

科学分析データによる料紙の比較分類

坂本昭二 1)、倉石沙織 1)、小田寛貴 2)、江南和幸 1)、岡田至弘 1)、安裕明 3)、池田和臣 4)、河野益近 5)

- 1)龍谷大学古典籍デジタルアーカイブ研究センター、 2)名古屋大学年代測定総合研究センター、
3)茨城県立多賀高等学校、 4)中央大学文学部、 5)京都大学大学院工学研究科

本研究では、4世紀の李柏文書から20世紀までの古文書等の様々な料紙を対象として、これらの料紙を科学的に分析したデータを用いて料紙の比較分類を試みた。まず、紙の色情報によって料紙の分類を行った。この結果、時代的に古い紙は比較的黄色味を帯びた暗い色をしているが、新しい紙では黄色味が減少して白い紙が多いことを示した。次に、蛍光X線元素分析によって料紙に含まれる元素の種類を調べ、時代的に古い紙が含む元素の種類数は多く、新しい紙に含まれる元素の種類数は少ないことを示した。特に大谷文書の多くに元素Fe, Ti, Alが含まれていることを確認した。

A Comparative Classification of Papers by Scientific Analyzing Data

Shouji Sakamoto 1), Saori Kuraishi 1), Hirotaka Oda 2), Kazuyuki Enami 1), Yoshihiro Okada 1),
Hiroaki Yasu 3), Kazuomi Ikeda 4), Masuchika Kohno 5)

- 1) Digital Archives Research Center, Ryukoku University
2) Center for Chronological Research, Nagoya University 3) Ibaraki Prefectural Taga high school
4) Faculty of Letters, Chuo University 5) Graduate School of Engineering, Kyoto University

This paper describes a classification of papers using scientific analyzing data. The samples consist of various papers, from early 4th century documents, that is Li Bo's documents, to modern handmade papers. We first measured paper color, and classified the papers by the color data. The result shows that old paper's color is darker and yellower than modern paper's one. Next, we also investigated about elements in the papers by X-ray Fluorescence Analysis. Most of the ancient papers from the Central Asia have elements, Fe, Ti and Al. But most of the modern papers do not include them.

1. はじめに

近年、デジタルアーカイブ事業が盛んに行われており、古文書データベースもインターネット上にいくつか公開されている。例えば、龍谷大学では国際敦煌プロジェクト(IDP)の下で敦煌文書のデジタル化やIDPデータベースの構築を行っている[1]。このような古文書データベースが提供する高精細な画像によって古文書研究は一段と進めやすくなってきていている。しかし一方で、保存修復、書誌学、材料などの分野から古文書にアプローチする技術者や研究者が必要とする情報が欠落していることも事実である。例えば、古文書料紙の材料、制作年代、制作地域などの情報が不足していたり、不明のままであることが多い。しかし、近年の分析機器の性能向上や小型化によって比較的容易に分析が可能となり、このような情報不足状

況が変わりつつある。例えば、小田等はわずか数ミリグラムという微量な炭素資料で14C年代測定を行える加速器質量分析法を用いて古文書等の年代測定を進め、成果をあげている[2]。また、坂本等は高解像度デジタル顕微鏡観察や蛍光X線元素分析などの様々な観測方法によって紙の原材料や漉き方などの分析を行っている[3, 4]。

本稿で扱った料紙は、大谷探検隊が敦煌、トルファン、樓蘭から将来した文書。これらは4世紀から11世紀ころまでの文書のようである。そして、8世頃及び14世紀頃の古筆切、西本願寺に保管されていた19世紀の文書、中国、台湾、韓国、日本の各地から集められた現代の手漉き紙である。これら様々な料紙を分析、計測した結果のデータを分析することによって料紙の特徴を明らかにすることを試みた。

