

“釉のもと”を用いない透明釉、銅青磁釉の調合試験

— 壺屋焼の釉薬に関する研究 —

与座範弘*1、赤嶺公一、花城可英

壺屋焼で用いられている伝統的な釉薬にシルグスイ（透明釉）やオーグスヤー（銅青磁釉）がある。その伝統的な調合法では、前者がモミ殻と消石灰を混焼した“シルグスイのもと”、後者がモミ灰と真鍮屑を混合・仮焼した“オーグスヤーのもと”を原料の一つとして用いている。これらの調製法は壺屋焼を特徴づける技法の一つであるが、一方で調製の際の煙・臭い対策や混焼する場所の確保、調製された“もと”の品質の安定性などの課題もある。そこで、本研究では“もと”を用いない透明釉、銅青磁釉について原料の選択や釉調合試験を行った。その結果、釉性状が良好で使用可能な配合例が得られたので報告する。

1 はじめに

“シルグスイのもと”の伝統的な調製法は、モミ殻5升と消石灰1升を配合したものを混合・仮焼する。照屋らは、その目的は消石灰の炭酸化、“もと”の微粒子化にある、とした。¹⁾ また、その化学組成（例）は表1に示すように石灰（カルシウム、CaO）分、ケイ酸（SiO₂）分が主である。²⁾ 伝統的なシルグスイ（透明釉）は、この“シルグスイのもと”と具志頭白土、白化粧土との配合によって得られる。研究では、表1の化学組成を参考に“シルグスイのもと”に相当するよう石灰質原料とケイ酸質原料を選定し、その配合割合及びこれらを用いた透明釉の調合試験について検討を行った。

一方、“オーグスヤーのもと”の伝統的な調製法は、モミ灰4升と真鍮屑100匁（375g）を混合し、団子状に成形したものを900～1,000℃程度で仮焼する。その目的は、真鍮の亜鉛分とモミ灰のケイ酸分との反応によるケイ酸亜鉛の合成と酸化銅の合成にあるとされている。³⁾ また、その化学組成（例）は表2に示すように、ケイ酸分、銅分、亜鉛分が主である。オーグスヤーの伝統的な調合法は、この“オーグスヤ

ーのもと”と具志頭白土、透明釉（シルグスイ）、土灰との配合によるが、オーグスヤーは銅青磁釉の1種であることから乳白釉の組成に亜鉛華、酸化銅を添加することによって得られることが知られている。^{4)、5)}

この乳白釉の調合には、次の方法があるとされている。

- ケイ酸分が多く、アルミナ分が少ない組成で分相が起こりやすいことを利用する。
- 上記の組成の釉薬に分相促進剤あるいは結晶析出促進剤を添加する。
例；骨灰（リン酸分を含む）、亜鉛華（酸化亜鉛）、酸化チタン、酸化スズ
- 石灰・マグネシア釉にする。

そこで本研究では、県産原料主体の釉調合とするためケイ酸分の多い基礎釉に亜鉛華、酸化銅を添加した銅青磁釉の調合法について検討を行った。

これらの釉調合試験の結果、各試験における釉調の変化及び良好な釉調を示す配合割合を明らかにすることができた。

表1 シルグスイのものと化学組成（例）

（単位；％）

試料名	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	K ₂ O	Na ₂ O	Ig.Loss
シルグスイのもと	9.52	0.28	0.13	---	50.6	0.41	0.13	0.11	39.5

表2 オーグスヤーのものと化学組成

（単位；％）

試料名	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	K ₂ O	Na ₂ O	ZnO	CuO	Ig.Loss
オーグスヤーのもと	55.2	0.87	0.21	---	0.85	0.33	2.59	0.26	14.9	22.7	---

*1元沖縄県工業技術センター

2 実験方法

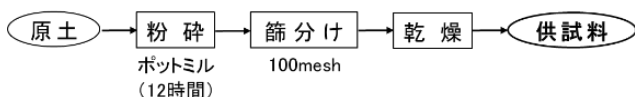
2-1 原料の種類と処理方法

釉調合試験には、下記の原料を使用した。

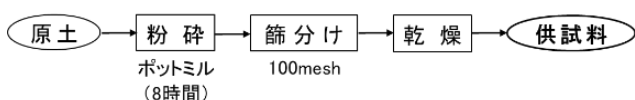
- 基本原料：具志頭白土
- 石灰質原料：本部石灰岩、炭酸カルシウム（市販品）
- ケイ酸質原料：伊豆味珪石、天然モミ灰（市販品）
- 粘土質原料：白化粧土（安富祖粘土と蛙目粘土の7：3混合物）
- 灰原料：土灰
- 添加剤、着色剤：亜鉛華、酸化銅（以上、市販品）

