

从稀珍残片研究结果论国宝油滴建盏的特质^①

陈显求 黄瑞福 周学林

(中国科学院上海硅酸盐研究所)

孙建兴 粟金旺

(福建南平星辰天目陶瓷研究所)

摘 要

根据 90 年代以来仅有的三块出土稀珍油滴残片的科学研究结果, 间接论证了国宝油滴天目的特质。这类稀珍油滴建盏釉的化学组成与其他建盏显著不同, 其特点为低 Fe_2O_3 、低 Al_2O_3 和高 SiO_2 。油滴斑的形成与建盏釉的沸腾效应密切相关。在仿制时, 除了适当的釉配方之外, 关键在于适当工艺条件下改善油滴斑发育所形成的显微结构与选择若干加入物以提高其镜面反射率。

关键词: 残片; 油滴建盏; 显微结构

**Discussion on the Peculiarity of Oil Spot National Treasure Temmoku
Wares Jian of Spot through the Research Results of the Rare Sherds**

Chen Xianqiu Huang Rui fu Zhou Xuelin

(Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences)

Sun Jianxing Li Jinwang

(Nanping Stars Temmoku Ceramic Research Institute, Fujian Province)

Abstract

This paper has indirectly proved the peculiarity of national treasure—oil spot temmoku wares in accordance with the scientific research results of the only three rare sherds excavated since 1990s. The chemical compositions of the rare Jian oil spot temmoku glaze are quite different from those of other Jian temmoku wares, possessing the characteristics of lower content of Fe_2O_3 and Al_2O_3 but high silica. The formation of oil spot temmoku is closely related to the boiling effect of Jian temmoku glazes. In addition to the suitable temmoku glaze formula, the key to imitate oil spot temmoku wares is to improve the microstructure formed by the growth of oil spots under proper technological conditions

①收稿时间:1995年1月24日

and choose several additives in order to increase their mirror reflection rate.

Key words: Sherds; Jian oil spot; tcmoku wares; Microstructure

1 绪言

作者曾预言⁽¹⁾:和其他许多古陶瓷一样,建盏的社会文化与科学技术的内涵异常丰富,涉及许多有趣的问题和奥秘,其中有的是单纯考证古籍和文献得不到要领的,要破译其谜底必须认真考察事实和以传世及不断发现的出土文物为基础。

油滴建盏就是这类问题的一个突出的例子。与日本古籍相反,中国古籍从未发现有油滴建盏的记载。80年代末以前,建阳窑址甚至极少发现这类残片,除了60年前J.M.Plumer在窑址搜集到的二块之外,其余发现的、包括供御油滴残片多属银星油滴盏类型。

日本收藏的三只南宋传世的油滴建盏已秘藏数百年,而以大阪市立东洋陶瓷美术馆公开展览的金扣国宝油滴建盏为首,其艺术形象的扼要介绍和彩色照片已为许多瓷家所熟知⁽²⁾。然而这类油滴建盏为甚么稀珍,它与一般和御用建盏有何异同?显然无法使用传世作品试样来研究解决而必须等待残片的出土。1991年考古学家曾凡在芦花坪窑址发现了一块油滴残片。以实物与日本的传世国宝对照,其油滴的艺术外观相符。对残片的科学实验已经能够初步揭露国宝油滴盏的一些奥秘⁽³⁾。然而由于仅仅研究了一些残片,所以根据某些初步结果还不能立刻就下工艺性的结论而必须留待进一步研究。

1992年陶艺家孙建兴在窑址发现两块同样类型的油滴建盏残片。进一步研究使我们有间接认识国宝油滴建盏特质的可能。

2 残片的外观

这是90年代以来在窑址发现的这类珍贵油滴建盏的第二块和第三块残片。其中一块碗型较大,编号为JS1,另一块碗型较小,编号为JS2。(以下简称1号和2号)。1号残片为一大块口沿破片而没有底足。从口沿的圆弧测知碗口的直径为216mm,尺寸和器形均类似于静嘉堂所藏新字款的大碗(重要文化财)。当然,油滴则完全不同。口沿则与一般大碗一样为喇叭状。内外釉皆密布油滴斑,直径约2~3mm,其密度、尺寸和形状都与传世油滴国宝和重要文化财相同。它的油滴斑的镜面反射效应更强,在强烈反射的角度上油滴有微凹的感觉。在放大镜下看到,每一油滴中心部分表面不光滑,略呈红色反光。边缘一圈,平滑如镜,强烈反射出钢蓝色光。1号残片的外观如图1所示。

