83±0.04
Tb	1.0±0.2	0.81±0.13	0.84±0.19	0.66±0.17	1.1±0.2	0.77±0.17
Yb	4.9±0.5	3.0±0.3	1.8±0.2	2.4±0.3	2.3±0.3	2.4±0.3
Lu	0.71±0.09	0.51±0.07	0.34±0.04	0.42±0.05	0.40±0.05	0.44±0.06
Hf	6.3±0.6	12±1	13±2	9.2±1.1	8.3±1.0	13±2
Ta	0.83±0.21	0.80±0.14	2.0±0.4	1.4±0.3	1.6±0.4	1.6±0.4
Th	17.7±0.3	14.6±0.2	15.9±0.2	14.8±0.2	17.4±0.2	12.1±0.2
U	3.8±0.5	4.0±0.4	2.6±0.4	3.0±0.4	3.4±0.4	3.0±0.3

Table 2 (3) continued

Sample No.	AMP-1	AMP-2	AMP-3	AMP-4	AMP-5	AMP-6
Na (%)	0.58±0.03	0.35±0.02	0.36±0.02	0.33±0.02	0.27±0.02	0.26±0.02
K (%)	2.8±0.1	1.9±0.1	1.9±0.1	1.7±0.1	1.6±0.1	1.6±0.1
Ca (%)	1.8±0.1	1.4±0.1	0.68±0.04	0.66±0.04	1.9±0.1	1.2±0.1
Sc	10.3±0.4	12.2±0.4	10.2±0.4	10.4±0.3	14.4±0.5	10.0±0.3
Mn	81±3	90±2	77±2	77±2	99±3	155±3
Fe (%)	1.0±0.1	2.0±0.1	1.3±0.1	1.5±0.1	2.3±0.2	1.9±0.1
Co	4.1±0.2	5.0±0.3	3.9±0.2	3.9±0.2	6.7±0.2	6.9±0.3
Zn	30±4	41±6	31±5	31±5	46±5	34±6
As	1.1±0.5	1.2±0.5	nd	0.94±0.36	6.6±0.9	5.4±0.8
Br	nd	nd	nd	nd	nd	nd
Rb	87±10	96±9	88±7	92±8	130±10	99±9
Sb	0.50±0.07	0.69±0.07	0.43±0.08	0.43±0.07	0.73±0.08	0.66±0.07
Cs	59±0.6	6.9±0.6	5.1±0.5	5.5±0.5	7.9±0.8	5.3±0.5
Ba	470±70	450±80	470±60	470±60	370±70	480±70

Table 2. (3) continued

Sample No.	AMP - 1	AMP - 2	AMP - 3	AMP - 4	AMP - 5	AMP - 6
La	32±1	35±1	30±1	31±1	53±1	27±1
Ce	57±2	64±2	51±2	66±2	92±3	59±2
Sm	4.1±0.1	4.2±0.1	3.3±0.1	3.5±0.1	6.8±0.1	4.9±0.1
Eu	0.85±0.08	0.96±0.11	0.90±0.11	0.99±0.10	1.2±0.1	1.1±0.1
Tb	0.69±0.12	1.1±0.3	0.50±0.16	0.51±0.16	1.0±0.2	0.80±0.22
Yb	2.0±0.2	1.8±0.2	1.4±0.1	1.5±0.1	2.9±0.3	2.0±0.2
Lu	0.36±0.05	0.33±0.04	0.30±0.04	0.19±0.03	0.63±0.09	0.52±0.06
Hf	6.2±0.5	6.3±0.7	6.5±0.7	6.7±0.7	5.6±0.6	6.5±0.8
Ta	0.52±0.12	1.5±0.4	1.1±0.4	1.1±0.3	0.98±0.17	0.95±0.30
Th	11.6±0.2	13.2±0.3	9.7±0.2	10.7±0.2	18.9±0.3	12.4±0.2
U	2.5±0.3	3.3±0.3	3.2±0.4	3.0±0.3	3.8±0.4	3.3±0.3