これら原料の処理方法の概要を以下に示す。なお、炭酸カルシウムなどの市販品はそのまま使用した。

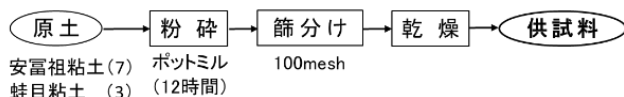
- 具志頭白土、本部石灰岩



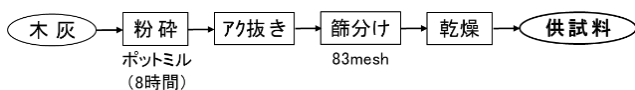
- 伊豆味珪石



- 白化粧土



- 土灰



2-2 原料の化学組成

エネルギー分散型蛍光X線分析装置（PANalytical 社製、Epsilon 3 XL）を用いて粉末法により分析した。なお、強熱減量は小型電気炉を用いて 1,050°C で強熱した時の重量変化から算出した。

2-3 配合試験

2-3-1 透明釉試験

透明釉試験に用いた配合系を以下に示す。試験で用いた石灰質原料とケイ酸質原料の混合物は、“シルグスイのもと”の化学組成に近似するように9：1とした。

- 具志頭白土－本部石灰岩（9）：伊豆味珪石（1）－白化粧土配合系
- 具志頭白土－本部石灰岩（9）：モミ灰（1）－白化粧土配合系
- 具志頭白土－炭酸カルシウム（9）：伊豆味珪石（1）－白化粧土配合系
- 具志頭白土－炭酸カルシウム（9）：モミ灰（1）－白化粧土配合系

また、以上の配合系では“シルグスイのもと”のケイ酸質原料の割合が小さく、他原料と配合することにより供給されることが予想されたため、以下に示す石灰質原料のみの配合系についても試験を行った。

- 具志頭白土－本部石灰岩－白化粧土配合系
- 具志頭白土－炭酸カルシウム－白化粧土配合系

これらの配合系について図1に示す三角座標を用いて重量法で配合し、攪拌播潰機を用いて攪拌・混合した。テストピースへの施釉後、所定の温度で焼成し、それぞれの釉性状を観察した。なお、テストピースには、壺屋陶器事業協同組合の赤土3号坯土を石膏型でタイル状（50×40×7 mm）に成形し、その半分を白化粧した後に素焼したものを使用した。

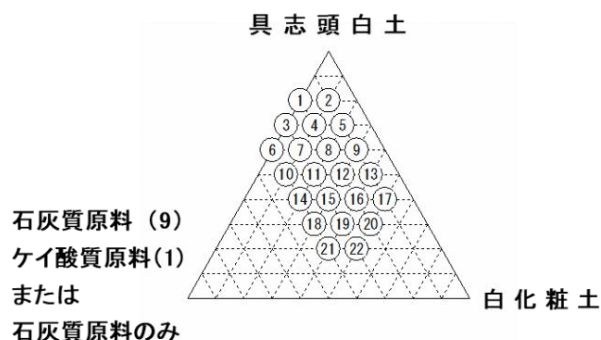


図1 透明釉試験の配合範囲

2-3-2 銅青磁釉試験

銅青磁釉試験は、以下に示す配合系について行った。その配合範囲を図2、図3に示す。混合・攪拌以降は、透明釉試験と同じ方法で行った。

- ・具志頭白土—土灰—白化粧土(6)：伊豆味珪石(4)配合系+亜鉛華2%、酸化銅3%
- ・具志頭白土—土灰—伊豆味珪石配合系+亜鉛華2%、酸化銅3%、白化粧土5%

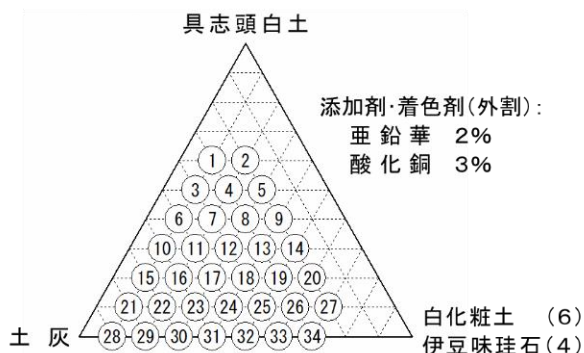


図2 銅青磁釉試験の配合範囲(1)