2号为小碗油滴残片,保留了1/5口沿和大半个圈足。按弧线测得其圈足外直径为40mm,内直径为30mm,与中型建盏圈足尺寸相同。口沿直径为98mm,碗高48mm。外口沿带指沟,外侧下部近1/3处削入使釉流淌不到底而聚成一圈,局部聚釉有微弱下坠趋势。如图2所示,内釉油滴密集于中、下部,大多数镜面反射不强烈,上部只有零星

少数, 但该处同时存在一些反射暗蓝色的银星斑, 釉色漆黑。外釉油滴则密集于上部, 多连成一片, 除零星小斑外, 油滴多呈红色, 反光强烈。

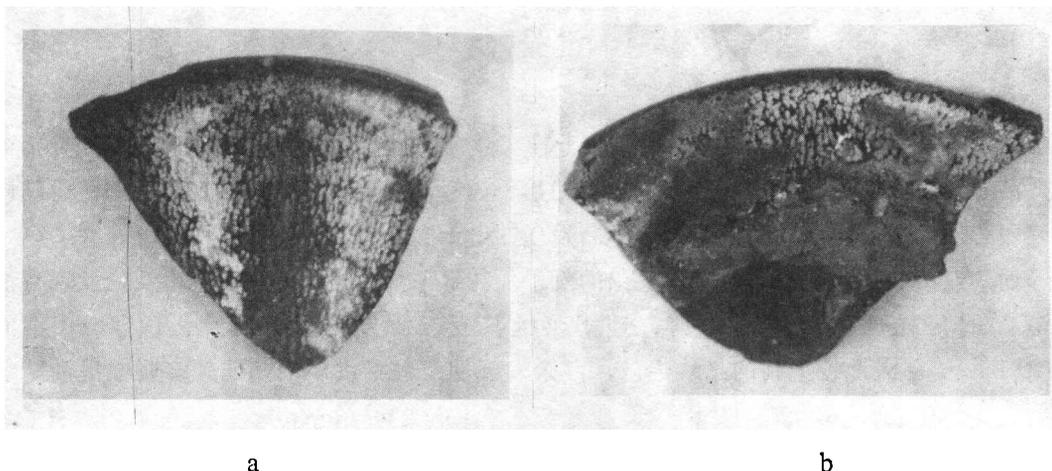


图1 JS1 油滴大碗残片的外观

2号小碗实际上是建窑的一种小盏。这种器形比较少见。博物馆罕见有收藏。其器形可以引用前人绘制的该类小盏残片的图形^[4]来表示, 如图3。这一小盏与考古家曾凡所发现的非常近似。

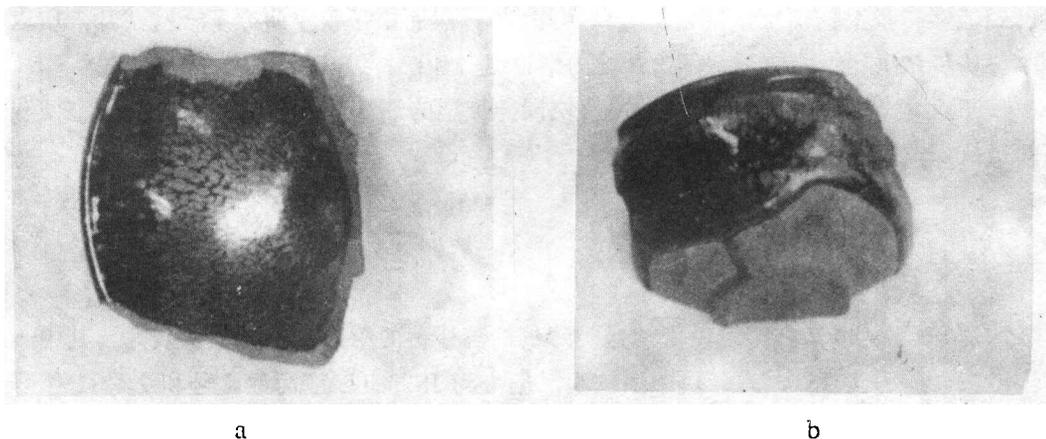


图2 JS2 油滴小盏残片的外观

我们把与国宝油滴盏相似的残片简称为 NT 油滴盏残片

3 NT 油滴的化学组成及其特点

以 XRF 分别分析了样品的釉和胎的化学组成, 兹将其重要百分组成 (wt%) 摩尔百分组成 (mol%) 釉式 (GF) 和胎式 (BF) 列于表 1 和表 2, 并将以前分析的 Z2 小盏的数据也分别列于表 1 和表 2 以资比较。

