

県産磁器釉について

窯業室 与座範弘
花城可英
宜野座俊夫
照屋善義

1. はじめに

県産磁器の開発については、昭和58年に石垣産磁器原料の諸特性に関する研究を行ない、その結果をもとに昭和59年には大高粘土(C)、大高粘土(D)、あかいし石からなる磁器素地の諸性状について研究を行なった^{1), 2)}。

また、石垣島にはセリサイト質粘土の他に長石や珪石も賦存している。今後は磁器釉を中心に釉原料としての利用開発が望まれているところである。

標準的な磁器釉は長石(または陶石)、石灰石、カオリン、珪石の四成分の配合によりつくられ、塩基成分として石灰分の多い釉を石灰釉、アルカリ分の多い釉を長石釉とよんでいる。その他、塩基成分として亜鉛分(ZnO)、バリウム分(BaO)、マグネシヤ分(MgO)なども補助的に添加され、それぞれ石灰亜鉛釉、石灰バリウム釉、石灰マグネシヤ釉などと呼ばれている³⁾。

また、石灰石を使用する以前は石灰分を主成分とする木の灰が使われており、代表的な灰原料として柞灰がある。柞の木は本州西南部、四国、九州に自生し、特に宮崎県では柞灰を採取するために栽培されていたことがあり、現在でも鉄分の少ない灰原料として費用されている。

本県では本島北部、八重山地区を中心に分布しており、蛇皮線の棹や小木工品を中心に利用されている。他の廃材と比較すると、柞の木の量的確保は困難であるが、柞灰釉の原料として検討を加えた。

本研究は、主として石垣島に産する原料を利用し、長石—石灰石—珪石—カオリン系、陶石—石灰石—珪石—カオリン系、長石—柞灰—珪石—カオリン系、陶石—柞灰—珪石—カオリン系の四配合系について基礎釉の配合試験及び釉性状、添加剤効果、着色材による色釉について試験した。以下、その結果について報告する。

2. 釉原料について

2.1 釉原料の特性

図1に原料の賦存地、表1には原料の化学組成と耐火度を示す。釉原料の特性は次の通りである。

川平長石は川平区西方の原野に賦存し、石英やカリ長石の他、セリサイト、カオリン鉱物からなり、耐火度はSK13[#]を示す。

あかいし石は明石区西方の道路わきに賦存し、石英、長石、セリサイト、カオリナイトからなる陶石質原料で、耐火度はSK15[#]である。

大高粘土(D)は大高区南方の山野に賦存するカオリン質粘土でカオリナイト、ハロイサイト、セリサイトの他、石英、長石からなり、耐火度はSK26[#]を示す。鉄分は1.09%と若干高い値を示している。

珪石は川原区北方の原野の転石であり、 SiO_2 の含有量は96.8%である。

柞灰は小木工品を加工する際に生じる木屑を灰化したもので、表2の本土産柞灰と比較して石灰分が少なく、マグネシヤ分、ナトリウム分が多いのが特徴である⁴⁾。また、鉄分の含有量は0.99%と若干高い。

石灰石はセメント原料や碎石として利用されている古成紀石灰岩の本部石を使用した。

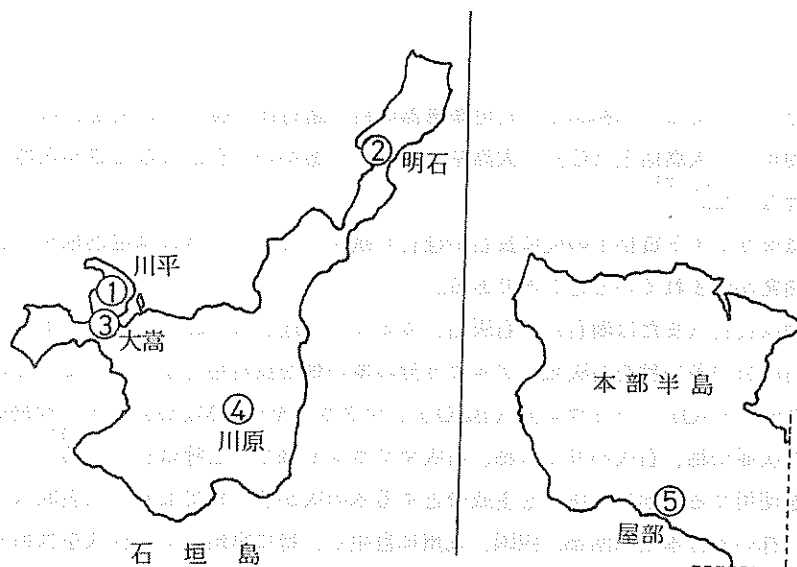


図1 原料の賦存地

表1. 試料の化学組成と耐火度

No.	試料名	SiO_2 (%)	Al_2O_3 (%)	Fe_2O_3 (%)	TiO_2 (%)	CaO (%)	MgO (%)	Na_2O (%)	K_2O (%)	Ig. Loss (%)	耐火度
1	川平長石	72.7	11.2	0.12	0.05	0.01	0.76	1.07	5.07	1.68	SK13 (1,380°C)
2	あかいし石	74.8	15.0	0.59	0.13	—	0.54	0.99	4.15	2.47	SK15 (1,435°C)
3	大嵩粘土D)	67.8	20.8	1.09	0.16	—	0.12	0.98	2.12	5.82	SK26 ⁺ (1,590°C)
4	珪石	96.8	1.03	0.10	0.01	0.10	—	0.15	—	0.40	
5	石灰石	0.62	0.42	0.11	—	56.0	0.41	0.01	0.04	42.8	
6	柞灰	12.9	0.93	0.99	0.02	17.7	8.35	4.89	0.40	53.1	