図3 銅青磁釉試験の配合範囲(2)

2-4 焼成試験

施釉後のテストピースは、電気炉(YAMAZAKI、TSY-18)を用いて酸化焼成した。最高温度1,250℃、昇温速度100℃/h(室温-1,100℃)、60℃/h(1,100-1,250℃)、最高温度保持0.5時間で行った。

3 実験結果

3-1 試料の化学組成

表3に試料の化学組成を示す。

具志頭白土は火山灰由来の凝灰岩で、長石の代替原料として使用されている。その化学組成はケイ酸分(SiO₂)、アルミナ分(Al₂O₃)が主で、そのほか、カリウム分(K₂O)やナトリウム分(Na₂O)と若干の鉄分(Fe₂O₃)を含んでいる。

石灰質原料の本部石灰岩と市販の炭酸カルシウムは、石灰分(CaO)が主成分で、両者を比較すると石灰分に大きな差は見られない。その他の成分では、本部石灰岩がシリカ分、マグネシウム分を若干含んでいる。

ケイ酸質原料の伊豆味珪石と市販の天然モミ灰(以下、モミ灰)はケイ酸分を主成分としており、両者とも90%超のケイ酸分を含んでいる。その他の成分では、伊豆味珪石が若干のアルミナ分、モミ灰が若干のカリウム分を含んでいる。

白化粧土には安富祖粘土と蛙目粘土の混合物を使用しており、ケイ酸分、アルミナ分が主である。

また、土灰は石灰分を多く含むほか、マグネシウム分(MgO)カリウム分、リン酸(P₂O₅)を含んでいる。

表3 試料の化学組成

(単位 ; %)

試料名	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	K ₂ O	Na ₂ O	P ₂ O ₅	Ig.Loss
具志頭白土	71.3	11.8	1.43	0.20	1.32	0.67	3.59	1.81	-	5.56
本部石灰岩	1.56	0.47	0.08	0.01	54.4	1.02	0.04	-	-	42.4
炭酸カルシウム※	0.44	0.00	0.02	0.02	56.6	0.10	-	-	-	42.7
伊豆味珪石	93.8	3.98	0.25	0.09	0.06	0.06	0.56	-	-	1.14
天然モミ灰※	92.8	0.61	0.16	0.02	0.62	0.18	1.90	-	0.44	3.03
白化粧土	68.6	22.6	0.87	0.54	0.13	0.21	1.35	-	-	5.69
土灰	12.8	3.44	0.91	0.61	41.6	5.53	1.05	0.46	2.40	30.4

※ 炭酸カルシウム、天然モミ灰は市販品

3-2 釉調合試験の結果

3-2-1 透明釉試験の結果

各配合系の試験結果を図4～図9に示す。

いずれの配合系においても、透明釉—ややマット—（やや）半溶—不溶と、ほぼ同じ釉調の変化を呈した。また、透明釉は、具志頭白土の割合が20%～80%、石灰質原料(9)とケイ酸質原料(1)の混合物あるいは石灰質原料の割合が20%～30%、白化粧土の配合割合が

0%～50%で示される領域で得られた。いずれの配合系でも、具志頭白土の割合が少ない領域にある⑬、⑭の配合が、貫入が無く光沢のある、良好な透明釉と思われる。また、具志頭白土の割合が増えると、鉄分の影響により微黄色を帯びる傾向が見られた。