我们先看釉中的氧化铁含量, 御用建窑釉中至少在 6wt% 以上, 高者超过 7wt%。由

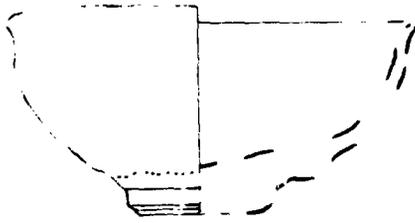


图 3 JS2 小盏的器形

大型御用建盏的新数据^[5]可知, 其釉中铁含量量高者达 12wt% 以上 (DG4), 而纯黑釉则低到 3.0wt% (DJ1) 和 3.3wt% (DG3), 是目前所有建盏分析数据的最低者。现在 1 号 (大盏) 和 Z2 号 (小盏) 的 Fe_2O_3 含量亦属最低, 为 3.4wt%, 另一只小盏 (2 号) 也不过是 4.2wt%。因此,

至少根据目前仅有的三只试样的数据来判断, NT 类型的油滴釉属低 Fe_2O_3 含量的类型。

表 1 NT 油滴建盏残片釉的化学组成

编号	K_2O	Na_2O	CaO	MgO	MnO	Al_2O_3	Fe_2O_3	SiO_2	TiO_2	P_2O_5	
JS1	3.2	0.4	4.9	0.7	0.4	15.6	3.4	69.5	0.5	0.9	wt%
	2.28	0.44	5.84	1.16	0.37	10.25	1.43	77.40	0.41	0.42	mol%
	0.2255	0.0431	0.5789	0.1154	0.0371	1.0153	0.1412	7.6684	0.0411	0.0418	G.F.
1 : 1.565 : 7.7095											
JS2	3.2	0.8	4.5	0.7	0.3	15.0	4.2	69.1	0.5	1.1	wt%
	2.29	0.87	5.40	1.17	0.28	9.91	1.77	77.38	0.42	0.52	mol%
	0.2286	0.0868	0.5393	0.1170	0.0282	0.9899	0.1769	7.7323	0.0417	0.0518	G.F.
1 : 1.1668 : 7.7740											
Z2	3.6	0.4	4.7	0.7	0.4	14.9	3.4	70.0	0.4	1.0	wt%
	2.55	0.43	5.60	1.16	0.37	9.77	1.42	77.87	0.33	0.47	mol%
	0.2521	0.0429	0.5531	0.1149	0.0370	0.9650	0.1406	7.6878	0.0330	0.0462	G.F.
1 : 1.1056 : 7.7208											

表 2 NT 油滴建盏残片胎的化学组成

编号	K_2O	Na_2O	CaO	MgO	MnO	Al_2O_3	Fe_2O_3	SiO_2	TiO_2	P_2O_5	
JS1	2.1	0.4	0.1	0.4	0.07	21.9	8.2	65.1	1.1	0.2	wt%
	1.59	0.46	0.13	0.70	0.07	15.28	3.65	77.04	0.97	0.10	mol%
	0.0838	0.0244	0.0068	0.0372	0.0038	0.8073	0.1927	4.0691	0.0515	0.0053	B.F.
0.1102 : 1 : 4.1206											
JS2	2.1	0.2	0.9	0.4	0.05	21.8	9.0	63.7	1.2	0.2	wt%
	1.59	0.23	1.14	0.71	0.05	15.29	4.03	75.78	1.07	0.10	mol%
	0.0825	0.0118	0.0592	0.0366	0.0026	0.7913	0.2087	3.9212	0.0555	0.0052	B.F.
0.1927 : 1 : 3.9767											
Z2	2.0	0.4	0.1	0.5	0.06	21.2	7.6	66.2	1.3	0.2	wt%
	1.50	0.46	0.13	0.87	0.06	14.67	3.36	77.71	1.14	0.10	mol%
	0.0829	0.0254	0.0070	0.0485	0.0031	0.8138	0.1862	4.3095	0.0634	0.0055	B.F.
0.1669 : 1 : 4.3729											