2. 料紙分析

料紙には様々な情報が残されている。まず、料紙の原材料である植物纖維の種類が顕微鏡による形態観察や染色溶液による試験によって同定される。紙の中には1種類の纖維だけで漉かれた紙もあれば、数種類の纖維から作られたものもある。また、製紙行程の一つである叩解（纖維を叩き潰したり、刷り潰す行程）によって纖維が潰され、ミクロフィブリル（纖維を構成する糸上のセルロース分子鎖の集合体）が見られる纖維が観察されることもある。また、紙漉きの際には纖維以外にもトロロアオイのようなネリ、白土や胡粉などの填料を紙料に混ぜて紙を漉く場合がある。このような填料が混入している料紙からはトロロアオイの澱粉や胡粉等の粒状物が観察される。また、胡粉の混入された料紙からは、元素分析を行うとCaが多量に検出される。この他にも、紙の表面からは様々な夾雜物や異物などが見つかる。例えば、原材料に使われている植物の茎や皮の断片、羽毛や人毛、害虫、カビなどが見られるものもある。また、土中等から発掘してきたものには土が付着している場合もある。

料紙には原材料に関する情報以外にも、紙の制作過程で使用された道具の痕跡が残っている。紙を漉くためには漉き簀や紙を乾かすために使用する板や刷毛などの道具が使用される。紙にはこれらの使用による痕跡が残っており、例えば、簀の目や糸目は紙を漉いた簀の形状に関する情報であり、料紙の透過光画像を分析することによってこれらを調べることができる[4, 7]。板目、刷毛目もそれぞれ紙を貼った板と刷毛の情報を与える。

次に、紙には紙を漉いた方法に関する情報も残されている。これまで、紙漉き方法は主に溜め漉きと流し漉きの2通りに分類されてきたが、近年、紙表面の纖維の配向性を分析することによって、これらの2種類の方法だけでは分類できない事態になってきている[5, 6]。また、紙の地合（紙纖維分布の均一性）や紙厚や坪量（1m²あたりの重量）なども紙漉きによる情報である。

最後に、紙は漉かれたままの形で使用されることではなく、紙の耳を断ち、紙を継ぐこともある。これらは装潢に関する情報であり、紙幅、紙高、面積などを調べる。経典等の書写に使用された料紙は染色などの加工がされていることから紙色や刷毛による染色の場合は刷毛目が残ることもある。また、紙の平滑化や滲み止めのために紙表面を滑

らかにする打紙加工などが行われているかどうかも観察できる。

以上のような料紙に関するデータは製紙に関する研究や保存修復の分野で役立つだけではなく、古文書研究の分野でも有用なデータである。從来からある書誌学的な古文書分析のデータ（記年、界高、界幅、行数、文字数、文字種など）を補完するものもあり、料紙に関する分析データと書誌学的なデータを統合的に扱うことは古文書学のさらなる進展に繋がるものと考える。また、古文書の原材料に関する知見は、当時の植生等の環境を伺い知る上でも重要な情報である。

我々は古文書をデジタル化する際には、できる限り料紙に関する以下のデータの取得も行っている。

面積、重量、坪量、紙厚、紙色、地合、簀の目、糸目、刷毛目、纖維配向性、纖維長、纖維幅、含有元素、墨の粒径、紙の原材料（纖維の種類、填料）など

これらの計測には、反射光および透過光のスキャン画像、紙厚測定器、測色計（図. 1参照）、高解像度デジタル顕微鏡（図. 2参照）、蛍光X線元素分析装置（図. 3参照）などが用いられる。これらの分析は全て非破壊の方法で行われる。