表2. 本土産柞灰の化学組成

No.	試料名	SiO_2 (%)	Al_2O_3 (%)	Fe_2O_3 (%)	MnO (%)	CaO (%)	MgO (%)	K_2O (%)	Na_2O (%)	P_2O_5 (%)	Ig. Loss (%)
1	本土産柞灰(1)	27.07	1.17	0.18	0.007	39.00	1.15	0.23	0.25	0.48	29.8
2	" (2)	34.60	4.38	0.49	0.33	47.71	5.99	2.51	0.06	3.93	—
3	" (3)	16.19	4.16	0.92	0.48	36.68	6.60	1.00	0.20	3.67	30.9

2.2 釉原料調製法

図2に各々の原料の処理工程を示す。あかいし石、珪石はジョークラッシャーで粗砕し、ポットミル粉碎後、供試原料とした。柞灰は柞の木屑を灰化し、あくぬき等を行なって供試原料とした。灰化によって得られる柞灰は、4%程度の収率であった。

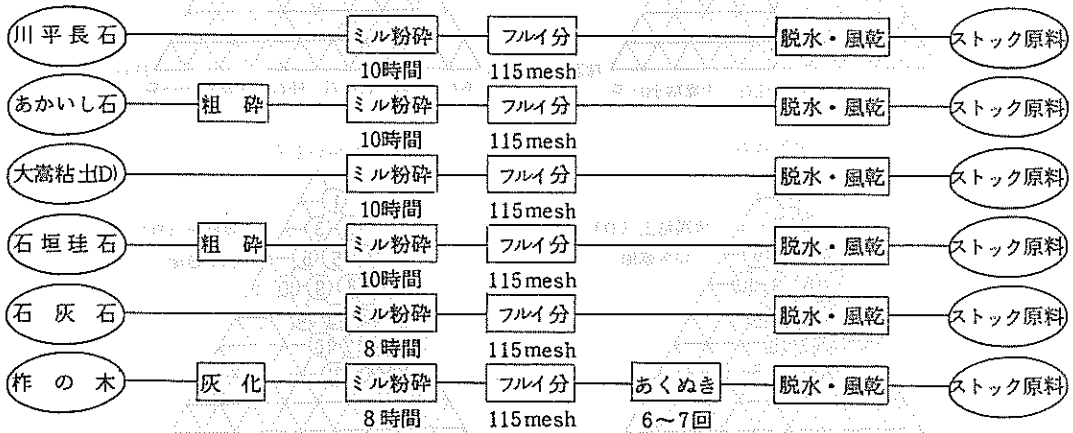


図2. 釉原料の処理工程

3. 基礎釉の調合試験

釉原料の違いや配合系または配合比の違いによる基礎釉の特性について検討するため、次に示す4種類の配合系について配合試験を行なった。

- (1) 川平長石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系
- (2) あかいし石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系
- (3) 川平長石—柞灰—珪石—大嵩粘土(D)系
- (4) あかいし石—柞灰—珪石—大嵩粘土(D)系

3.1 素地と試験体の調整

素地は大嵩粘土(C)40%、あかいし石30%、大嵩粘土(D)30%からなる配合素地を用い、35mm×45mm×8mmの試験片を石膏型により型抜成形し、素焼後試験に供した。

3.2 釉原料配合系の検討

各配合系は図3に示す三角座標中の配合番号で示す配合比に大嵩粘土(D)を外割で10%添加し供試料とした。各試料は水を加え、攪拌撹機で20分間混合して釉泥漿とした後、試験片に施釉した。