一般建盏釉的 Al_2O_3 含量都大于 16wt%，甚至高过 20wt% 的，这三个试样则只达 15wt% 左右，属低 Al_2O_3 类型。建盏的 SiO_2 含量一般为 60wt%，上下限 5wt% 左右的变动。但是这类油滴釉却是高 SiO_2 的，其含量高达 69~70wt%。

把这三个试样的数据标于釉式图中，它们与其他建盏的差别就非常明显，如图 4 所示（黑点为一般建盏，白点为御用建盏，大白点为大型御用建盏，双圈点为 NT 油滴建盏。胎式图与此相同）。由图可知，绝大部分建盏的 RO_2 都不超过 6.0，而 NT 油滴建盏则超过 7.0 甚至接近 8 (JS2, 7.77)。三个试样都处于 R_2O_3 1.1~1.2 和 RO_2 7~8 所包围的四方形小区域之中。而且按所有建盏数据计算其 R_2O_3 的含量居于中等水平。而此区域则定性地远离建盏的分布区而偏于高 RO_2 一方。这一点是非常独特的，可以认为这是建窑生产 NT 油滴釉的另一种特殊秘方。

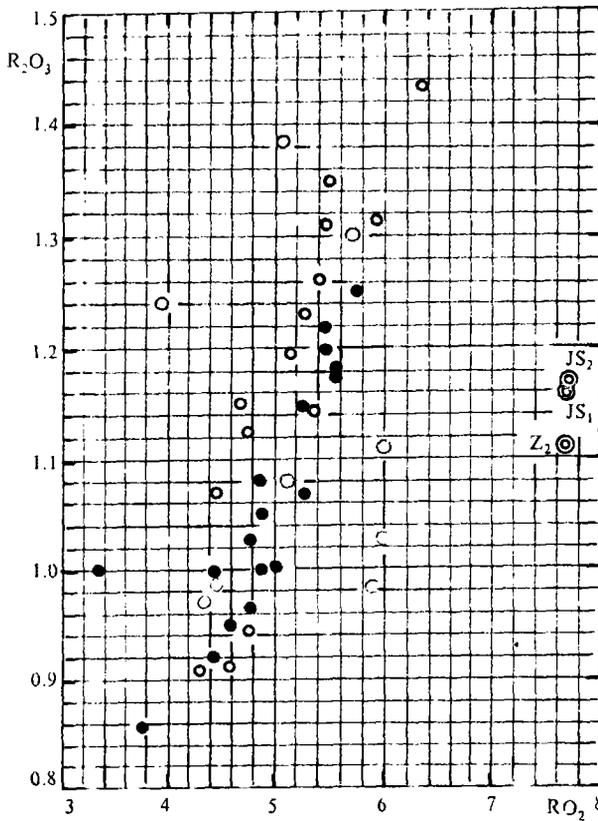


图 4 NT 油滴建盏成份在釉式图中的位置

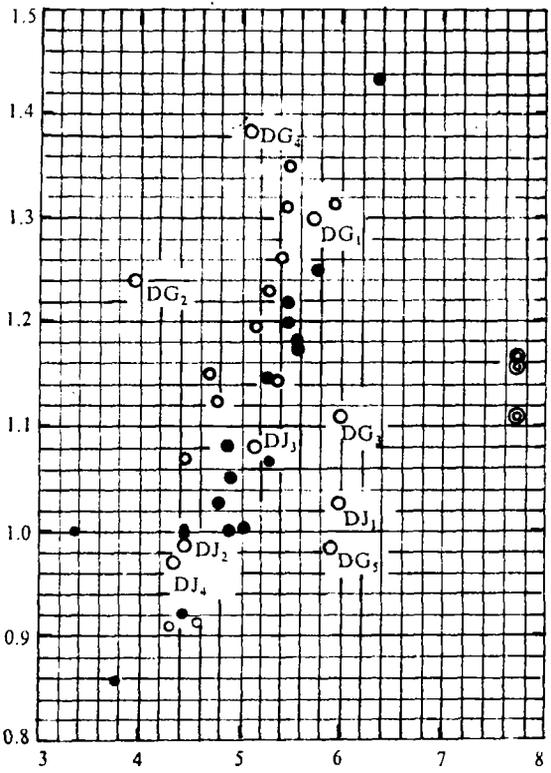


图 5 NT 油滴建盏成份在胎式图中的位置

大、小型御用建盏胎的 Fe_2O_3 含量一般为 7~8wt%，此三个试样与之相似，只有 JS2 小盏略高 (9.0wt%)。 Al_2O_3 含量为 21~22wt%，不见得低。而 SiO_2 的量在建盏中亦属中等水平。因此在成份方面没有比较突出的不同。