以下では特に紙色、元素分析のデータを統計的に解析することによって見えてくる料紙の特徴について調べた。

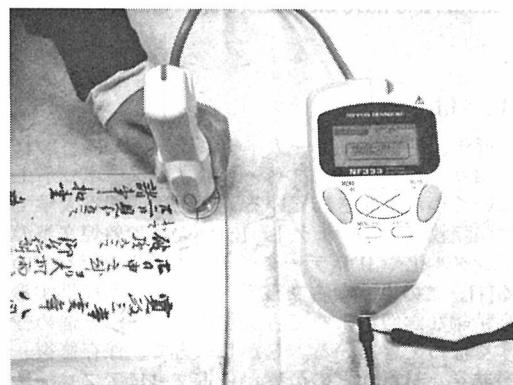


図.1 分光色差計による料紙の測色



図.2 デジタル顕微鏡による料紙の表面観察

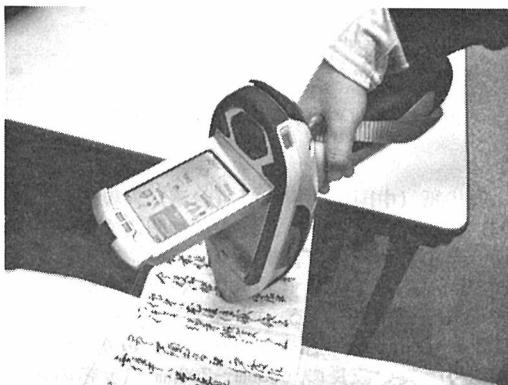


図.3 蛍光X線元素分析

3. 紙色分析

紙の色による分類はこれまでにも行われてきていて、その多くは色表を用いた目視によるもので、色名が与えられるけれども、それは定量的なものではない。色表などによる色の評価では評価した人の主觀による影響が大きいため、このような方法での大規模な紙色による分類はなされていないようである。近年、各所で行われているデジタルアーカイブ事業による画像データには RGB の色情報が含まれている。この情報を利用した古文書の紙色による分類が行われている[4]。但し、これは同一条件のもとで撮影された画像を用いて分類を行っているものである。様々な条件のもとで作られた画像を用いて紙色で分類するには、デジタル化の際に使用した光源や機器の違い、画像処理による影響を補正する必要がある。しかし、

このような条件がわからない限り色補正是困難であり、色を比較するデータとしては使いにくい。そこで本研究では紙色の比較ができるように紙色測定の規格（JIS P8150）を参考にして測色を行った。

測色には JIS P8150 を分光色差系（日本電色工業製 NF333、図.1 参照）を用い、光源は CIE イルミナント C、視野角条件は 2° 、測定径は 4mm とした。表色系は CIE $L^* a^* b^*$ を用いた。測色時には同時に分光反射率（可視域波長 400nm～700nm 間の 20nm 間隔で反射率を測定）のデータも計測している。測色は各文書のあまり汚れていないと思われる所を文書の大きさに依存して数ヶ所から数十箇所計測し、これらの平均値をその文書の紙色とした。

一般に、料紙の色は経年変化によって変退色する。従って、古い料紙の測色結果は経年劣化によって変退色した後の結果である。本研究では、このような変退色に関しては考慮せず、現在の紙色情報だけから新しい料紙と古い料紙の比較を行った。しかし、ここで得られた色情報は劣化による変退色の研究にも役立つデータであることを注意しておく[8]。

紙色の計測を行った資料（計 357 点）を以下に示す。

○現代紙（188 点）

日本（110 点）、韓国（22 点）、台湾（22 点）、中国（34 点）の各地で 1977 年頃に漉かれた手漉き紙。

○西本願寺関連文書（122 点）

19 世紀の文書で西本願寺に保管されていたもの。

○古筆切（5 点）

^{14}C 年代測定によって年代判定されており、このうち 3 点が 14 世紀頃のもので 1 点が 8 世紀頃、残りの 1 点は未計測。

○李柏文書群（42 点）

樓蘭出土の大谷探検隊将来品。この文書群には書写年代が 4 世紀初期とされているものが含まれている。

計測の結果、表. 1 に示すように、全料紙における L^* , a^* , b^* の各平均はそれぞれ 87.9, 0.1, 12.8 であり、各分散はそれぞれ 62.9, 3.7, 36.4 であった。 a^* における平均値が 0.1、分散が 3.7 と小さいこと

から、紙の色には赤味も緑味もほぼないことがわかる。分散に関しては、 L^* の分散が最も大きく、次いで b^* の分散が大きく、 a^* の分散が最も小さい。主成分分析を行うと、第一主成分は L^* 軸方向、第二主成分は b^* 軸方向に近く、これら二つの主成分が張る平面も L^*-b^* 平面に近い。従って、本稿では L^*-b^* 平面に各文書データをプロットし可視化を実現した。これには、 L^* が明度、0より大きな b^* の値は黄色味を表していることから直感的に紙の色を理解しやすい利点もある。

