

笠間焼の新素地・新釉薬の開発

吉田 博和* 尾上 彩* 常世田 茂** 佐藤 剛**

1. はじめに

笠間焼協同組合は、笠間単味と笠間ブレンド土を生産販売している。笠間単味は笠間産粘土のみを精製した陶土で、粘りが強くロクロによる成形性が非常に良い反面、乾燥や焼成に伴う収縮が大きい等の欠点を持つ。笠間ブレンド土は、笠間単味の欠点を改善するため、他産地粘土を高い割合で配合している陶土である。

笠間焼協同組合では、笠間焼産地ならではのモノづくりやコストの観点等から、笠間ブレンド土における笠間単味の配合割合を高める事が課題となっている。また、笠間単味を素地とした製品を特に「純・笠間焼」と称し、笠間産粘土の独特の発色や表情を活かした製品開発や販路拡大等を目指した活動を行っている。

2. 目的

笠間単味の配合割合を可能な限り高めつつ、従来の笠間ブレンド土より収縮が小さく、焼成温度幅が広い、新たな笠間ブレンド土への改良を試みた。具体的には、乾燥収縮率が5%以下、1230~1270℃焼成における煮沸吸水率が3%以下を目標とした。

また、笠間産原料にこだわった陶器製品「純・笠間焼」のコンセプトに適応する釉薬の開発を目標として、通常は素地となる笠間単味を釉薬原料として利用するための基礎的な試験等を行ったので併せて報告する。

3. 笠間ブレンド土の配合改良

3.1 使用原料

主原料として笠間単味を、副原料として「赤福」(粘土/マル宗陶料)と珪砂2種(N80, N90/日瓢礦業)を用いて素地配合試験を行った。

蛍光X線分析(島津製作所 XRF-1700)による各原料の元素分析値と、ノルム計算による鉱物組成比を表1に示す。N80, N90の元素組成について、いずれも長石分由来のナトリウム(Na₂O)、カリウム(K₂O)や、長石分や粘土分に由来するアルミニウム(Al₂O₃)を含み、更には鉄(Fe₂O₃)も少なからず含まれているが、N80の方がN90よりも珪素(SiO₂)の含有量が多い。

図1に、各原料のX線回折図(理学 RINT Ultima⁺)を示した。N80とN90を比較すると、いずれも石英の強い回折線が見られるほか、粘土鉱物や長石によるピークも見られるが、これらのピークはN90の方が顕著である。

粒度は、N80は150メッシュ以上が39%、150メッシュ以下が61%と粒子が比較的粗いのに対し、N90は150メッシュ以下が98%と比較的細かい。

3.2 試験片作製と評価方法

笠間単味と赤福は脱水ケーキ状で入手し、十分に天日乾燥し、磁製乳鉢等で乾粉とした。これを表2に示した配合比で原料粉末を計量し、含水率が20~25%と

表1 原料の元素組成と鉱物組成 (wt%)

	笠間単味	赤福	N80	N90
LOI	8.9	6.7	0.6	2.0
SiO ₂	56.3	65.9	89.4	78.8
Al ₂ O ₃	26.2	22.4	5.2	10.7
Fe ₂ O ₃	4.4	1.7	2.2	3.7
TiO ₂	0.8	0.5	0.2	0.4
CaO	0.3	0.4	0.1	0.2
MgO	0.7	0.4	0.8	1.5
K ₂ O	1.7	1.6	0.9	2.0
Na ₂ O	0.5	0.3	0.2	0.3
粘土	59.1	49.4	6.5	15.2
長石	16.0	14.4	6.6	17.8
石英	19.6	34.6	85.0	62.5
鉄分	4.4	1.8	2.1	4.4
有機物等	0.8	0	0	0.1

*LOI: Loss On Ignition (強熱減量)

