

稲田石の釉薬利用に関する基礎研究

吉田 博和* 小林 真弓* 根本 達志** 新島 佐知子**

1. はじめに

笠間焼協同組合では、笠間産原土を精製した粘土(笠間単味)を用いた陶器製品を「純・笠間焼」としてシリーズ化することにより、笠間焼の需要拡大を図る活動を行なっている。この取り組みからも明らかな通り、地域の原料を用い、笠間ならではの陶器であることをPRできる製品開発の要望や相談は多い。

2. 目的

本研究は、陶磁器原料としては未利用の地域資源で笠間を代表する特産品である稲田石(稲田御影石とも呼ばれる花崗岩の一種)を釉薬原料として利用するための基礎的な研究であり、笠間焼協同組合と共同で実施した。

稲田石の原石から砕石を製造する工程で発生する稲田石微粉末(以下、砕石粉)の性状を調査した。また、砕石粉の釉薬原料としての特徴や釉性状を把握するための試験を行った。これらにより砕石粉が有用な釉薬原料であることを確認したので報告する。

3. 研究内容

3.1 元素組成および粒度

本研究では、稲田石の原石を専門に破碎選別する砕石製造業者から入手した砕石粉を用いた。原石採掘場所や砕石粉採取時期による成分や粒度の変動は小さいと考えられるが、粉の安定性確認のため、原石や砕石粉の元素組成分析やふるい分け試験を行うこととした。

稲田石の原石採掘は、笠間市稲田地区の半径1km圏内で行なわれている。そこで、採掘場所(業者)の異なる原石6試料(A~F)について、元素組成分析を行った。砕石粉については、令和3年6月から約40日間隔で5回採取し、元素組成分析とふるい分け試験を行った。

3.1.1 元素組成分析

試料を振動ミルにより粉碎し、105℃で乾燥後に最高温度を1025℃として煅焼(かしょう)した。煅焼試料0.5gと四ホウ酸リチウム5gを混合加熱してガラスビードを作製し、波長分散型蛍光X線分析装置(株式会社島津製作所 LAB CENTER XRF-1700)を用いて、元素組成を分析した。表1に結果を示す。

各元素とも若干の差は認められるが大きな違いは見られず、原石採掘場所や砕石粉採取時期の違いによる元素組成の変動は小さいことを確認した。

3.1.2 ふるい分け試験

砕石粉3kg程度をJIS Z 8801に規定されている試験用ふるいと、電磁式ふるい振とう機(株式会社レッチェ AS200digit)により、乾式ふるい分けを行った。

それぞれのふるいを通過した質量百分率(通過率)

を表2に示す。9月14日採取試料では80メッシュ通過が89.8%にとどまったが、その他の採取日では80メッシュを90%以上通過した。加えて、20メッシュを99%以上通過し、非常に粗い粒子はほとんど混入していないことから、釉薬原料として十分に利用できる程度の微粉末と言える。

しかし、40メッシュや60メッシュを通過しない、若干粗い粒子が数%混在している。この若干粗い粒子は、そのまま用いると焼成後にも釉薬層で熔け残るなど、品質の不良を発生してしまう可能性がある。これを防止するには、製陶所や窯元・陶工房などの生産現場において一般的に行われているように、他の釉薬原料とともにポットミルにより磨砕した後に60~80メッシュ程度のふるいに通すなどの作業が必須となる。

採取日の違いによって、粒度が若干変動しているが、釉薬調製の際にポットミルによる混合磨砕や、その前後のふるい分けの作業などを一定条件で行なえば、焼成後の釉調・発色は安定化させることが可能な程度の変動と考えられる。

表1 元素組成 (wt%)

試料名		LOI	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	K ₂ O	Na ₂ O
原石 (採掘場所)	A	0.2	73.1	15.6	1.6	1.6	5.6	1.9
	B	0.2	73.7	14.9	1.5	1.6	5.8	1.8
	C	0.4	72.0	16.3	2.0	2.2	4.7	2.1
	D	0.2	74.2	14.9	2.2	2.2	3.7	2.1
	E	0.2	74.0	15.3	1.8	2.3	3.8	2.2
	F	0.2	75.5	13.8	1.7	1.3	5.5	1.6
砕石粉 (採取日)	6/23	0.4	71.9	17.8	1.0	1.9	4.0	2.7
	8/3	0.4	74.2	15.3	1.2	2.1	4.5	2.0
	9/14	0.3	74.6	14.9	1.3	2.1	4.4	2.0
	10/25	0.3	74.8	14.8	1.2	2.1	4.5	2.0
	12/13	0.4	74.3	15.1	1.3	2.1	4.5	2.0

※ LOI : Loss On Ignition (強熱減量)

表2 ふるい分け試験結果(通過率; wt%)

メッシュ番号		20	40	60	80
目開き (μm)		850	425	250	180
砕石粉 (採取日)	6/23	99.7	99.2	98.1	96.2
	8/3	99.9	99.0	96.1	92.3
	9/14	99.8	97.7	93.8	89.8
	10/25	99.7	98.6	97.6	95.5
	12/13	99.6	99.2	98.2	96.5