表1 各文書や料紙における L^* , a^* , b^* の平均と分散

	サンプル数	L^* (平均)	L^* (分散)	a^* (平均)	a^* (分散)	b^* (平均)	b^* (分散)
現代紙 (中国)	34	91.1	12.6	-1.2	0.3	13.4	52.4
現代紙 (台湾)	22	92.8	14.1	-1	0.9	7.6	21.6
現代紙 (韓国)	22	92.2	5.6	-0.8	1.5	7.7	23.4
現代紙 (日本)	110	91.9	5.8	-0.7	0.9	8.1	16.7
現代紙 (全体)	188	91.9	8	-0.9	0.9	9	28.5
西本願寺関連文書	122	89.1	5.4	-0.1	0.5	15.7	7.8
古筆切	5	74.9	11.7	3.2	2.6	18.8	19.7
李柏文書群	42	68.4	7.8	4.6	0.6	20.6	3.4
全体	357	87.9	62.9	0.1	3.7	12.8	36.4

上記資料の測定結果を図. 4 に示す。全ての料紙で b^* の値は正の値を示している。 b^* が負の値の時は青味があることを示し、逆に、 b^* が正の値の時は黄色味があることを示す。そして黄色味が強い程 b^* の値は大きくなる。従って、このことは全ての料紙が黄色味を持っていることを表している。現代紙、西本願寺関連文書、李柏文書群でそれぞれ L^*-b^* 平面上で分布が偏っている（クラスターを形成している）ことがわかる。古筆切のデータは少ないが、現代紙、西本願寺関連文書とは異なる色をしていることがわかる。また、概ね年代順に紙色が変化していることもわかる。現代紙（全体）、西本願寺関連文書、古筆切、李柏文書の時代順（新しいものから古いものへの順）での L^* の平均値は以下のように単調減少を示す。

L^* の平均値： $91.9 > 89.1 > 74.9 > 68.4$

同様に、 a^* , b^* の各平均値では単調増加を示す。

a^* の平均値： $-0.9 < -0.1 < 3.2 < 4.6$

b^* の平均値： $9 < 15.7 < 18.8 < 20.6$

すなわち、年代の古い料紙の色は黄色味がかり比較的暗い（すなわち、 b^* の値が大きく、 L^* の値が小さい）が、新しい料紙になる程、黄色味が徐々に抜け、比較的白い紙（すなわち、 b^* の値が 0 に

近づき、 L^* の値が大きくなる）が多いことがわかる。

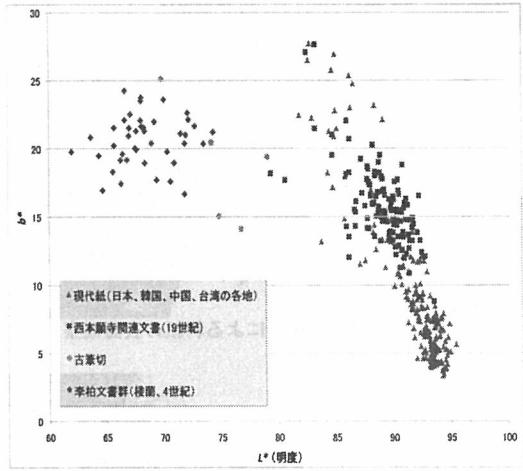


図. 4 L^*-b^* 平面上における紙の分布

現代紙（中国）、現代紙（台湾）、現代紙（韓国）、現代紙（日本）、西本願寺関連文書、古筆切、李柏文書群の全料紙の分光反射率をそれぞれ図. 5～図. 11 に示す。全ての料紙が右肩上がりの曲線を描いている。すなわち、短い波長の 400nm～500nm（青色のスペクトル）辺りの反射率が低く、長い波長の 600nm～700nm（赤色のスペクトル）辺りの反射率が高い。従って、上述のように青色の補色（スペクトルの一部を遮った光を集めると、遮った光の色に対応した色の光になる。例えば、青色の光を遮った場合は黄色になり、この関係を補色という。）である黄色 ($b^* > 0$) が計測される。また、現代紙の可視域の波長（400nm～700nm）全体に渡っての反射率は比較的高いが、逆に古い文書である古筆切や李柏文書の反射率は低い。このことは明度 L^* の違い、すなわち、現代紙は明るい紙で、古い紙は暗い紙であることを示している。