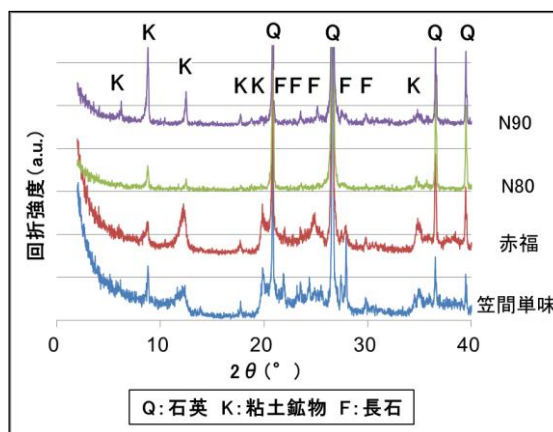


図1 原料のX線回折図

なる様に水を加えながら混練した。この練り土から石膏型を用いて125×25×10 mm程度の板状に成形した。石膏型からの脱型直後にノギスで100 mmの長さの印を付けた。十分に自然乾燥後、ノギスの印の長さを計測し、電気炉で焼成し自然冷却した。酸化焼成は、最高温度を1210, 1230, 1250, 1270, 1290℃の5条件として、最高温度まで100℃/hrで昇温し、1 hr保持した。還元焼成は、950℃まで100℃/hrで昇温し、950℃以上は炉内を還元雰囲気とし50℃/hrで昇温し、最高温度1250℃で1 hr保持した。焼成終了後、ノギスの印の長さを計測した。ノギスの印の長さの変化から乾燥収縮率、焼成収縮率、全収縮率を算出した。また、各条件で焼成した後、室温まで自然冷却した直後の試験片重量(乾燥重量)と、これを3時間以上煮沸した時の試験片重量(吸水重量)から煮沸吸水率を算出した。

表2 原料配合比 (%)

配合	笠間単味	赤福	N90	N80
1-1	100			
1-2	60	40		
1-3	50	50		
1-4	40	60		
2-1	70	20	10	
2-2	60	30	10	
2-3	50	40	10	
2-4	40	50	10	
2-5	70	20		10
2-6	60	30		10
3-1	50	42	8	
3-2	50	40	10	
3-3	60	35		5
3-4	60	32		8
3-5	50	45		5
3-6	50	42		8

3.3 乾燥収縮率

乾燥収縮率の結果を表3に示す。笠間ブレンド土の乾燥収縮率は5.4%であり、これを下回るものは得られなかった。しかし、笠間単味が40~50%の配合では、これをわずかに上回る程度のもので多く、今回用いた珪砂は乾燥収縮を抑える効果は十分にあり、10%程度配合することで、従来の笠間ブレンド土と同等程度の乾燥収縮にできることが分かった。

笠間単味が60~70%の配合では、従来の笠間ブレンド土と同等とは言い難く、6.0%を超えるものが多かった。ただし、笠間単味60%でN80を5, 8, 10%とした配合3-3, 3-4, 2-6は、N80配合比の増加とともに、乾燥収縮が低下し、配合2-6では乾燥収縮率が5.7%となり、従来の笠間ブレンド土と同等と言える許容範囲内と考えている。N80配合比を更に増加させれば、笠間単味が60%以上の配合でも乾燥収縮率5.4%以下という目標を達成できると考えられるが、煮沸吸水率や成形性の悪化が懸念される。

配合2-1と2-5, 2-2と2-6は、用いた珪砂の種類のみが異なるものであるが、N90を用いた配合よりN80を用いた配合の方が乾燥収縮率は小さい。つまり、より粗粒のN80の方が乾燥収縮を抑制する効果が強い。

3.4 焼結性 (焼成収縮率および煮沸吸水率)

笠間単味60%及び50%とした素地の焼成収縮率を図2, 3に示す。笠間単味60%の場合(図2), いずれも1270℃から1290℃にかけて焼成収縮率が低下した。笠間単味は耐火度が低いため、1290℃焼成ではブクが発生しているためである。珪砂を10%程度配合すると、収縮率を低下させることができるが、耐火度を大きく改善するには至らないことが分かった。なお、N80配合比の増加に伴って、焼成収縮は低下しているが、N90でも同様の傾向が見られた。笠間単味50%の場合(図3), 珪砂0% (配合1-3)では顕著なブクが

現れず、N80を用いた配合3-5, 3-6でもブクの傾向は見られなかったが、焼結を促進する長石分も多いN90を用いた配合では、いずれも1290℃でブク発生に伴う焼成収縮率の低下が見られた。

表3 乾燥収縮率 (%)

No.	配合比 (%)				乾燥収縮率
	笠間単味	赤福	N90	N80	
1-1	100				7.6
2-1	70	20	10		6.2
2-5		20		10	6.0
1-2	60	40			6.7
2-2		30	10		6.1
3-3		35		5	6.1
3-4		32		8	5.9
2-6		30		10	5.7
1-3	50	50			6.1
3-1		42	8		5.6
2-3		40	10		5.8
3-2		38	12		5.5
3-5		45		5	5.7
3-6		42		8	5.8
1-4	40	60			6.0
2-4		50	10		5.4
笠間ブレンド土					5.4