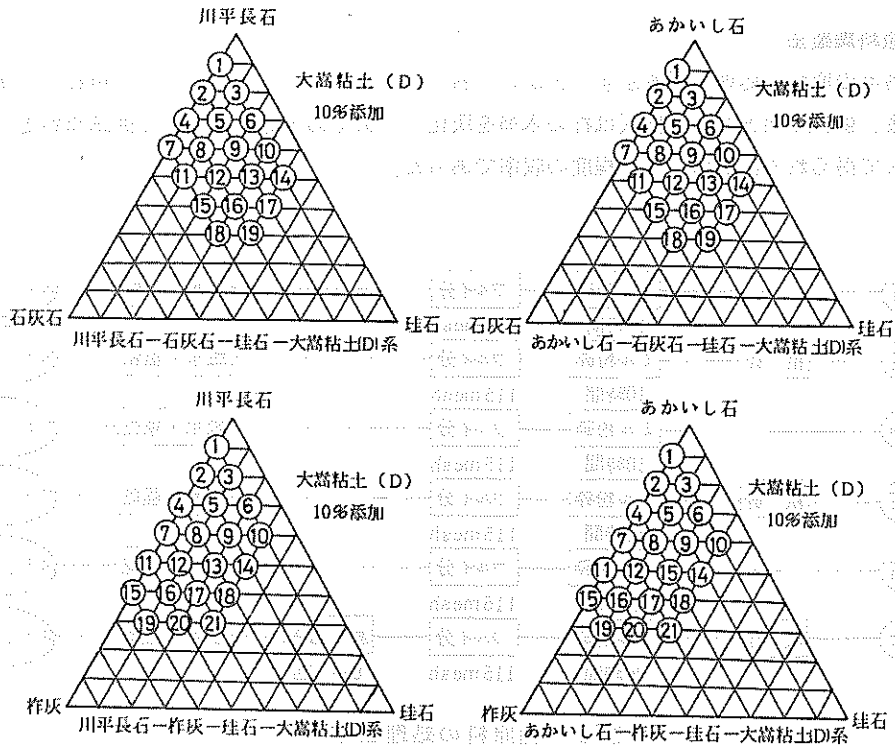


図3. 釉薬原料の配合系と配合比

3.3 焼成条件

焼成はLPG試験窯を用いて、1,240℃、1,260℃、1,280℃の各温度で950℃から炉内のCO濃度がおよそ2%の還元雰囲気中で焼成した。図4に焼成温度曲線の一例を示す。

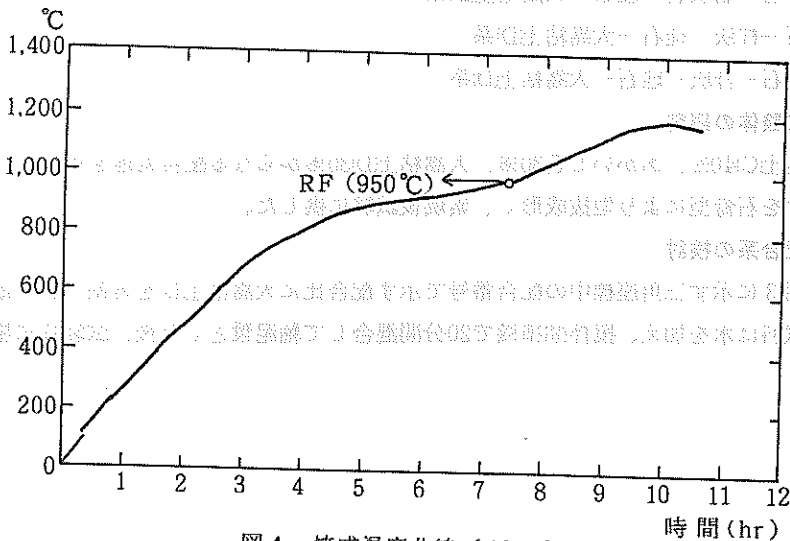


図4. 焼成温度曲線 (1260℃)

3.4 配合系の釉性状

3.4.1 川平長石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系の釉性状

この配合系の焼成温度 1,260 °Cにおける釉性状を図5 と写真1 に示す。

一般的な釉調は不溶—半溶—マット—半透明—透明の変化を示し、透明釉の領域は川平長石60%～80%、石灰石20%～30%、珪石0%～20%の範囲にある。図3の配合番号では2[#]、4[#]、5[#]、8[#]、

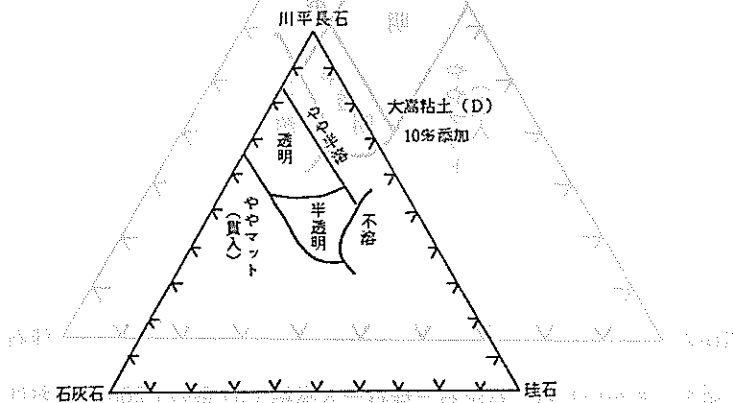
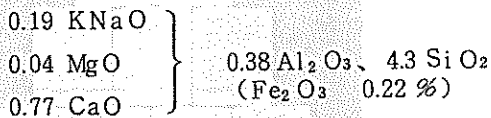


図5. 川平長石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系の 1,260 °Cにおける釉性状

9[#]のうち、特に5[#]釉が良好である。5[#]釉のゼーゲル式は下記に示すように、塩基成分に占める石灰分の割合が多い。また、5[#]釉の鉄分は0.22%である。

5[#]釉のゼーゲル式



この配合系では、1,240 °Cの焼成温度において良好な透明釉は得られず、焼成温度を1,260 °C以上に高める必要がある。

その他、石灰石が10%の領域ではやや半溶となり、40%では貫入のあるマット調の釉となる。また、珪石が30%以上では半透明、半溶または不溶となり、透明釉は得られない。