Table 2. (4) continued

Sample No.	AMP - 7	AMP - 8	AMP - 9	AMP -10	AMP -11	AMP -12
Na (%)	0.22±0.01	0.22±0.01	0.43±0.02	0.30±0.02	0.51±0.03	0.31±0.02
K (%)	1.7±0.1	1.5±0.1	1.4±0.1	1.8±0.1	1.5±0.1	1.8±0.1
Ca (%)	1.7±0.1	1.5±0.1	0.72±0.04	1.4±0.1	1.4±0.1	1.4±0.1
Sc	13.1±0.4	9.0±0.4	8.4±0.2	9.7±0.3	14.3±0.4	11.6±0.4
Mn	78±2	98±2	76±2	112±2	122±3	111±3
Fe (%)	2.2±0.2	3.2±0.2	1.1±0.1	1.9±0.1	1.8±0.1	2.2±0.2
Co	6.5±0.3	4.7±0.2	3.6±0.2	4.3±0.2	7.5±0.2	6.0±0.3
Zn	45±6	29±4	27±4	34±4	50±6	42±6
As	3.5±0.6	2.6±0.5	nd	2.9±0.4	3.9±0.6	6.6±0.9
Br	nd	1.3±1.0	nd	nd	nd	nd
Rb	98±10	89±11	74±6	91±7	88±7	100±9
Sb	0.70±0.08	0.68±0.09	0.33±0.08	0.57±0.06	0.78±0.09	0.65±0.07

Table 2 (4) continued

Sample No.	AMP - 7	AMP - 8	AMP - 9	AMP - 10	AMP - 11	AMP - 12
Cs	6.7±0.7	6.0±0.6	4.5±0.4	5.5±0.5	6.0±0.6	6.8±0.6
Ba	590±90	460±110	420±50	470±60	500±60	370±70
La	28±1	23±1	31±1	27±1	39±1	40±1
Ce	97±3	33±1	58±2	48±2	74±3	72±3
Sm	3.5±0.1	2.4±0.1	2.6±0.1	3.1±0.1	5.3±0.1	5.5±0.1
Eu	0.77±0.09	0.49±0.06	0.86±0.09	0.92±0.09	1.4±0.1	1.1±0.1
Tb	0.65±0.13	0.54±0.14	0.77±0.16	0.58±0.14	0.98±0.22	0.38±0.16
Yb	1.9±0.2	1.4±0.2	1.7±0.2	1.4±0.2	2.1±0.2	2.1±0.2
Lu	0.30±0.04	0.27±0.04	0.36±0.04	0.29±0.03	0.37±0.04	0.41±0.05
Hf	4.7±0.4	7.0±0.6	6.1±0.7	6.0±0.7	9.1±0.9	7.2±0.9
Ta	0.74±0.14	0.67±0.13	1.1±0.3	0.93±0.27	2.2±0.6	1.3±0.4
Th	12.4±0.2	11.0±0.2	10.4±0.2	10.2±0.2	13.7±0.3	15.1±0.3
U	2.6±0.3	2.7±0.3	3.6±0.4	2.6±0.2	3.5±0.3	3.5±0.3

しかし、全元素濃度の相関図による両者の分類は、データの整理にはかなり有効ではあるが、分散の大きいデータについては十分とは言いがたい。そこで両地域の各試料毎の元素濃度を、グループの元素間の標準偏差で割った値について（規格化法）、同様に全元素間の相関図を画かせる手法を用いた。<sup>4)</sup> この標本標準偏差を単位とした全元素相関図により、両者の判別はより鮮明な形で整理することができた。とくにバリウムが指標元素として有効であり、バリウムと他元素との相関図は、何れも両者の判別が可能であるが、それらのうちバリウムとカリウム、スカンジウム、マンガン、トリウム、ウランおよび希土類元素がすぐれた結果を示した。また、バリウム以外ではナトリウム-カリウム、カリウム-セリウム、スカンジウム-セリウム、コバルト-セリウム、亜鉛-ランタン、亜鉛-セリウム、亜鉛-サマリウムおよび亜鉛-ハフニウムなどの相関図がよい分離を示した。図2に標本標準偏差を単位としたバリウム-カリウム、バリウム-スカンジウム、バリウム-ランタン、バリウム-ウラン、カリウム-セリウム、コバルト-セリウムおよび亜鉛-セリウムの相関図を示した。しかし、後者の手法の適用には、産地ごとにある程度の数の標本が得られるという条件が必要である。

本研究の試料は一部自家採取のほかは、沢田由治、小野田勝一および土居中州氏より提供を受けた。原子炉照射にお世話になった京大原子炉実験所の関係各位とともに感謝いたします。

(1980年10月、日本地球化学学会年会(鹿児島)にて一部発表)