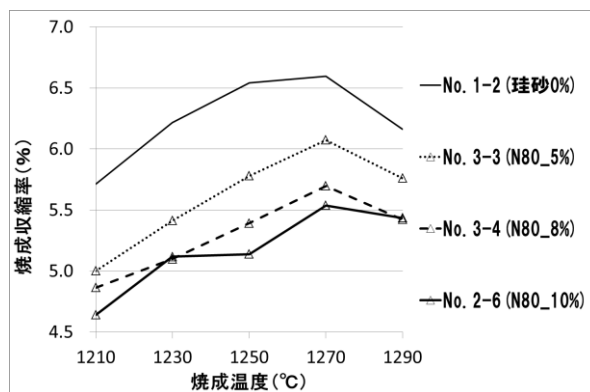


図2 笠間単味60%の焼成収縮率

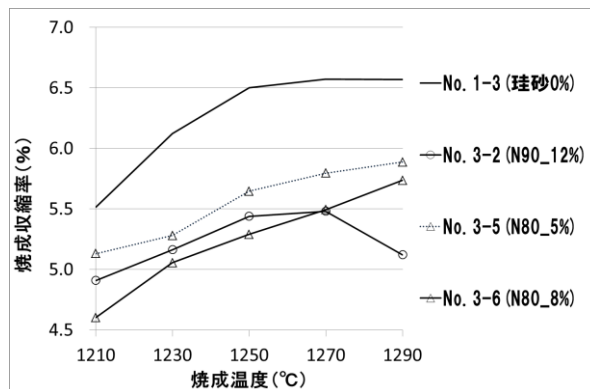


図3 笠間単味50%の焼成収縮率

表4に1250℃焼成した素地の煮沸吸水率を示した。笠間ブレンド土の煮沸吸水率は4.3%（酸化焼成）であるが、食器に用いる素地はより低吸水率の方が好ましく、3%以下を目標とした。N90を用いた配合では全配合が笠間ブレンド土の数値を大幅に下回り、3%以下という目標値も満たしている。一方、N80を用いた配合は、酸化焼成で4~5%であり、やや高い数値である。

笠間単味60%及び50%とした素地の煮沸吸水率を図4、5に示す。珪砂を配合していない笠間単味-赤福の2原料配合による素地と比較すると、N80を用いると吸水率が大きく上昇し、N90を用いると若干下降する傾向が見られた。N80は、珪砂本来の性質である耐火度を上げる作用を示したのに対し、N90は前述の通り珪石分の他に長石分も多く含有しており、長石分が焼結促進に作用したためと考えられる。

表4 1250℃焼成の煮沸吸水率 (%)

配合	原料配合比 (%)				酸化焼成	還元焼成
	単味	赤福	N90	N80		
1-1	100				0.6	0.5
2-1	70	20	10		0.8	0.7
2-5		20		10	4.4	3.1
1-2	60	40			1.9	0.8
2-2		30	10		1.1	1.0
3-3		35		5	4.0	0.8
3-4		32		8	4.1	1.0
2-6		30		10	4.6	4.3
3-7		30	5	5	3.6	1.0
1-3	50	50			2.9	1.0
3-1		42	8		2.0	0.7
2-3		40	10		1.4	1.2
3-2		38	12		1.6	0.7
3-5		45		5	4.0	1.0
3-6		42		8	5.0	1.2
1-4	40	60			3.8	1.4
2-4		50	10		3.0	2.3
笠間ブレンド土					4.3	2.2

