

笠間産資源を原料とする釉薬の開発（第2報）

吉田 博和* 南部 比呂美* 根本 達志**

1. はじめに

笠間焼産地は、様々な原料や技法により、多種多様な商品を生産しているのが特徴である。一方で、産地を象徴する商品群の創出が課題となっている。

笠間焼協同組合では、笠間産粘土のみを精製した「笠間単味」を素地とする陶器を特に「純・笠間焼」と呼び、笠間焼産地ならではの商品開発促進や販路拡大を目的とした活動を行っている。

2. 目的

純・笠間焼は、素地に笠間単味を用いることが特徴であり、釉薬に関して規則や推奨配合等はない。本研究は、純・笠間焼のコンセプトに沿った釉薬開発を目指している。つまり、笠間産資源を原料に使い、その特徴を活かした釉薬の開発を目的としている。

3. 研究内容

3.1 使用原料

既報^{1,2)}では、笠間産資源として笠間単味、手越陶石、栗剪定枝焼却灰を用いた釉薬開発について報告した。本報では、箱田石を用いた釉薬開発について報告する。箱田石は、笠間市箱田地区の採石場から採取されるもので、鉄分が多く軟らかい土石（砂岩）である。主に土木工事の埋立材料として用いられており、釉薬原料としては未利用の資源である。

箱田石は、35℃に設定した乾燥機内で乾燥し、ジョークラッシャーで粗粉碎し、フレットミルで更に粉碎した。得られた粉末を80メッシュの篩に通し、通過したものを釉薬配合試験に用いた。それ以外は、市販の釉薬原料をそのまま用いた。主要な使用原料の蛍光X線分析による元素分析結果を表1に示した。

3.2 釉薬試験片の作製方法

石膏型を用いて素地を成形し、自然乾燥後、電気炉により最高温度を800℃とした素焼を行った。この素焼素地を、遊星回転ボールミルで予め湿式粉碎・混合した釉薬泥漿に浸して施釉したものを電気炉で本焼成した。素地の違いによる釉調や発色への影響を検討するため、赤素地笠間土及び白素地特漉の2種類の素地で試験片を作製した。また、焼成条件の影響を検討するため、本焼成は表2の3条件で行った。

3.3 釉薬配合試験

笠間焼の伝統的な釉薬であり、なおかつ現在でも産地内でよく利用されている黒釉と飴釉の開発を行った。第一段階として箱田石の釉薬原料としての特性を把握するため、表3に示す三角座標で釉薬配合試験を行なった。この結果をふまえて、種々の添加材を加え、黒釉や飴釉の釉調や発色の改良を試みた。

表1 主要な釉薬原料の元素組成(wt%)

	箱田石	合成土灰	合成藁灰	福島長石
LOI	4.8	33.7	1.5	0.3
SiO ₂	61.1	17.8	80.7	63.6
Al ₂ O ₃	18.3	3.3	7.5	22.9
Fe ₂ O ₃	5.7	0.1	0.1	0.1
TiO ₂	0.7	0.1	—	—
MnO	0.1	—	—	—
CaO	0.9	34.5	2.9	0.1
MgO	4.5	7.6	1.2	—
K ₂ O	2.3	0.2	2.9	10.5
Na ₂ O	1.4	0.1	0.9	2.5
P ₂ O ₅	0.1	2.5	2.4	0.1

表2 焼成条件

	焼成雰囲気	最高温度	昇温条件, 最高温度保持
1	酸化	1230℃	100℃/hr で昇温, 最高温度で1hr 保持
2		1250℃	
3	還元	1250℃	室温～950℃ : 100℃/hr, 950～1250℃ : 50℃/hr, 1250℃ : 1hr 保持 (還元雰囲気 : 950℃～)

表3 三角座標の3原料と配合範囲

三角座標 I	箱田石 10～100%	合成土灰 0～90%	合成藁灰 0～90%
三角座標 II	箱田石 10～100%	合成土灰 0～90%	福島長石 0～90%
三角座標 III	箱田石 10～90%	ドロマイト 10～90%	福島長石 0～80%

3.4 結果

3.4.1 三角座標形式による釉薬配合試験

表1の通り、箱田石は鉄分が多く、他産地で産出され釉薬原料として利用されている赤粉や来待石といった含鉄土石類と類似した元素組成³⁾を持ち、これらに替わる原料としての利用が期待できる。三角座標 I, II の試験結果の概要を図1に示したが、箱田石の鉄分由来する様々な釉調・発色の鉄釉が得られた。

酸化焼成では、三角座標 I, II ともに合成土灰が10～20%かつ箱田石が50%以上の比較的広い範囲で光沢のある黒釉が得られ、箱田石の割合が減少するに伴い、茶色味を増した。合成土灰が30～40%程度で飴