図. 5 の現代中国紙の分光反射率を見ると、短い波長の 400nm～500nm での反射率が高いグループと低いグループに明確に分かれている。低いグループの紙の色は黄色味が強く、これらは製紙の段階での纖維の漂白があまりされていない紙である。このような紙は台湾、韓国、日本の現代紙の中にも数点見られた。

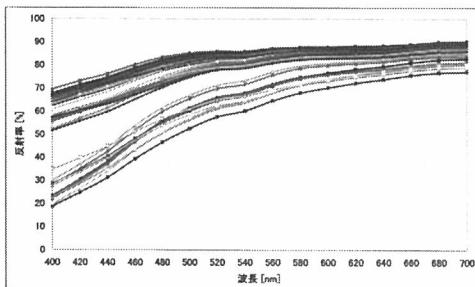


図.5 現代紙（中国：34点）の分光反射率

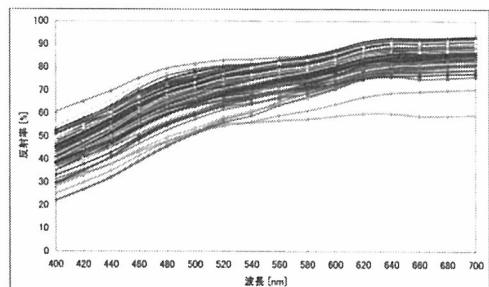


図.9 西本願寺開達文書（122点）の分光反射率

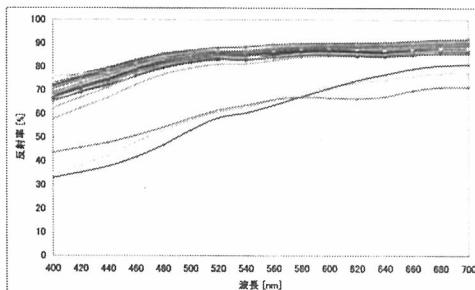


図.6 現代紙（台湾：22点）の分光反射率

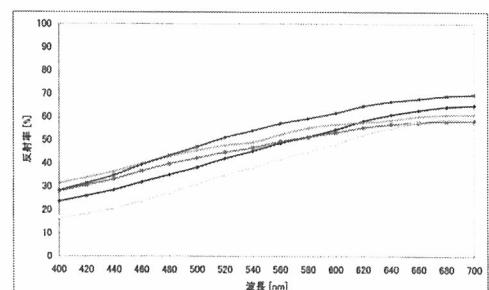


図.10 古筆切（5点）の分光反射率

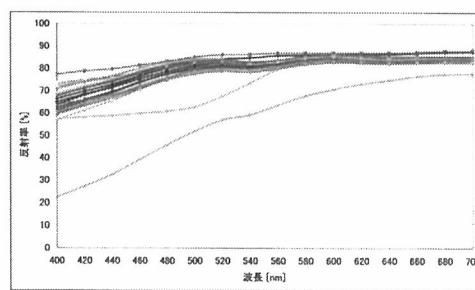


図.7 現代紙（韓国：22点）の分光反射率

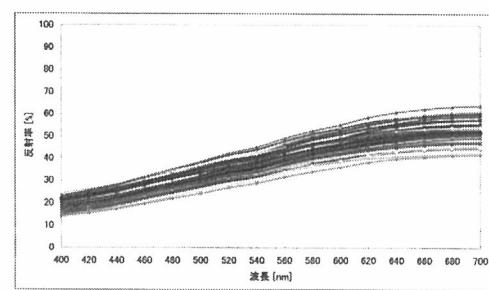


図.11 李柏文書群（42点）の分光反射率

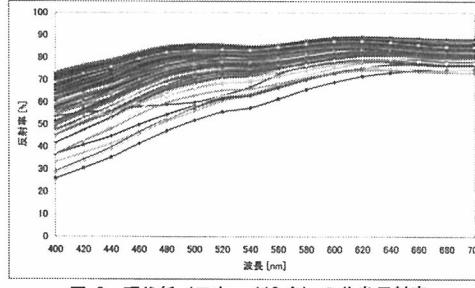


図.8 現代紙（日本：110点）の分光反射率

4. 蛍光 X 線元素分析

前節の紙色の分析では年代ごとにクラスターが形成されていることを確認した。次に、紙の含有元素を調べることにより、各クラスターの特徴を明らかにする。

本実験で計測した資料（計 500 点）は前節で紙色計測した紙に加えて、李柏文書以外の大谷文書なども計測した。これらの追加資料はその大きさが小さいために色の計測はできなかったが、含有元素は計測できた資料である。これらの資料を以下に示す。