そのほか、石灰質原料(9)：ケイ酸質原料(1)の混合物あるいは石灰質原料の割合が増えると貫入のあるマット調の釉調になる傾向が見られた。

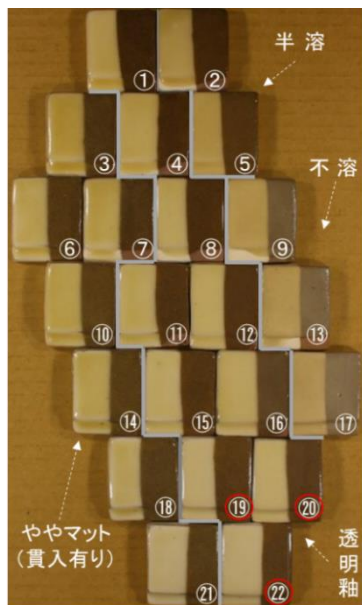


図4 具志頭白土—本部石灰岩(9)：伊豆味珪石(1)—白化粧土配合系

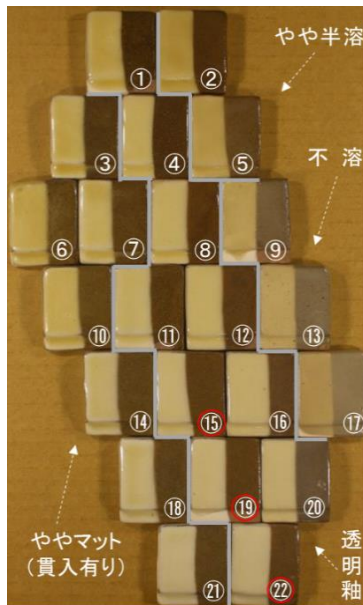


図5 具志頭白土—本部石灰岩(9)：モミ灰(1)—白化粧土配合系

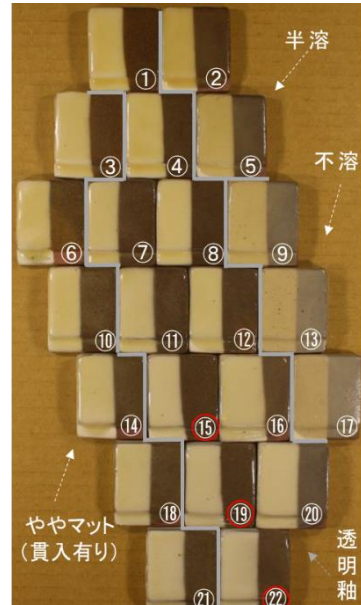


図6 具志頭白土—炭酸カルシウム(9)：伊豆味珪石(1)—白化粧土配合系

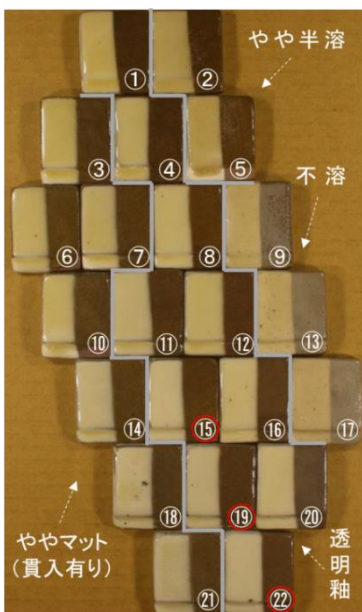


図7 具志頭白土—炭酸カルシウム(9)：モミ灰(1)—白化粧土配合系

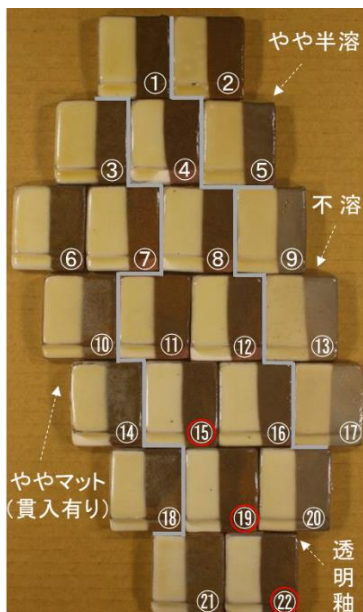


図8 具志頭白土—本部石灰岩—白化粧土配合系

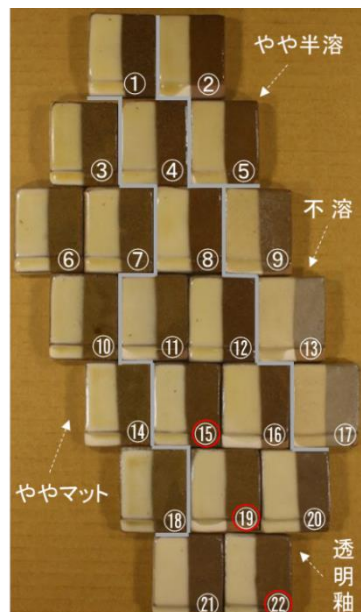


図9 具志頭白土—炭酸カルシウム—白化粧土配合系

3-2-2 銅青磁釉試験の結果

図10に具志頭白土-土灰-白化粧土(6)：伊豆味珪石(4)配合系+亜鉛華3%、酸化銅2%添加による銅青磁釉試験の結果を示す。