把数据标于胎式图中 (图 5)，我们可以看出，其成份点混处于建盏集中区。JS2 与 Z2 略偏于御用建盏一边。只有 JS1 大盏的 R_2O 、 RO 含量偏于最低。

4 NT 油滴的显微结构

在实体显微镜下, 试样釉表面的油滴斑可以看出, JS1 与 Z2 两样品的油滴斑基本相同。都有强烈的镜面反光性质。在低倍放大下可知斑点在冷却时体积变化引起收缩, 其表面形成许多小区反射面而每一斑点边缘却光滑闪亮。JS2 的斑点则全然不同。肉眼观察本来已经反射不强烈, 在低倍放大如一团团白云, 部分云团沉入釉面之下。云中有树枝状的流纹界线。这种结构我们是第一次看到。它与 40 年前山崎一雄院士研究大佛次郎收藏的曜变天目中的低倍斑点结构相似^{(6) (7)}。当然 JS2 的斑点是不变彩的。大佛建盏, 其油滴斑强烈变彩, 但既有别于著名的三只曜变, 也有别于著名的油滴建盏。Z2 样品已由 TEM 和 MED 证实油滴晶花是由 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 和 $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 微晶混合, 在釉表面按一定的 $\{hkl\}$ 晶面平行于表面所组成。在制备 TEM 用样品时, 如萃取彻底, 釉面会留下反射率与釉相同的可察觉的微凹面。

制成抛光薄片在 POM 下观察可知, JS2 号釉黄色透明。黄色为釉中含 Fe_2O_3 使之呈色所致。从胎釉界面到釉表面, 黄色变深, 可知它具有 Fe_2O_3 的浓度梯度而以釉表面为最高。釉内几乎无泡, 未反应完全的原料残留颗粒也甚少。残留石英小颗粒的周边则被高倍物镜可分辨的犬齿状方石英所包围, 状如一只小爬虫。未全部溶解于釉熔体中的黏土团粒在高温下因铝离子扩散和莫来石 (A_3S_2) 重晶而在颗粒周围析出莫来石 A_3S_2 针晶; 整个残留黏土粒状如刺毛虫。可称为 A_3S_2 刺毛虫, 在釉表面, 不时可以看到有一薄层的氧化铁微晶成针状交叉, 往釉面下方生长。它们在正交偏光镜下呈非全消光和暗红色, 由此可知为 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 微晶。这些部位实际上是垂直釉表面磨制显微镜试片时, 横切于油滴斑的地方。这种油滴微晶析晶层的厚度据镜下测定为 $< 10\mu\text{m}$ 。

在胎、釉界面, 它与其他建盏不同, 没有钙长石 (CaSi_2) 晶层, 界面参差不齐, 高倍镜下可以看出大部分都是大、中、小颗粒土块上生长的 A_3S_2 针晶, 小块则成小毛虫, 石英小颗粒则变为有石英核心的方石英小爬虫, 某些地方偶有 CaSi_2 晶花析出。

胎由一定量的大、中、小颗粒石英和多量的大、中、小颗粒的含铁黏土团粒所组成。未发现呈二轴晶负光性干涉图的钙长石粗粒。在烧成的高温下, 根据 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2\text{-FeO}$ 相图, 含铁黏土团内部于 1130°C 开始出现液相, 致使在 10 至 12 号锥的最高温度下成份处于莫来石初晶区的黏土粒在冷却时已经在液相存在下析出晶体排列规整的莫来石微晶, 形成在光学显微镜下清楚可见的席子状莫来石群。在 TEM 下这种结构十分鲜明, 如图 6 所示。在高温下其中的石英颗粒已有熔蚀边, 在镜下可以看到红蓝色各一的贝克线, 据此可知其周围已有亚微米方石英析出。小颗粒的石英则偶见有方石英犬齿周边。这种结构与大型御用建盏的胎结构相似。JS1 号试样与之相似, 只是偶见方石英小爬虫和小气泡, 未见 A_3S_2 刺毛虫。胎的结构亦如此。