- 現代紙（192 点：中国紙を 4 点追加）
- 西本願寺関連文書（125 点：3 点追加）
- 古筆切（6 点：1 点（14 世紀頃）追加）
- 大谷文書（177 点：トルファン、クチャ地区で出土した大谷探検隊将来文書（樓蘭出土の李柏文書群（42 点））も含む）

本分析で使用した蛍光 X 線元素分析（XRF）機器は Niton 社製の XL3t（図.3 参照）で、計測した元素は以下に示す 34 元素（Ba, Sb, Sn, Cd, Pd, Ag, Mo, Nb, Zr, Sr, Rb, Bi, As, Se, Au, Pb, W, Zn, Cu, Ni, Co, Fe, Mn, Cr, V, Ti, Ca, K, Al, P, Si, Cl, S, Mg）とバランス成分である。計測は各文書の大きさに依存して数箇所から数十箇所で測定を行つた。

以下に述べる料紙の分析では、得られた XRF データを定性データとして扱い、定量データとして扱わない。これは計測対象としている文書料紙の厚さや密度がそれぞれ異なることによる。従つて、ある元素が料紙に含まれているかどうかの情報のみから紙の特徴を調べる。大谷文書の一部からは As, Pb, Zn, Cu のような紙の含有元素としては一般的でない元素も検出されたが、今回は比較的紙から検出されやすい Fe, Ti, Ca, K, Al, P, Si, Cl, S の 9 元素が含まれているかどうかによって分析を行つた。

この分析結果を図.12 に示す。ここで、図中の 9 個のビットの列は Fe, Ti, Ca, K, Al, P, Si, Cl, S の順での元素の含有を表しており、0 は元素を含まず、1 は元素を含んでいることを示す。例えば、001000111 は元素 Ca, Si, Cl, S を含有していることを示す。そして、ビット列の左の 2~9 の数字は、そのビット列中に現われる 1 の個数を表している。

すなわち、元素が何種類含まれているかを表している。本稿では、この 9 個のビットの列をパターンと呼ぶ。

計測の結果、図.12 に示されているように、料紙は 35 種類のパターンに分類された。大谷文書は 111111111, 111110111 に分布のピークが見られ、西本願寺関連文書は 001101111, 001101011 にピークがあり、現代紙は 001100111, 0011000111, 001000111, 001000011 にピークが見られる。特に大谷文書はその他の文書と比較して Fe, Ti, Al を含有する紙が多い。古筆切に関してはサンプル数が 6 点と少ないので、比較的含有元素の種類の数は多いようである。この分析では、古い紙ほど多くの種類の元素を含み、逆に新しい紙は含んでいる元素の種類が少ないことがわかった。

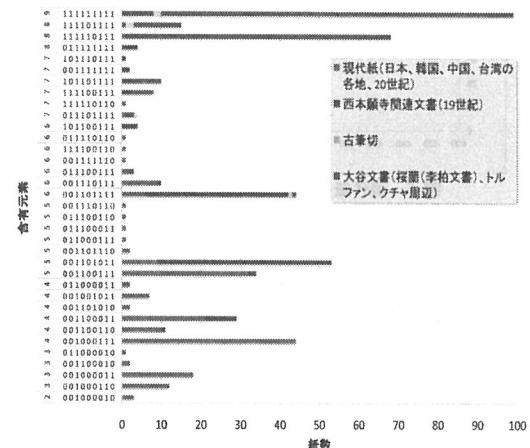


図.12 含有元素における紙のヒストグラム

実際に、李柏文書（IDP 番号：MS00538A、図.13 参照）と現代の純大麻紙（図.14 参照）をデジタル顕微鏡を用いた透過光観察で比較してみると、李柏文書の方には纖維の間に様々な填料等が見られるが、現代大麻紙の纖維間には填料等はほとんど見られない。李柏文書に関しては書写された文字は極めて滲みが少なく、おそらくは滲み止め処理として、そして、紙の白色化のためにも填料が用いられたと思われる[3]。このようなサイジングに用いられた填料が含有元素の種類数を増やしている原因の一つになっていると思われる。