3.4.2 あかいし石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系の釉性状

この配合系の焼成温度 1,260 °Cにおける釉性状を図6 と写真2 に示す。

一般的な釉調は不溶—半溶—マット—半透明—透明と変化し、透明釉はあかいし石50%～80%、石灰石20

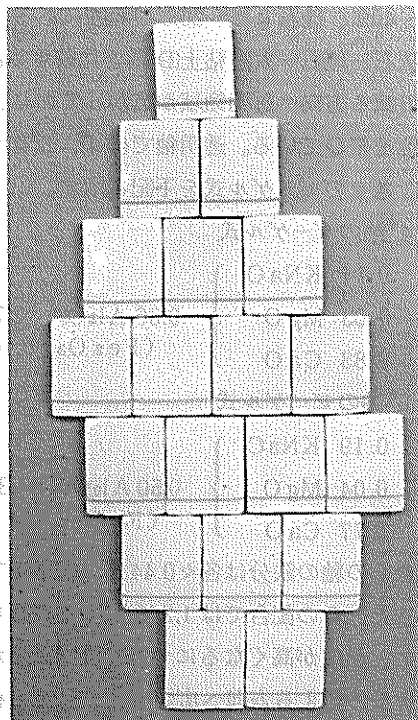


写真1. 川平長石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系の 1,260 °Cにおける釉性状

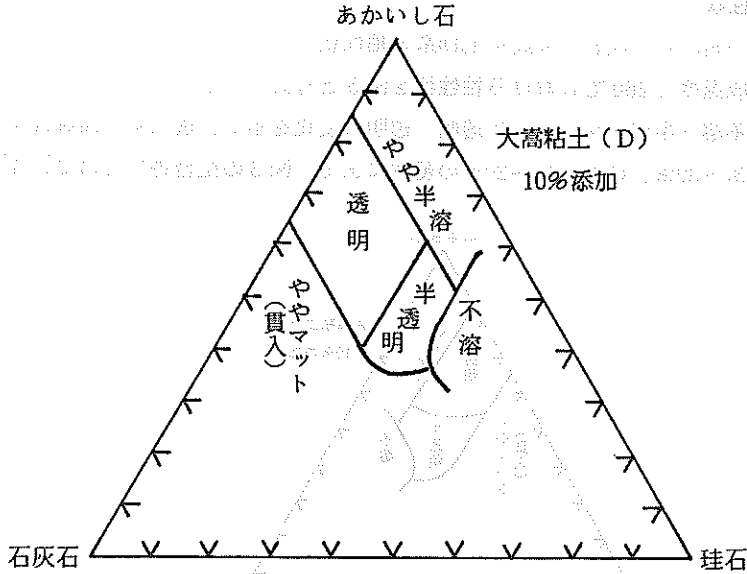
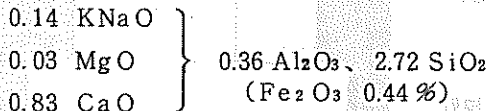


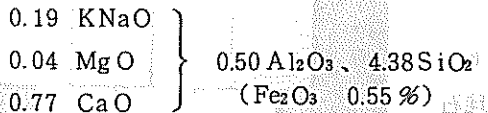
図6. あかいし石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系の1,260℃における釉性状

%~40%、珪石0%~20%の範囲にある。川平長石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系と比較すると、あかいし石の減る方向へ透明領域が広がっており、全体的に淡緑色を帯びている。透明釉では4[#]、5[#]の釉が良好である。各々のゼーゲル式を下記に示す。

4[#]釉のゼーゲル式



5[#]釉のゼーゲル式



これらの釉の鉄分は各々0.44%、0.55%である。

また、この配合では1,240℃でも良好な透明釉が得られ、温度が高くなるにつれて透明領域が珪石または石灰石の増える方向へ広がる。その他、石灰石の配合比が10%の領域で半溶、40%では貫入のあるややマット調の釉となる。