用萃取复型法制样, 在 TEM 下观察油滴斑中的微晶, 其形态如棕榈叶状。高倍下亦可见到处有发育生长完整的氧化铁微晶粒。选区电子衍射 (SED) 证实组成 JS1 油滴斑

的氧化铁为 $\text{Fe}_3\text{O}_4 + \gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$, 即磁铁矿和 γ 型赤铁矿混合物。JS2 则为 $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3 + \alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$, 即 γ 型和 α 型赤铁矿微晶混合物。其形态和 SED 图分别见图 7 和图 8。

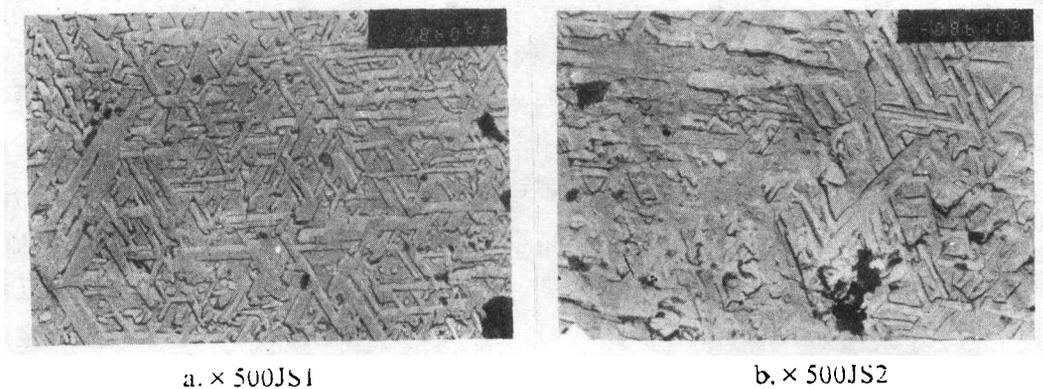


图 6 席状莫来石的电镜照片

5 NT 油滴釉的仿制与釉的沸腾效应

油滴釉一般是容易制备的, 中国的山西、陕西、山东、河北以及福建目前都制造此器。日本数代的陶艺家亦多制造和欣赏油滴釉, 欧美的陶艺家制造油滴釉器亦有高手。然而, 油滴也有千姿百态。许多人只讲究油滴器物的整体美而没有对油滴本身的特殊追求。也没有提出仿制 NT 级油滴釉的迫切愿望和技术关键。只有个别的瓷家愿意发表其制造油滴釉的心得⁽⁸⁾。

与其他许多古陶瓷不同, 建窑的烧成温度相当高。一般中国古瓷大多在 1300°C 以下烧制, 而建窑则至少高于这一温度, 许多器物甚至烧至 1350°C , 在这种情况下, 釉中物理—化学反应激烈。在高温下釉中的 Fe_2O_3 亦不稳定, 会按下式反应, 即 $3\text{Fe}_2\text{O}_3 = 2\text{Fe}_3\text{O}_4 + 1/2\text{O}_2$, 而放出氧。同时烧成过程中被釉熔体封闭于胎, 釉中的气泡在高温下体积迅速膨胀从各个部位冲出釉面, 加之高温下熔体黏度迅速下降, 气泡冲出的速度加快。在釉中气泡由小变大, 到达釉面时鼓胀起来, 然后冲破釉面, 形成一个个火山口。此时釉面一方面缓慢向下流淌, 一方面旧的火山口逐渐愈合、平复, 新的火山口又不断出现, 形成了釉面的“沸腾”现象。以体视学方法测定了 DG4 号供御建窑沸腾时的某一时间间隔内釉泡的密度为 $X = 229.2\text{N}/\text{cm}^2$ ($\sigma_n = 35$, 视域数 24), 即每毫米平方 (mm^2) 已有泡 >2 个。可知建窑的沸腾效应是十分激烈的。