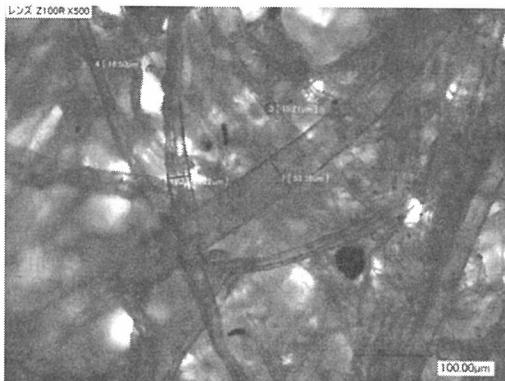


図.13 李柏文書(MS00538A)の顕微鏡画像(500倍)

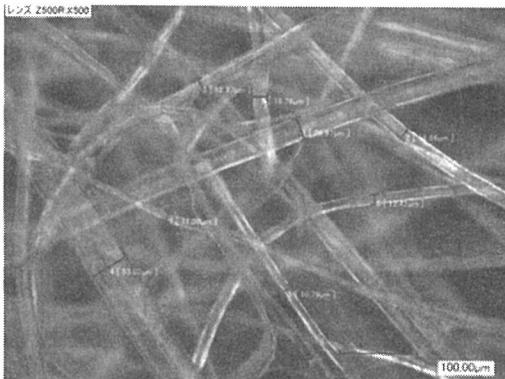


図.14 現代の大麻紙の顕微鏡画像(500倍)

次にこれらのピークを示すパターン間の関係を調べる。これらのクラス間の半順序関係（上記9元素を集合の元としたときの幂集合の包含関係による半順序関係）をハッセ図で表したものを見図.8に示す。但し、表示の煩雑さを避けるために、全35パターンのうち料紙を10紙以上含むピークを示しているパターン（13パターンが存在）のみを表示した。このような表示方法によってパターン間の近さ関係を直感的に知ることができる。このハッセ図からわかるように、大谷文書のピークを示すパターン11111111と111110111はハミング距離が1であり、これらのパターンは近いと言える。すなわち、これらのパターンの違いは元素Pが含まれているかいないかだけの違いであって、これらのパターンは近いと言える。同様に、西本願寺関連文書は001101111と001101011にピーク

があるが、元素Siの含有の有無の違いがあるだけでこれらのパターンも近い。現代紙に関しては001100111、001100011、001000111、001000011にピークがあるが、これらの任意のパターン間のハミング距離は2以下であり、これらのパターンは元素KとSiを含有しているかどうかの違いだけであり、互いに近いことがわかる。従って、含有元素による分類においてもクラスターを形成していることを確認できた。

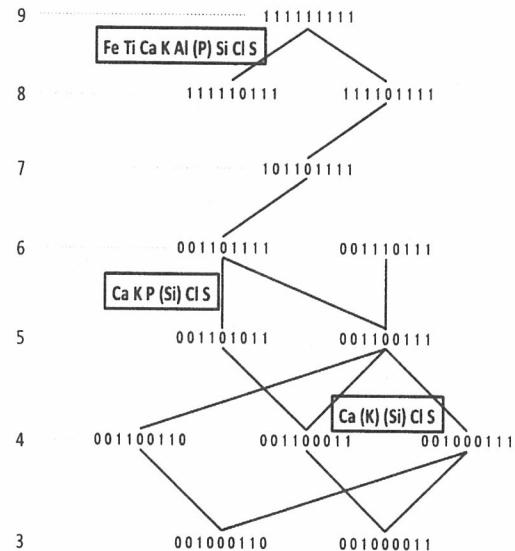


図.8 元素含有の順序関係を表すハッセ図

各元素を含んでいる紙の割合を表.2に、そして各元素間での含有の相関係数を表.3に示す。表.2からは料紙にはCaとClが必ず含まれていることがわかる。また、表.3は特にFe、Tiの間の相関が極めて高いことを示している。しかし、これらの元素が何を由来としているのかを明らかにすることは、顕微鏡等による非破壊分析では難しい。