釉と呼べる茶色の光沢釉が得られ、50%以上では合成土灰が増加するのに伴い、うぐいす色～渋い黄色で伊羅保釉や条痕釉に分類できる釉薬が得られた。

還元焼成では、三角座標Ⅰ、Ⅱともに合成土灰が0～20%かつ箱田石が50%以上の範囲で一部に柿釉と呼べる渋味のある茶褐色のマット調の釉薬が得られた。現段階では、この柿釉については今後詳細に検討したいと考えている。合成土灰が30%以上では、釉調・発色ともに酸化焼成とほぼ同様の変化が見られたが、一部に青磁釉が得られた。

なお、三角座標Ⅲでは融材としてドロマイトを用いたが、合成土灰を用いた三角座標Ⅰ、Ⅱと比較すると、全体的に釉調や発色が悪く、目的とする黒釉や飴釉の開発には、合成土灰の方が適していると判断した。

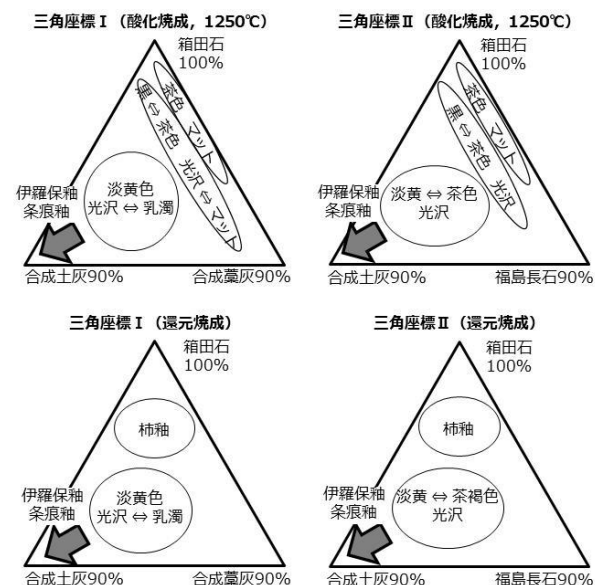


図1 三角座標の試験結果

3.4.2 添加材による黒釉の改良

三角座標Ⅱから選択した釉薬に、着色酸化金属を添加し、発色の調整を試みた。ここで用いた着色酸化金属は、酸化クロム（外割0.5～1.0%）、酸化コバルト（外割0.5～1.0%）、酸化マンガン（外割2.0%）である。また、これらの着色酸化金属を複数加えるクロスブレンドの試験も実施した。酸化コバルト添加では黒味を増し、酸化クロム添加では茶色味を増す等、発色の変化の傾向を把握することができた。発色が微妙に異なる様々な黒釉が得られたが、代表的な釉薬の原料配合比とゼーゲル式を表4の①に、その試作品を図2に示した。表4では酸化コバルト0.5%（外割）添加としているが、これは還元焼成でも黒い発色を得るためである。酸化コバルトを添加しない場合、酸化焼成では黒い発色が得られるが、還元焼成では茶色味を帯び柿釉に近い発色となる。

3.4.3 添加材による飴釉の改良

三角座標Ⅰ、Ⅱから選択した釉薬に、釉薬の流動性を抑える目的で蛙目粘土（外割5.0～7.0%）を、発色を制御する目的で酸化マンガン（外割3.0～5.0%）を

それぞれ単独で添加または2つ同時に添加する配合試験を実施した。酸化マンガンは飴釉の飴味を増し、発色を良くすると同時に流動性を大きくしてしまう傾向が強かった。蛙目粘土により流動性を抑制できることを確認した。焼成後の流下具合（流動性）と発色の観点から最適と判断した飴釉の原料配合比とゼーゲル式を表4の②、試作品を図2に示した。

表4 釉薬の原料配合比とゼーゲル式

①黒釉					
箱田石	65%	0.31KNaO	0.70Al ₂ O ₃	4.1SiO ₂	
福島長石	25%	0.30CaO			
合成土灰	10%	0.39MgO		S/A = 5.9	
酸化コバルト	0.5% (外割)				
②飴釉					
箱田石	50%	0.09KNaO	0.34Al ₂ O ₃	2.2SiO ₂	
合成土灰	35%	0.59CaO			
合成薬灰	15%				
蛙目粘土	7% (外割)	0.32MgO		S/A = 6.5	
酸化マンガン	3% (外割)				



図2 黒釉及び飴釉を用いた試作品（塩壺、注器）

4. まとめ

笠間焼産地ならではの商品開発支援のため、箱田石を用いた黒釉と飴釉を開発した。今後、これらの釉薬については業界内への配合提案を実施し、商品開発に繋げる支援を実施していく。

また、一連の試験の過程で様々な鉄釉が得られ、課題はあるが柿釉や伊羅保釉等として利用し得る釉薬も幾つか得られたため、釉薬開発を継続する。

5. 参考文献

- 1) 吉田博和, 尾上彩, 常世田茂, 佐藤剛, 笠間焼の新素地・新釉薬の開発, 茨城県工業技術センター研究報告 第43号, p43-46 (2015)
- 2) 吉田博和, 南部比呂美, 佐藤剛, 笠間産資源を原料とする釉薬の開発, 茨城県工業技術センター研究報告 第44号, p59-60 (2016)
- 3) 加藤悦三, 「釉調合の基本」 (陶工房鳴海)