3.2 釉薬試験・焼成サンプル作製

3.2.1 釉薬試験

砕石粉の特徴や釉性状を調査するため、三角座標方式と、融材として用いる原料を変化させる(ネズミ石

灰など6種)方式で釉薬試験を実施した。釉薬試験片作製条件を表3、原料配合比を図1、表4に示す。

三角座標による試験では、碎石粉の配合比が高いほど、酸化焼成で淡い黄色味、還元焼成で淡い青味が強まる傾向が見られた。どちらの発色も碎石粉に含まれる鉄分に由来すると考えられる。融材変化方式では、バリウム釉の還元焼成で青磁釉、マグネサイト釉でアクセントとなる斑点が特徴的な釉が得られる(図2)ことなどが分かった。

そのほかに、市販長石を碎石粉で置換可能かの検証を行った。つまり、原料配合比率が同じで、市販長石を使用した釉薬と、市販長石を碎石粉に置換した釉薬(32種類)との対照試験を行なった(図3)。銅、コバルトなどの鉄以外の金属元素を含む着色材を用いた釉薬では、碎石粉由来の鉄が着色材本来の発色を妨げるなどの悪影響の懸念もあったが、おおむね本来の発色が得られた。また、市販長石の釉薬と碎石粉に置換した釉薬とで、釉調・発色に大差がないものや置換したもののの方が良いと感じるものが多く見られ、代替原料として碎石粉の利用可能範囲は広いと考えられる。

3.2.2 焼成サンプル作製

釉薬試験を行ったうち、表5に示す8配合については、笠間焼業界でもよく利用されている釉薬であるため、半磁器土、笠間土など複数の素地を用いて焼成サンプルを作製した(図4)。釉薬調製や施釉作業などに関して、市販長石を使用した釉薬と同じ工程で、欠陥が発生すること無く作製することができた。

表3 釉薬試験片の作製条件

釉薬調製	自動乳鉢による湿式磨砕(30分間)
素地	①笠間土 ②信楽特漉 ③半磁器土
焼成条件	最高温度 1250℃で1時間保持 ①電気炉 酸化焼成 ②電気炉 還元焼成

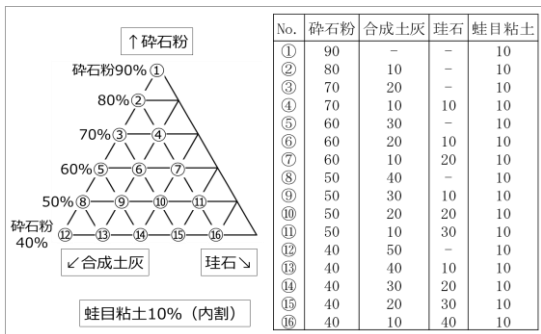


図1 三角座標方式の試験範囲 (wt%)

表4 融材変化方式の原料配合比 (wt%)

No.	碎石粉	融材*	珪目粘土
1	90	5	5
2	80	15	5
3	70	25	5
4	60	35	5

※融材：ネズミ石灰、合成土灰、ドロマイト、マグネサイト、炭酸バリウム、亜鉛華のいずれか



図2 融材変化方式釉薬試験で得られた釉薬例

	長石：福島長石	長石：碎石粉
	酸化焼成 還元焼成	酸化焼成 還元焼成
長石20% 合成土灰40%、珪目粘土30%、 珪石10%		
長石50% ネズミ石灰15%、炭酸バリウム15%、 珪目粘土2%、珪石18%、 酸化銅1%、酸化鉛3%、骨灰2%		
長石53% 合成土灰17%、珪目粘土10%、 珪石20%、酸化コバルト0.1%		

素地：笠間土 (top row), 信楽特漉 (middle and bottom rows)

図3 対照試験の例

表5 焼成サンプルの釉薬原料配合比 (重量比)

1. 合成土灰釉 碎石粉 70 合成土灰 20 珪目粘土 10	2. ドロマイト釉 碎石粉 60 ドロマイト 35 珪目粘土 5	3. マグネサイト釉 碎石粉 60 マグネサイト 35 珪目粘土 5	4. バリウム釉 碎石粉 60 炭酸バリウム 35 珪目粘土 5
5. 土灰マット釉 碎石粉 20 合成土灰 40 珪目粘土 30 珪石 10	6. マンガン釉 碎石粉 53 合成土灰 17 珪目粘土 10 珪石 20 酸化マンガン 4※	7. いらぼ釉 碎石粉 25 合成土灰 60 珪目粘土 15 弁柄 8※	8. 黒マット釉 碎石粉 40 ネズミ石灰 15 炭酸バリウム 20 珪目粘土 25 M700 10※

※酸化マンガン、弁柄、M700(顔料)は着色材であり、これ以外を合計100とした外割添加



図4 焼成サンプル

(上段：左から配合1~4、下段：左から配合5~8)

4. まとめ

1. 碎石粉の元素組成や粒径に関し、原石採掘場所や採取時期による変動は小さく、碎石粉は長期的に安定して入手できると考えられる。
2. 釉薬試験やサンプル作製を通し、碎石粉の特徴や釉性状を把握した。碎石粉が市販長石の代替原料として利用可能な範囲は広いと考えられる。
3. 笠間焼協同組合では、碎石粉を「笠間長石」と命名し、新原料として令和4年2月から販売を開始した。今後、釉薬開発や製品化支援を実施していく予定である。