油滴釉和兔毫釉都可以从釉的沸腾效应中诞生。它们由于釉的配方不同, 导致了釉的烧成温度的差异以及在给定温度下釉的粘度的差别。釉的流淌速度快使釉泡带到釉面的氧化铁微晶往下随机漂流, 逐步分散开来, 在它们流淌的路途上留下了长长的轨迹而形成兔毫纹。但是油滴釉特别是 NT 类型, 根据化学分析数据, 因熔剂含量较低, SiO_2 含量较高在相同的高温烧成下其粘度比兔毫釉高, 整个烧成过程中釉流淌极慢 (两个 NT 油滴残

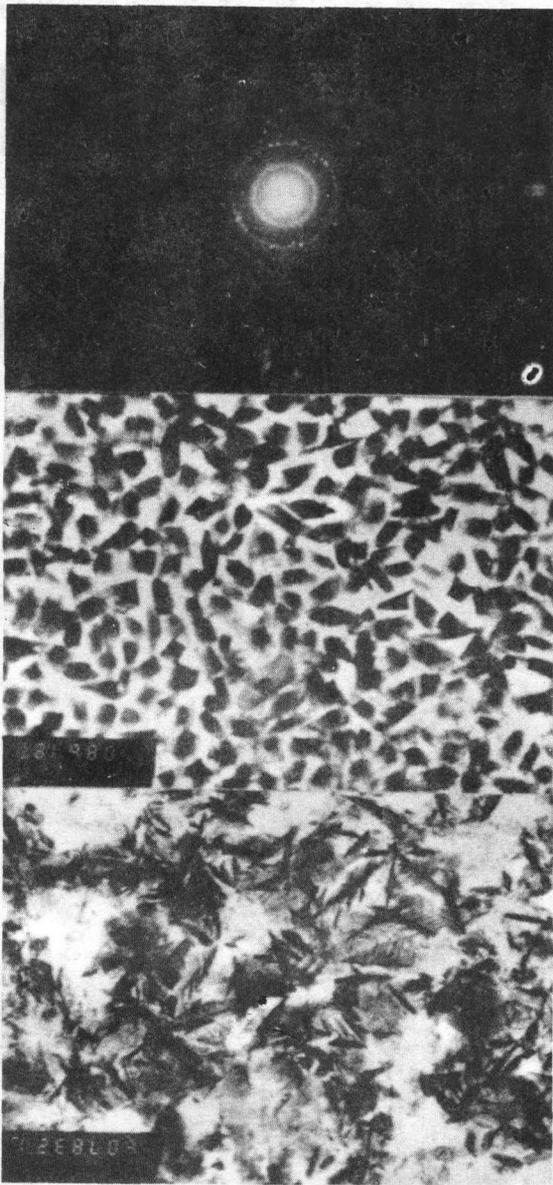


图7 JS1油滴斑的结构

微晶为 γ 和 α 赤铁矿的混合物。但因为它们从釉中析出时是在跟随气泡往釉而冲出的路程中,每个微晶的成核快而生长慢,形成大的集团随气泡上升而翻滚,终于到达表面。当火山口平复后,已经来不及在釉表面而形成大面积的镜面微晶层了。

6 结 论

根据目前仅有的三块出土的稀珍油滴建盏残片的科学研究,得到了如下的结论:

(1)建窑生产的NT级建盏油滴釉的秘方明显与其它建盏不同,其化学组成倾向于低

片都流不成滴珠)。火山口的愈合使该处有成核的机会, Fe_2O_3 微晶由此析晶而形成整体性的油晶晶花反射镜面。若一个斑点中有无数晶核形成了许多微晶晶花并且在冷却时该处又发生收缩,因而破坏了它的大面积的镜面而成为破碎的无数反射面。这就会在宏观上产生类似JS1和Z2样品的油滴结构。许多油滴釉陶艺家对上述情况都有深刻体会,但是对油滴斑的表面结构及其反射率却不一定十分讲究。欧洲陶艺家Jean Gircl是天目瓷特别是油滴釉的高手^[9],她特别强调油滴天目瓷烧成时的沸腾效应并提供了气泡未爆破时氧化铁晶花已开始成核并析晶的直接证据,她十分重视油滴斑的镜面反射率,作了改善含铁油滴斑反射率的若干添加剂的研究^[10]。必须指出的是,许多油晶晶花具有一个析晶核心,晶体在釉熔体表面上生长时发育成水平如镜,连在一起类似雪花那样的整体晶花。在这种情况下,即使釉液流动速度加快,但是晶花像一叶水面漂浮的浮萍那样,亦整体随釉漂流而不致散碎,甚至各个晶花流到一起互相接触,流到碗的下部。因此油晶晶花的结构好坏也是一个能否制出优良油滴盏的重要技术因素。