表.2 各元素を含有している紙の割合

	Fe	Ti	Ca	K	Al	P	Si	Cl	S
現代紙	2%	7%	100%	53%	7%	15%	67%	100%	80%
西本願寺関連文書	21%	18%	100%	100%	17%	82%	58%	100%	99%
古筆切	67%	83%	100%	100%	33%	100%	100%	100%	100%
大谷文書	98%	96%	100%	100%	85%	60%	100%	100%	100%

表.3 各元素間の含有の相関

相関	Fe	Ti	K	Al	P	Si	S
Fe	1.000						
Ti	0.862	1.000					
K	0.392	0.359	1.000				
Al	0.754	0.776	0.359	1.000			
P	0.211	0.184	0.380	0.126	1.000		
Si	0.471	0.435	0.150	0.431	-0.031	1.000	
S	0.213	0.173	0.176	0.161	0.206	-0.020	1.000

5.まとめ

4世紀から20世紀までの古文書等の料紙を科学的に分析して得られたデータを用いて比較分類を試みた。

まず、紙色分析では年代ごとにクラスターを形成することを示した。全ての料紙においてその紙色は黄色味を帯びていたが、古い料紙から新しい料紙になるにつれて、黄色味が減少し、明度が高い白い紙になる傾向があることを示した。本研究で分析した料紙のほとんどは染色されていない料紙である。今後、同様の方法で染色された料紙を含めて分析することは劣化による変退色に関する研究にもつながるであろう。

次に、元素分析では、古い料紙から新しい料紙になるにつれて、含有する元素の種類が少なくなることを示した。特に、ほとんどの古い料紙には、Fe, Ti, Al が含まれることを確認した。本研究では検出された元素が何を由来としているのかを確かめるまでには至っておらず、今後の課題である。

今回は、数百点程度の限られた資料の分析であったが、年代ごとにクラスターを形成していることを確認できた。しかし、産地に関しては、今回の分析方法からは明確な差を示すことはできなかった。産地同定に関しても今後の課題である。今後はあらゆる時代と地域の紙を分析し、その結果をデータベースに蓄積していきたい。このようなデータベースは保存修復技術者、分析科学者、そして人文科学の研究者にも有益な情報をもたらすであろう。

参考文献

[1] <http://idp.afc ryukoku.ac.jp>

[2] 小田寛貴 他：炭素 14 年代測定法を用いた古筆切の伝承筆者と書写年代の相違に関する 研究 - 伝中臣鎌足筆、伝宗尊親王筆古筆切等を例として-, 日本国文化財科学会第 27 回大会研究発表要旨集, pp.134-135, 2010.

[3] 坂本昭二 他：大谷コレクション「李柏文書」の科学分析, 日本国文化財科学会第 27 回大会研究発表要旨集, pp.34-35, 2010.

[4] 坂本昭二：デジタルアーカイブデータおよび分析データを用いた古文書料紙の分類－天野山金剛寺所蔵の古写経を例として-, 情報処理学会研究報告, CH-81(2), pp.9-15, 2009.

[5] 穴倉佐敏：和紙の歴史, 印刷朝陽会, 2006

[6] 増田勝彦：いわゆる流瀧と溜瀧について, 文化財保存修復学会第 32 回大会研究発表要旨集, pp.188-189, 2010.

[7] 加藤雅人 他：簀の目の測定法の開発および応用例, 文化財保存修復学会第 25 回大会研究発表要旨集, P004, 2003.

[8] 松枝礼子、森川洋子 他：キハダ染め料紙の強制退変色に関する考察 一打紙加工のキハダ染め古写経料紙に対する補修紙作成を目的とした試み-, 文化財保存修復学会第 32 回大会研究発表要旨集, P045, pp.162-163, 2010.