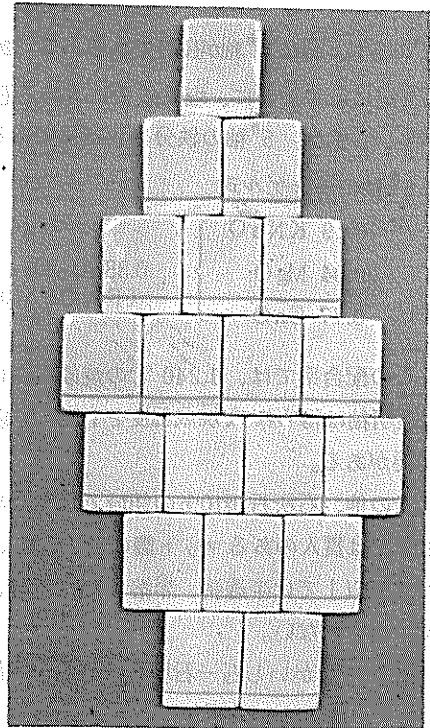


写真2 あかいし石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系の1,260℃における釉性状

3.4.3 川平長石-柞灰-珪石-大嵩粘土(D)系の釉性状

この配合系の焼成温度 1,260 °Cにおける釉性状を図7及び写真3に示す。

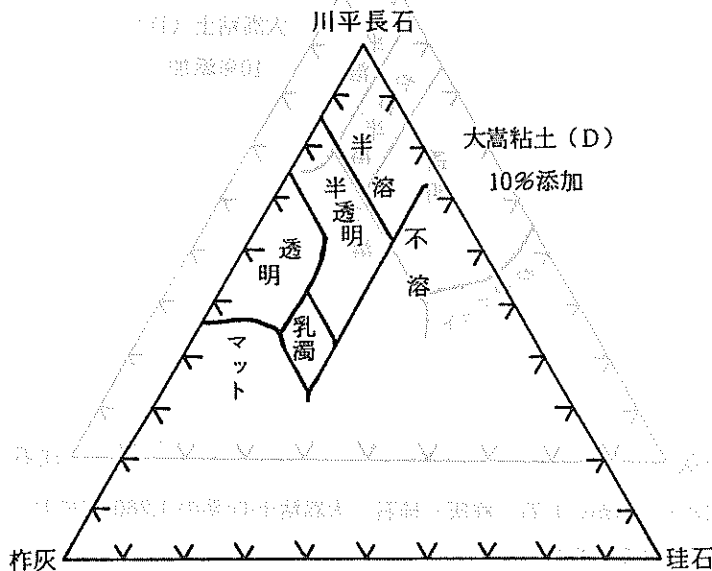
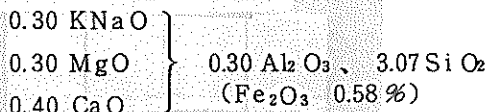


図7. 川平長石-柞灰-珪石-大嵩粘土(D)系の 1,260 °Cにおける釉性状

一般的な釉調は不溶-半溶-マット-乳濁-半透明-透明を示す。透明釉の領域は川平長石50%~70%、柞灰30%~50%、珪石0%~10%の範囲にあり、柞灰の配合比が多くなる程淡緑色から緑色の青磁調の釉となる。使用可能な釉は7#釉で、ゼーゲル式を下記に示す。この釉の鉄分は0.58%である。

7#釉のゼーゲル式



石灰石による配合系と比較して、石灰分が少なくアルカリ分とマグネシヤ分の多い釉組成となっている。

その他、柞灰の含有量が多い程、また、焼成温度が高くなる程ピンホールがあらわれ、全体的に気泡の多いのが特徴である。

3.4.4 あかいし石-柞灰-珪石-大嵩粘土(D)系の釉性状

この配合系の焼成温度 1,260 °Cにおける釉性状を図8及び写真4に示す。

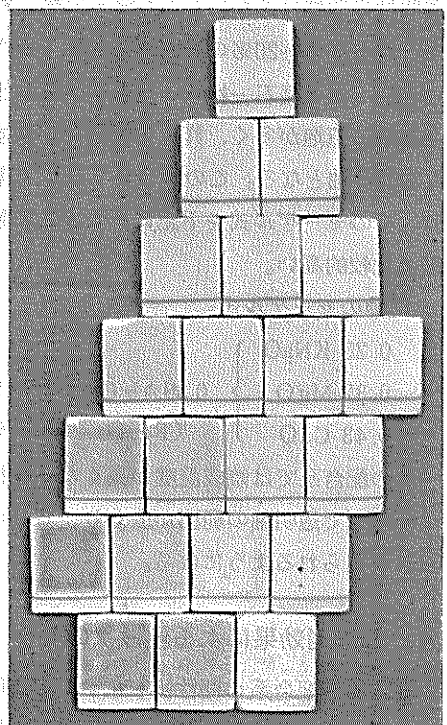


写真3. 川平長石-柞灰-珪石-大嵩粘土(D)系の 1,260 °Cにおける釉性状

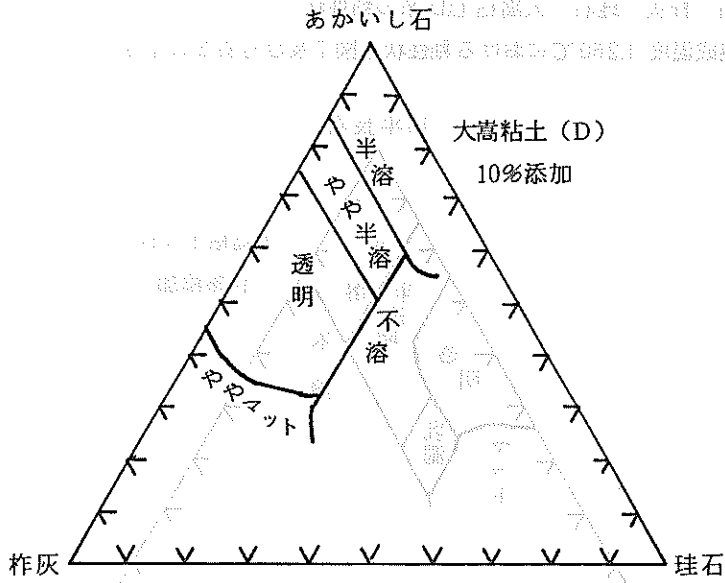
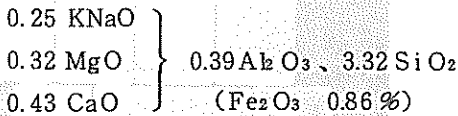


図8. あかいし石—柞灰—珪石—大嵩粘土(D)系の 1,260 °Cにおける釉性状

一般的な釉調は不溶—半溶—マット—透明となり、透明釉の領域はあかいし石40%~70%、柞灰30%~50%、珪石0%~20%の範囲内にあり、いずれの配合系よりも広い。川平長石—柞灰—珪石—大嵩粘土(D)系と同様全体的に気泡が多く、柞灰の配合比が増すと淡緑色の青磁調の釉となる。この配合系では7#の釉が良好であり、そのゼーゲル式を下記に示す。この釉の鉄分0.86%と比較的高い。