JS2油滴的结构完全不同。虽然它们是由无数的氧化铁所构成,由于氧化气

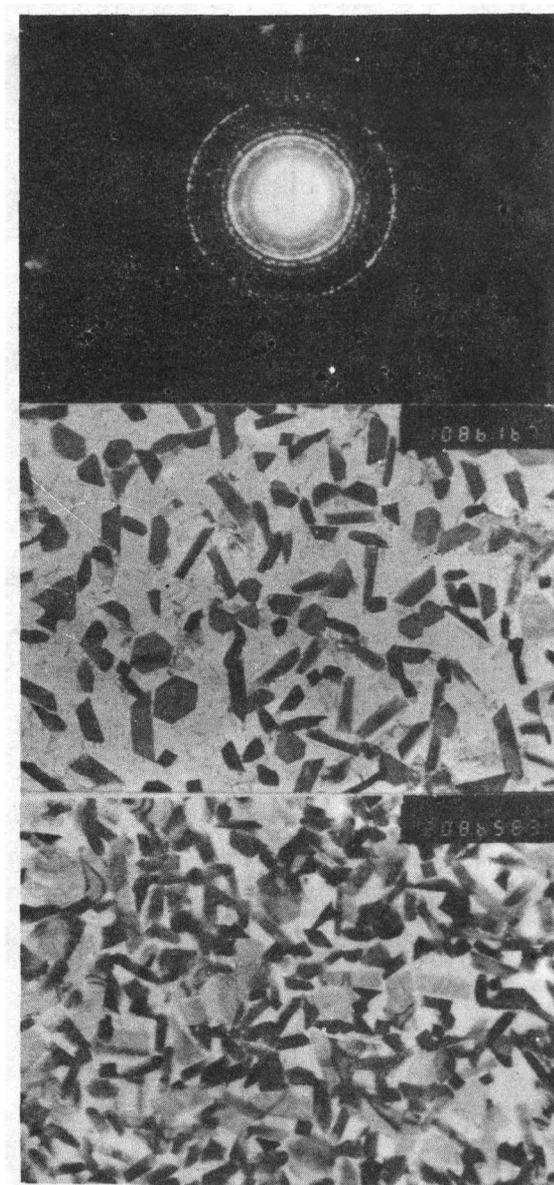


图8 JS2油滴斑的结构

Fe_2O_3 、低 Al_2O_3 和高 SiO_2 ，是这类油滴釉的特点。

(2)该类建盏的胎与其他类型建盏雷同。由石英颗粒与含铁黏土颗粒组成，高温烧成后的由主晶相石英、发育良好的席状莫来石、方石英微晶以及含铁玻璃相所组成。

(3)仿制时，若要直追国宝油滴建盏传世珍品的神韵，除了必须要正确配方外，应在适当的工艺条件下注意改善油滴斑发育的微晶结构和提高油滴斑反射率的技术。

参 考 文 献

- [1]陈显求, 陈士萍.建盏珍品的研究.景德镇陶瓷学院学报, Vol.12[4], 25-32(1991)
- [2]小山富士夫.《天目》陶瓷大系.38, P122, Fig.13-18,平凡社(1980)
- [3]陈显求, 黄瑞福, 曾凡.宋代稀珍油滴和羽毛建盏残片的研究.ISAC '95论文集(1995)
- [4]金泽阳.づらま—教授采集の天目碗.出光美术馆馆报.29,24-31 (1979)
- [5]陈显求, 黄瑞福, 周学林, 孙建兴, 栗金旺.大型御用建盏的研究.ISAC '95论文集(1995)
- [6]山崎一雄.曜变天目の研究(续报).古文化财の科学.[10]1-3(1955)
- [7]Kazuo Yamasaki and Fujio Koyama. The Yohen Temmoku Bowls. Oriental Art. vol. 13 [2] 1-5, (1967)
- [8]F.Daniel. Oil Spot Glazes. Ceramic Review. [69] 7-9 (1981)
- [9]Jean Girel. FOURRURE DELIEVRE. A propos d' un bol Jian des Collections Baur. 《Collection Baur》47 Automne-Hiver(1988)
- [10]私人消息