この配合系では、銅青磁釉～銅海鼠釉-緑釉-暗緑色釉-不溶と釉調が変化した。具志頭白土の割合が0%～50%、土灰の割合が40～50%、白化粧土(6)：伊豆味珪石(4)の割合が10%～50%の領域で、銅青磁釉あるいは銅海鼠調の釉調を呈し、その中には⑫の配合が発色から良好な銅青磁釉と思われる。また、具志頭白土の割合が0%～40%、土灰の割合が50%～60%、白化粧土(6)：伊豆味珪石(4)の割合が10%～40%の領域では緑釉が得られた。暗緑色釉のうち、土灰の割合が多い領域では表面に黒色結晶の生成したマット調の釉調を呈した。

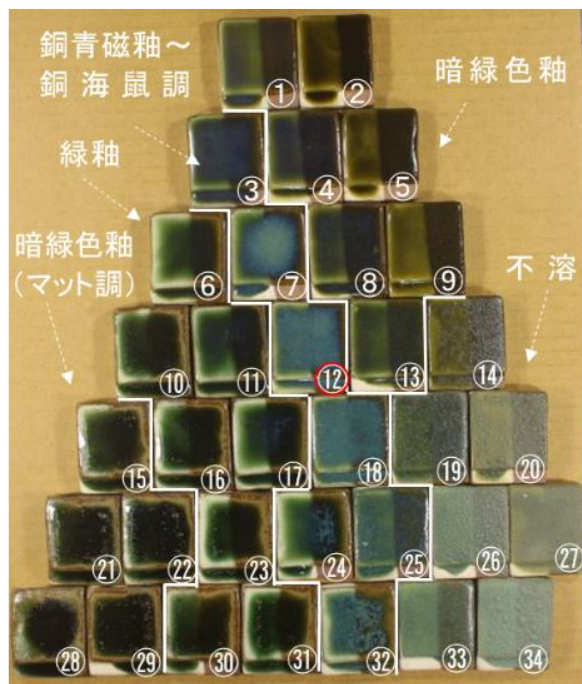


図10 具志頭白土-土灰-白化粧土(6)：伊豆味珪石(4)配合系+亜鉛華3%、酸化銅2%添加

具志頭白土-土灰-伊豆味珪石配合系+亜鉛華2%、酸化銅3%、白化粧土5%添加による銅青磁釉試験の結果を図11に示す。

この配合系では銅青磁釉～銅海鼠釉-暗緑色釉-不溶と釉調の変化を呈した。具志頭白土の割合が0%～50%、土灰の割合が30%～70%、伊豆味珪石の割合が10%～30%の領域において銅青磁釉あるいは銅海鼠釉を呈し、その中には⑤、⑨の配合が発色から良好な銅青磁釉と思われる。

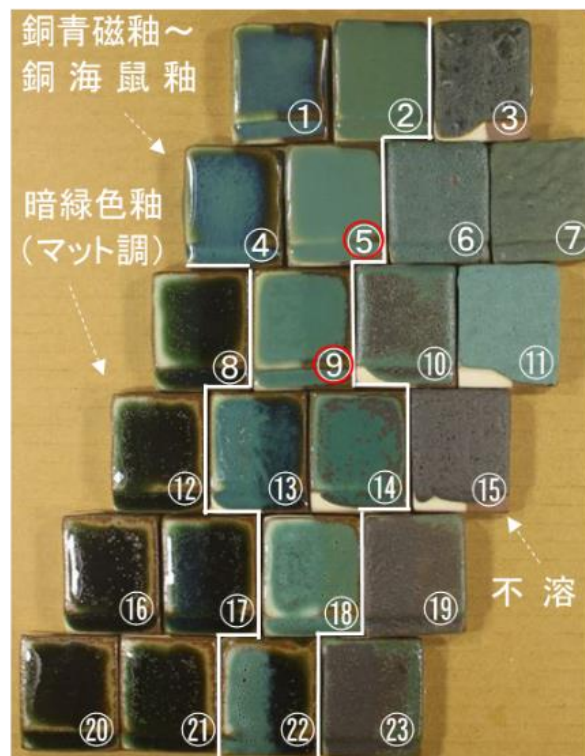


図11 具志頭白土-土灰-伊豆味珪石配合系+亜鉛華2%、酸化銅3%、白化粧土5%添加

4 まとめ

透明釉、銅青磁釉について釉調試験を行ったところ、伝統的な“もと”を用いない方法により、使用可能と思われる透明釉、銅青磁釉の配合割合を得ることができたので、表4～表6に示す。なお、下記の表中の番号は各試験の配合番号を示している。また、石灰質原料とケイ酸質原料のような混合物の場合は、その比率で按分した割合を記している。