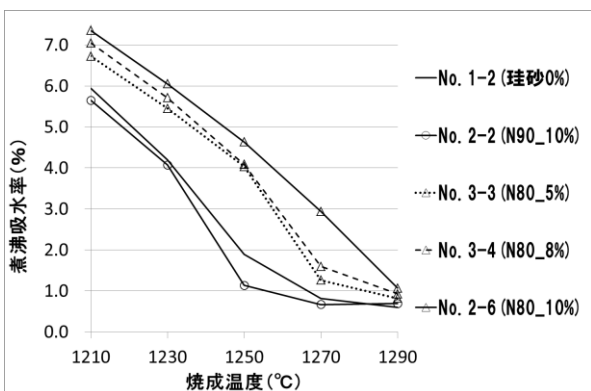


図4 笠間単味60%の煮沸吸水率

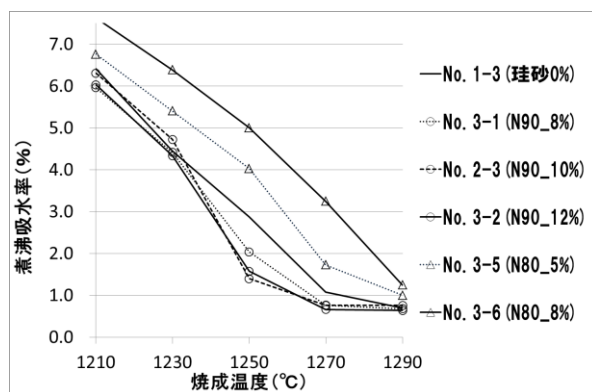


図5 笠間単味50%の煮沸吸水率

3.5 従来の笠間ブレンド土との比較

珪砂を配合した素地と従来の笠間ブレンド土の物性を比較した結果を表5に示す。乾燥収縮率については、前述の通り従来の笠間ブレンド土より低い数値の配合は得られなかったが、N80を用いた場合は笠間単味が40~60%で、N90を用いた場合は笠間単味が40~50%で許容範囲内と言える配合が得られた。焼成収縮率や全体収縮率については、概ね笠間ブレンド土と同等以上の性質が得られた。煮沸吸水率については、N90を用いた素地は、全配合が全焼成温度において、笠間ブレンド土より顕著に低い。一方、N80を用いた場合、笠間単味60%では配合2-6（N80配合比10%）で、笠間単味50%では配合3-6（N80配合比8%）で笠間ブレンド土の煮沸吸水率を上回っているため、これらの場合はN80が過剰であると判断した。

表5 笠間ブレンド土との性状比較

配合	原料配合比 (%)				乾燥収縮率	焼成収縮率	全体収縮率	煮沸吸水率	
	単味	赤福	N90	N80					
2-1	70	20	10		×	△	×	◎	
2-5		20		10	×	○	○	△	
2-2	60	30	10		×	○	△	◎	
3-3		35		5	×	○	×	○	
3-4		32		8	△	○	○	○	
2-6		30		10	△	○	○	△~×	
3-1	50	42	8		△	△	△	◎	
2-3		40	10		△	○	△	◎	
3-2		38	12		△	○	○	◎	
3-5		45		5	△	○	○	○	
3-6		42		8	△	○	○	×	
2-4		40	50	10		○	○	◎	
笠間ブレンド土 (基準)					1210℃		5.1%	10.3%	7.4%
					1230℃		5.5%	10.6%	5.9%
					1250℃	5.4%	6.2%	11.3%	4.3%
					1270℃	6.1%	11.3%	1.7%	
					1290℃	6.2%	11.4%	0.9%	

笠間ブレンド土との比較 ◎:優 ○:良 △:可 ×:不可

4. 笠間産資源を原料とした釉薬開発

「純・笠間焼」に使用する事を想定し、原料として笠間産資源を含む釉薬開発を行った。また、当産地において最高温度を1250℃前後として焼成するのが主流であるが、笠間単味は耐火度が低いため「純・笠間焼」は、1230℃以下での焼成を推奨している。このため、1220～1250℃の範囲で使用可能な釉薬開発を行った。

4.1 使用原料

笠間産原料として、通常は素地として用いられている笠間単味や、これまであまり釉薬原料として注目されていなかった手越陶石（笠間市手越地区産）を含む三角座標による釉薬配合試験を行った。更に、これらの釉薬原料としての特徴を踏まえ、5種類の釉薬開発を行った。使用した原料の元素分析値を表6に示す。

表6 原料の元素組成 (wt%)

	笠間単味	手越陶石	福島長石	合成藁灰	合成土灰	AAカオリン
LOI	8.9	2.9	0.3	1.5	33.8	13.3
SiO ₂	56.3	71.1	64.0	80.6	18.2	42.8
Al ₂ O ₃	26.2	18.3	22.8	7.7	3.4	42.6
Fe ₂ O ₃	4.4	0.9	0.1	0.1	0.1	0.5
TiO ₂	0.8	0.1	-	-	0.1	0.2
CaO	0.3	0.4	0.1	2.9	33.6	tr.
MgO	0.7	0.6	-	1.2	8.1	-
K ₂ O	1.7	4.6	10.3	2.8	0.2	0.5
Na ₂ O	0.5	1.2	2.4	0.9	tr.	tr.