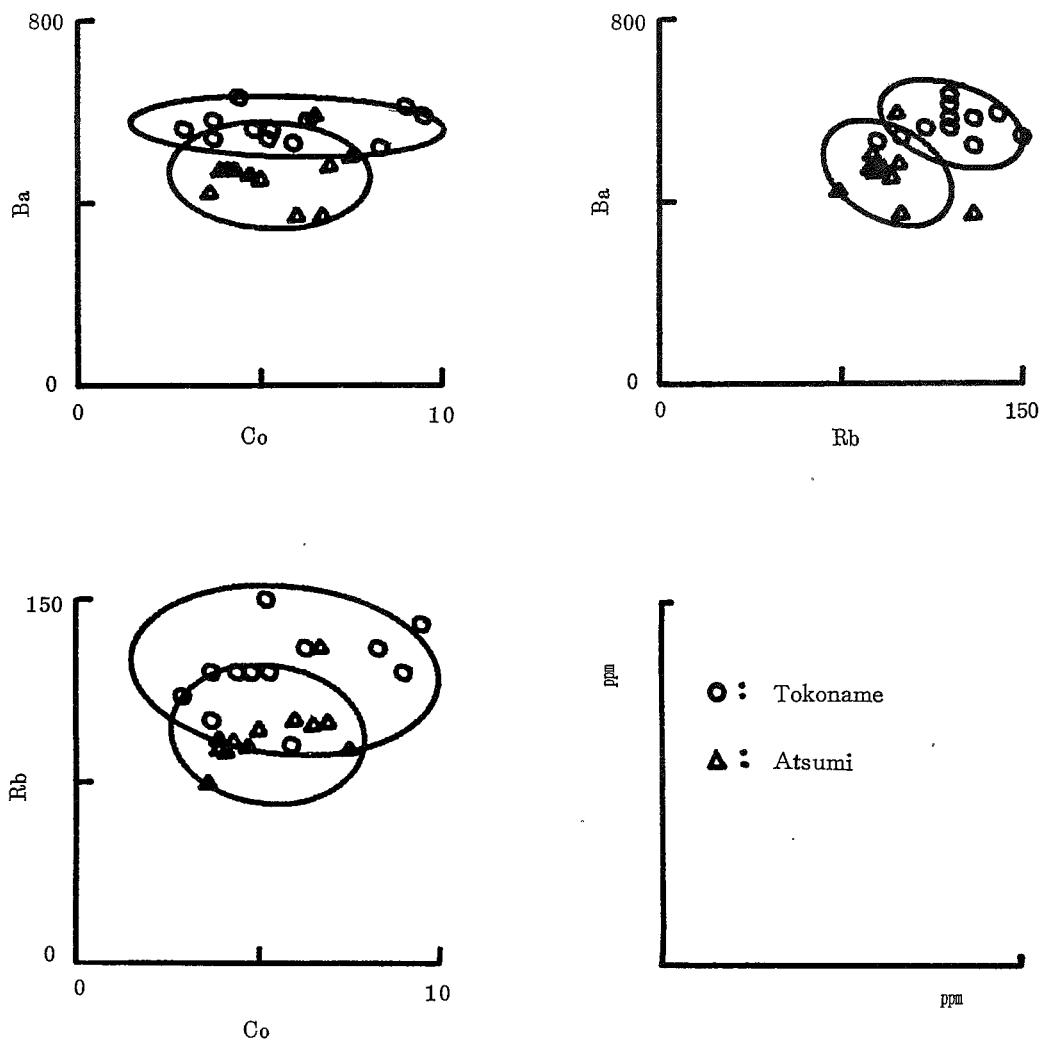


図1. 常滑と渥美地域の古陶の分布

Fig. 1 Distribution of the old pottery in Tokoname and Atsumi region



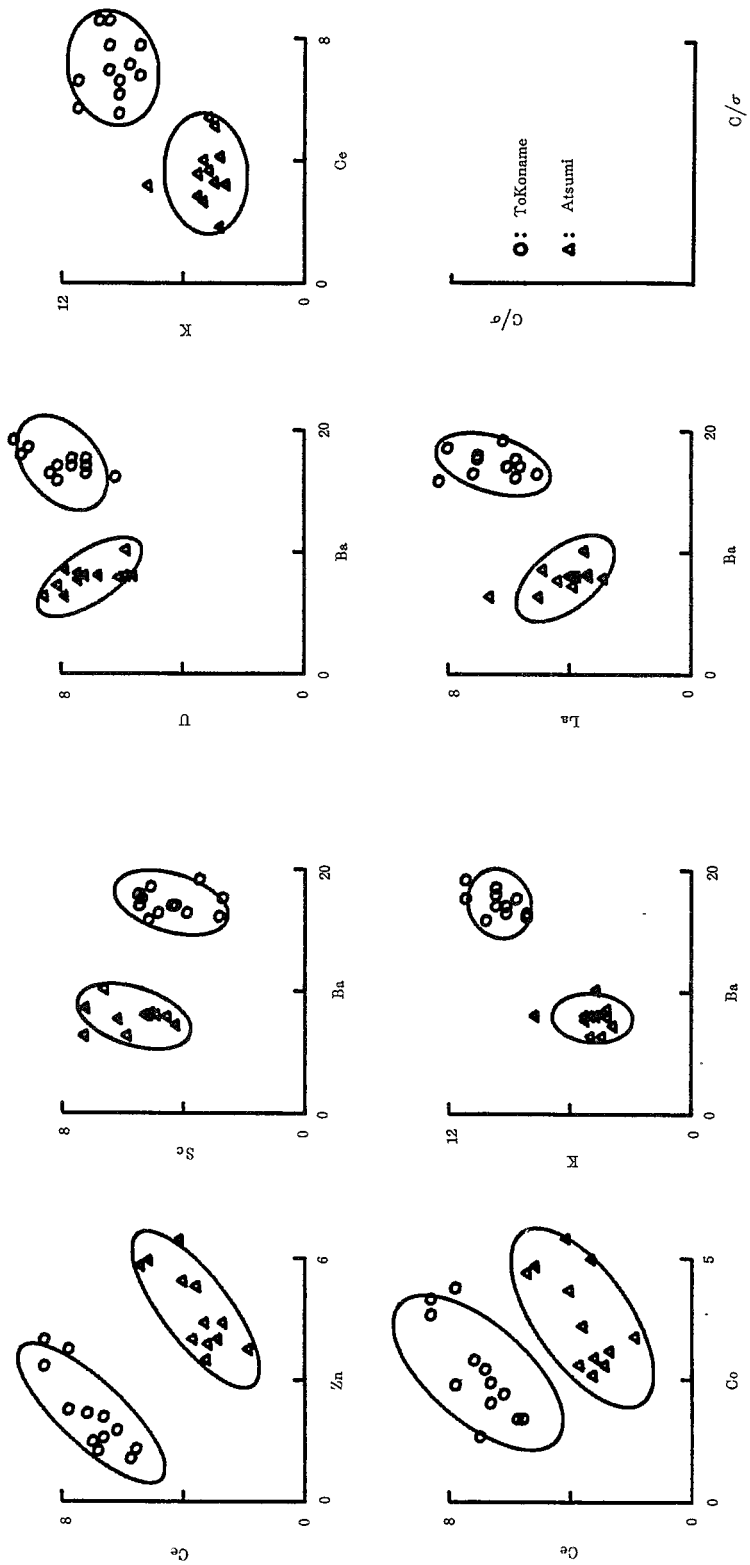


図2 規格化データによる常滑と渥美地域の古陶の分類

Fig. 2. Classification of old pottery in Tokoname and Atsumi region with normalized data

C : Elemental concentration in every samples

$\sigma$  : Standard deviation of element in one group

## 参 考 文 献

- 1) (1977) 古美術真贋ガイド<陶磁6>常滑渥美。芸術新潮 №7 : 147 - 154
- 2) 小野田勝一(1982)渥美 満岡忠成他編, 日本やきもの集成2 : 105 - 108, 平凡社
- 3) 沢田 由治(1965)渥美半島古窯址総説 陶説 №143 : 11 - 23
- 4) 東村 武信(1976)産地推定における統計的手法 考古学と自然科学 9 : 77 - 90

### Classification of old potteries excavated in Tokoname and Atsumi region by neutron activation analysis

Tatsuro KAWASHIMA, Tokishi KAMINISHI, and Yosoo MATSUNO  
Government Industrial Research Institute, Nagoya Hirate-cho, Kitaku, Nagoya

The purpose of this work was to clarify for the characteristics in elemental composition of different pottery group. Instrumental neutron activation analysis has been applied for the determination of 25 minor and trace elements in two groups of Tokoname and Atsumi region.

To identify differences of two region, there are two methods. One is the method using the correlation diagrams of some of the elements interested, such as Ba-Rb, Ba-Co and Rb-Co. Another is the normalized method using concentration in unit of standard deviation. The latter was effective for discriminating the region of production in more detail. In both methods, Ba was showed to be the most useful index element.