本研究は工業研究費(単独)「壺屋焼の釉薬に関する研究(令和元年度、2018技007)」として実施した。

表4 本部石灰岩を用いた透明釉の配合例

・図4関連

原料名	⑬	⑳	㉔
具志頭白土 (%)	30	30	20
本部石灰岩 (%)	27	18	27
伊豆味珪石 (%)	3	2	3
白化粧土 (%)	40	50	50

・図5関連

原料名	⑮	⑲	㉒
具志頭白土 (%)	40	30	20
本部石灰岩 (%)	27	27	27
モミ灰 (%)	3	3	3
白化粧土 (%)	30	40	50

・図8関連

原料名	⑮	⑲	㉒
具志頭白土 (%)	40	30	20
本部石灰岩 (%)	30	30	30
白化粧土 (%)	30	40	50

表5 炭酸カルシウムを用いた透明釉の配合例

・図6、図7関連

原料名	⑮	⑲	㉒
具志頭白土 (%)	40	30	20
炭酸カルシウム (%)	27	27	27
伊豆味珪石 (またはモミ灰) (%)	3	3	3
白化粧土 (%)	30	40	50

・図9関連

原料名	⑮	⑲	㉒
具志頭白土 (%)	40	30	20
炭酸カルシウム (%)	30	30	30
白化粧土 (%)	30	40	50

表6 銅青磁釉の配合例

・図10関連

原料名	⑫
具志頭白土 (%)	30
土灰 (%)	40
白化粧土 (%)	18
伊豆味珪石 (%)	12
亜鉛華 (外割 %)	2
酸化銅 (")	3

・図11関連

原料名	⑤	⑨
具志頭白土 (%)	40	30
土灰 (%)	40	50
伊豆味珪石 (%)	20	20
亜鉛華 (外割 %)	2	2
酸化銅 (")	3	3
白化粧土 (")	5	5

謝辞

本研究を実施するにあたり釉原料の炭酸カルシウムを提供して頂いた白石工業株式会社様、また、協力頂きました壺屋陶器事業協同組合（島袋常秀理事長）の皆さまに感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 照屋善義ほか、「県産原料による釉薬の開発（2）－ 珪酸と消石灰による白釉もとの調製法－」、沖工試業務報告第18号（1990）
- 2) 照屋善義ほか「壺屋灰立釉の開発に関する研究」、沖工試業務報告第10号（1982）
- 3) 照屋善義ほか、「県産原料による釉薬の開発（5）－ 真鍮屑と珪灰による青磁もとの調製法」、沖工試業務報告第1号（1991）
- 4) 加藤悦三編集「比較陶器談話室」、比較陶器研究所（1999）
- 5) 与座ほか「壺屋焼の釉薬に関する研究－伝統釉の調査に関する試験－」沖縄県工業技術センター研究報告第21号（2018）

A test for preparing transparent and copper celadon glazes without the“sources of glaze”

- Glazes for Tsuboya wares -

Norihiro YOZA*¹, Koichi AKAMINE, Kaei HANASHIRO

Okinawa Industrial Technology Center

*¹Former affiliation : Okinawa Industrial Technology Center

Traditional glazes for Tsuboya wares include “Sirugusui” (transparent glaze) and “Ogusuya” (copper celadon glaze). Traditionally, the “source of Sirugusui,” a mixture of rice husks and slaked lime, is used as a raw material for the former, and the “source of Ogusuya,” prepared by mixing and temporarily firing husk ash and brass scraps, is used for the latter. These preparation techniques characterizing Tsuboya wares necessitate measures for controlling smoke and odors during preparation, securing a place for mixed firing, and stabilizing the qualities of the prepared “sources.” Thus, in the present study, raw materials were selected and a preparation test was conducted for transparent and copper celadon glazes without the use of the “sources.” As a result, a functional formulation was achieved with satisfactory glaze properties.