7#釉のゼーゲル式



この配合系では焼成温度が高くなると柞灰の配合比が60%まで透明釉の範囲が広がり、ピンホールや釉ちぢれが見られるようになる。

4. 添加剤効果による釉性状の変化

3.4項「配合系の釉性状」において透明領域にある釉組成に対して、添加剤として亜鉛華、炭酸バリウム、タルクを各々10%、20%、30%外割添加し、焼成温度1,260 °Cにおける釉性状の変化について検討した。

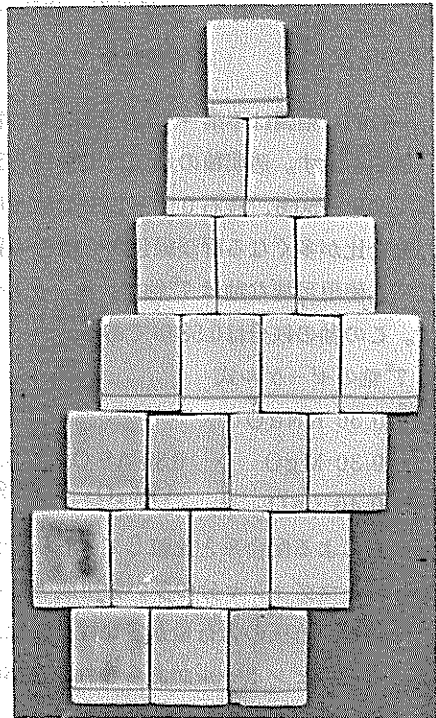


写真4. あかいし石—柞灰—珪石—大嵩粘土(D)系の 1,260 °Cにおける釉性状

また、下絵釉として図9に示す呉須釉と釉裏紅⁵⁾を調整した。それを用いて図10に示すように下絵付した後、添加剤効果のための試験釉を上掛し、焼成温度 1,260 °Cにおける発色の性状について検討した。

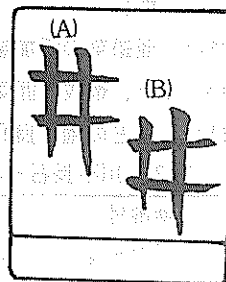
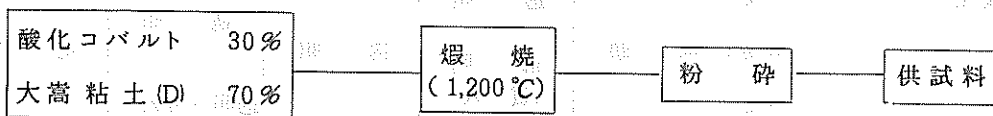


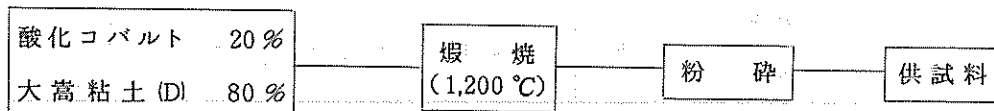
図10 呉須及び釉裏紅の染付

(1) 呉須

呉須(A)

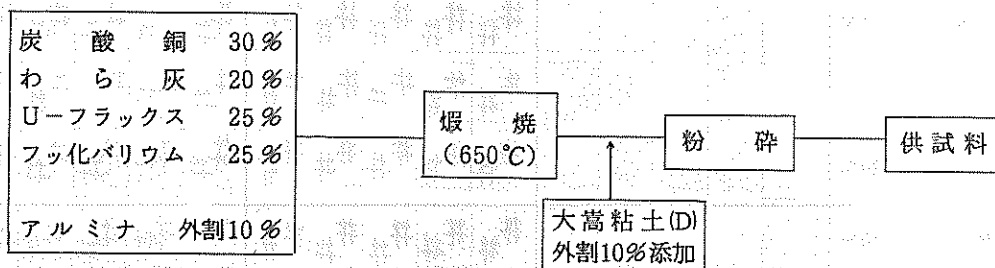


呉須(B)



(2) 釉裏紅

釉裏紅(A)



釉裏紅(B)

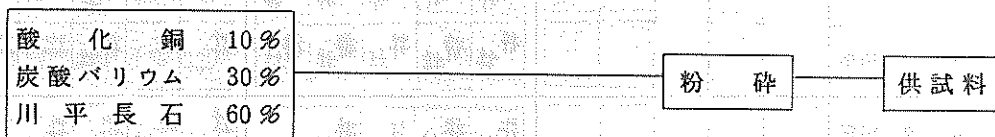


図9 呉須及び釉裏紅の調整

4.1 川平長石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系における添加剤効果

この配合系の2[#]、4[#]、5[#]、8[#]、9[#]の各釉について亜鉛華、炭酸バリウム、タルクを各々10%、20%、30%と外割添加した時の釉性状を表3及び写真5-(a)に示す。また、写真5-(b)と写真5-(c)には呉須及び釉裏紅の結果を示す。