4.2 三角座標による釉薬配合試験

笠間単味—福島長石—合成土灰、手越陶石—合成土灰—合成藁灰の3原料による釉薬配合試験を行った。焼成は、3.2と同様の方法で酸化焼成1230℃、1250℃、還元焼成1250℃の3条件で行なった。

笠間単味を含む三角座標では、笠間単味の配合割合が60%を超えると概ね茶～黄土色のマット質の釉となり、笠間単味20～50%程度で笠間単味に含まれる鉄分由来する発色となった。つまり、酸化焼成で淡黄色、還元焼成で薄青緑を帯びた発色が得られた。手越陶石を含む三角座標では、一般的な陶石—合成土灰—合成藁灰の系と同様の傾向が見られた（図5）。

笠間単味は鉄分の多い粘土質原料、手越陶石は一般的な長石質原料として、釉薬に利用可能であることが確認できた。

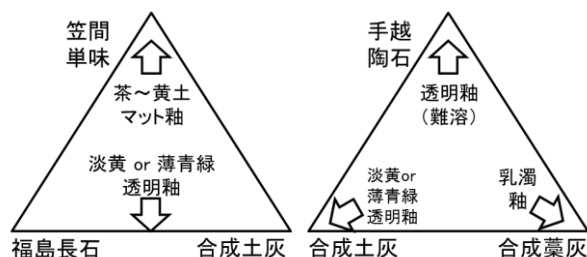


図5 三角座標による釉薬配合試験

4.3 「純・笠間焼」用の釉薬開発

笠間単味や手越陶石を含む三角座標による釉薬配合試験の結果を受け、「純・笠間焼」に用いることを視野に入れた釉薬開発を行った。表7に開発した釉薬の原料配合例とゼーゲル式を示す。これらの釉薬は、笠間焼産地で伝統的に用いられ、現在でもよく使用されている釉薬である。

白マット釉は、よりマット調の釉を得るためにAAカオリンを外割で添加している。黒釉、赤茶マット釉では、笠間単味だけでは不足する鉄分を弁柄で補った。藁白釉は、三角座標の試験から得られた3原料による配合である。青糠釉は、酸化銅を添加した釉で酸化焼成により青味を帯びた緑色が得られる。

表7 開発した釉薬の配合比とゼーゲル式

白マット釉	笠間単味 30%, 福島長石 20%, 合成土灰 50%, AAカオリン 10%		
	0.08KNaO	0.40Al ₂ O ₃	1.6SiO ₂
	0.68CaO	SiO ₂ /Al ₂ O ₃ = 4.0	
黒釉	笠間単味 30%, 福島長石 50%, 合成土灰 20%, 弁柄 8%		
	0.33KNaO	0.78Al ₂ O ₃	3.5SiO ₂
	0.49CaO	SiO ₂ /Al ₂ O ₃ = 4.5	
柿マット釉	笠間単味 40%, 福島長石 30%, 合成土灰 30%, 弁柄 8%		
	0.18KNaO	0.59Al ₂ O ₃	2.6SiO ₂
	0.60CaO	SiO ₂ /Al ₂ O ₃ = 4.4	
藁白釉	手越陶石 30%, 合成藁灰 35%, 合成土灰 35%		
	0.11KNaO	0.26Al ₂ O ₃	2.7SiO ₂
	0.65CaO	SiO ₂ /Al ₂ O ₃ = 10.4	
青糠釉	手越陶石 35%, 合成藁灰 35%, 合成土灰 30%, 酸化銅 1%		
	0.13KNaO	0.31Al ₂ O ₃	3.1SiO ₂
	0.63CaO	SiO ₂ /Al ₂ O ₃ = 10.0	

5. まとめ

笠間ブレンド土の改良について、笠間単味 60%とした場合は N80 を 8%、笠間単味 50%の場合は N90 を 8～12%または N80 を 5%配合することで、従来の笠間ブレンド土と同等の性状を持つ素地が得られた。乾燥収縮等に課題が残ったため、笠間焼協同組合では更に配合改良を進めている。

より「純・笠間焼」と呼ぶにふさわしい商品開発を支援するべく、笠間産資源を原料とした釉薬を5種類開発した。既に業界への配合提案を行っており、数軒の工房で試作段階にある。今後、「純・笠間焼」用釉薬の種類を増やすため配合試験を継続するとともに、「純・笠間焼」の商品開発を支援していく予定である。