(1) 亜鉛華添加の釉性状

この配合系では、亜鉛華の添加量が増えても光沢や溶け具合は無添加の場合と比較して大きな変化は見られない。また、焼成雰囲気によると思われる酔いが見られる。

呉須の発色はほとんどの釉で良好であるが、特に9# 釉に亜鉛華を添加した一連の釉が良好であ

表3 川平長石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)における添加剤効果

添加剤	釉番号	2#	4#	5#	8#	9#
亜鉛華 10%	10%	透明	透明	透明	透明	透明
	20%			半透明		
	30%			半透明		
炭酸バリウム 10%	10%	透明	透明	透明	透明	透明
	20%		透明(貫入)			
	30%		透明(貫入)			
タルク 10%	10%	結晶析出	結晶析出	光沢失透	結晶析出	光沢失透
	20%	マット	マット	マット	マット	マット
	30%					

添加物	釉番号					2#					4#					5#					8#					9#				
	2#	4#	5#	8#	9#	2#	4#	5#	8#	9#	2#	4#	5#	8#	9#	2#	4#	5#	8#	9#	2#	4#	5#	8#	9#					
亜鉛華 10%	[Image]					[Image]					[Image]					[Image]					[Image]									
" 20%	[Image]					[Image]					[Image]					[Image]					[Image]									
" 30%	[Image]					[Image]					[Image]					[Image]					[Image]									
炭酸バリウム 10%	[Image]					[Image]					[Image]					[Image]					[Image]									
" 20%	[Image]					[Image]					[Image]					[Image]					[Image]									
" 30%	[Image]					[Image]					[Image]					[Image]					[Image]									
タルク 10%	[Image]					[Image]					[Image]					[Image]					[Image]									
" 20%	[Image]					[Image]					[Image]					[Image]					[Image]									
" 30%	[Image]					[Image]					[Image]					[Image]					[Image]									
	5-(a) 添加剤効果										5-(b) 呉須										5-(c) 釉裏紅									

写真5 川平長石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系における添加剤効果

る。当然のことながら、呉須(A)と呉須(B)とでは酸化コバルトの多い呉須(A)が濃い青色を呈する。

釉裏紅では、釉裏紅(A)が各釉でやや暗赤色を呈するのに対して釉裏紅(B)は比較的明るい赤色を呈している。亜鉛華の添加量の違いによる発色の変化は特に見られない。

(2) 炭酸バリウム添加の釉性状

炭酸バリウム添加では気泡の多い微青色を帯びた透明釉を呈し、添加量が増えるに従って光沢を増す傾向にあるが、同時に気泡も大きくなるのが特徴である。また、4[#]、8[#] 釉は基礎釉には見られなかった貫入を生じている。この配合では、9[#] 釉に炭酸バリウム10%添加した釉が良好である。

呉須は、気泡や貫入のある釉に添付すると、添付した線がぼやけたり、にじんだりする傾向が見られる。この配合では2[#] 及び9[#] 釉に炭酸バリウム10%添加した釉が良好である。

釉裏紅(A)は、炭酸バリウムの増加にともない辰砂釉に似た鮮やかな赤色を呈する。また、釉裏紅(B)では炭酸バリウム10%及び20%添加で赤色を呈するが、30%添加では銅が揮発し呈色がうすい。

(3) タルク添加の釉性状

タルクの10%添加では、2[#]、4[#]、8[#] の釉中に白く細かい結晶が認められる。また、5[#]、9[#] 釉は光沢失透釉である。20%添加では、ほとんどの釉がマット調になり、9[#] 釉が使用可能である。

呉須や釉裏紅の添付釉としては釉中に結晶を生じ、マット調となるため適当でない。

4.2 あかいし石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系における添加剤効果

この配合系の2[#]、4[#]、5[#]、8[#]、9[#]、12[#] の各釉に亜鉛華、炭酸バリウム、タルクを添加した時の釉性状を表4及び写真6-(a)に示す。また、写真6-(b)及び写真6-(c)に呉須及び釉裏紅の結果を示す。

表4 あかいし石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系における添加剤効果

添加剤 \ 釉番号	2 [#]	4 [#]	5 [#]	8 [#]	9 [#]	12 [#]
亜鉛華 10%	透明	半透明	透明	やや透明	透明	やや透明
" 20%						
" 30%						
炭酸バリウム 10%	透明	透明	透明	透明	透明	透明
" 20%		透明(貫入)	透明(貫入)	透明(貫入)	透明	透明(貫入)
" 30%		透明(貫入)	(貫入)	(貫入)		
タルク 10%	結晶析出	結晶析出	結晶析出	結晶析出	結晶析出	結晶析出
" 20%		マット	マット	マット	マット	マット
" 30%		マット	マット	マット	マット	マット

袖番号 添加剤	2#	4#	5#	8#	9#	12#	2#	4#	5#	8#	9#	12#	2#	4#	5#	8#	9#	12#
亜鉛華 10%							井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井
" 20%							井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井
" 30%							井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井
炭酸バリウム 10%							井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井
" 20%							井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井
" 30%							井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井
タルク 10%							井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井
" 20%							井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井
" 30%							井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井	井
	6-(a) 添加剤効果						6-(b) 呉 須						6-(c) 袖裏紅					

写真6 川平長石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系における添加剤効果

(1) 亜鉛華添加の袖性状

亜鉛華添加では全体的に淡い緑色を帯びた透明袖となり、4#、8#、12#の一連の袖はやや気泡の多い袖調を呈している。また、基礎袖よりも光沢があり、亜鉛華の添加量が増えるに従って透明感が良くなる傾向にある。この配合では5#及び9#袖に亜鉛華を30%添加した袖が良好である。

呉須の発色は、2#、5#及び9#袖が良好である。特に、亜鉛華10%添加では2#袖、30%添加では5#及び9#袖が良好である。

亜鉛華の添加量が増すと袖裏紅(A)ではやや暗赤色、袖裏紅(B)ではやや明るい赤色を呈し、銅の揮発により呈色が薄くなる傾向がある。

(2) 炭酸バリウム添加の袖性状

炭酸バリウム添加では亜鉛華の場合と同様、全体的に淡緑色で光沢のある透明袖を呈するが、添加量が20%以上の袖では気泡が多くなり、袖の呈色も濃くなる傾向を示す。また、2#袖に炭酸バリウム30%添加した袖と、4#、8#、12#袖に炭酸バリウム10%~30%添加すると貫入が発生しやすい袖となる。5#及び9#袖に炭酸バリウムを10%添加した袖が良好な透明袖である。

呉須は、気泡や貫入のある袖に染付すると、染付した線がぼやけたり、にじむなどの欠点が見られる。

袖裏紅では、炭酸バリウムの添加量が増えるに従って鮮やかな赤色を呈し、30%添加では辰砂袖に似た赤色を呈する。

(3) タルクの添加の袖性状

タルクの10%添加袖と2#及び5#袖にタルク20%添加した袖に白く細かい結晶が認められる。マット袖は9#袖にタルク20%添加した袖が最も良好である。

呉須や染付釉としては、釉中に結晶を生じ、マット調となるため適当でない。

4.3 川平長石—柞灰—珪石—大嵩粘土(D)系における添加剤効果

この配合系の4[#]、7[#]、8[#]、12[#] 釉について亜鉛華、炭酸バリウム、タルクを添加したときの釉性状を表5及び写真7-(a)に示す。また、写真7-(b)及び写真7-(c)に呉須と釉裏紅の結果を示す。

表5 川平長石—柞灰—珪石—大嵩粘土(D)系における添加剤効果

添加剤 \ 釉番号	4 [#]	7 [#]	8 [#]	12 [#]
亜鉛華 10%	やや透明	透明	やや透明	透明
" 20%				
" 30%		やや透明		やや透明
炭酸バリウム 10%	半透明 (気泡性)	透明	透明	透明
" 20%		(ピンホール)	(ピンホール)	(ピンホール)
" 30%		透明 (ピンホール)	透明 (ピンホール)	
タルク 10%	半透明	光沢透明	マット	半透明
" 20%	マット	不溶	不溶	不溶
" 30%	不溶			

添加剤 \ 釉番号	4 [#] 7 [#] 8 [#] 12 [#]				4 [#] 7 [#] 8 [#] 12 [#]				4 [#] 7 [#] 8 [#] 12 [#]			
	4 [#]	7 [#]	8 [#]	12 [#]	4 [#]	7 [#]	8 [#]	12 [#]	4 [#]	7 [#]	8 [#]	12 [#]
亜鉛華 10%												
" 20%												
" 30%												
炭酸バリウム 10%												
" 20%												
" 30%												
タルク 10%												
" 20%												
" 30%												
	7-(a) 添加剤効果				7-(b) 呉須				7-(c) 釉裏紅			

写真7 川平長石—柞灰—珪石—大嵩粘土(D)系の添加剤効果

(1) 亜鉛華添加の釉性状

亜鉛華の添加量を増やしても基礎釉との違いはなく、やや気泡の多い淡緑色の釉調を呈している。12[#] 釉に亜鉛華10%添加した釉が使用可能である。

呉須や釉裏紅では染付した線がぼやけたり、にじむなどの現象がみられる。

(2) 炭酸バリウム添加の釉性状

炭酸バリウムの添加量が増えると全体的に溶けやすく光沢もよくなるが、亜鉛華の場合よりは気泡が多くなる。7[#]、12[#] 釉に10%~30%添加した釉と4[#] 及び8[#] 釉に30%添加した釉はピンホールが発生する。

呉須や釉裏紅では、ピンホールの他、染付した線がにじむなど、染付釉には適当でない。

(3) タルク添加の釉性状

タルク10%添加では4[#]、12[#] 釉が気泡の多い半透明の釉調を示し、7[#] 釉は光沢失透釉、8[#] 釉はマット釉となる。20%添加では2[#] 釉を除いて不溶となり、30%添加では全て不溶となる。また、呉須や釉裏紅の染付釉としても適当でない。

4.4 あかいし石—柞灰—珪石—大嵩粘土(D)系における添加効果

この配合系の4[#]、7[#]、8[#]、12[#]、13[#] 及び17[#] の各釉に対する添加剤効果の結果を表6及び写真8-(a)に示す。また、写真8-(b)及び写真8-(c)に呉須と釉裏紅の結果を示す。

(1) 亜鉛華添加の釉性状

亜鉛華10%添加では、4[#]、7[#]、8[#]、及び12[#] 釉が比較的良好で、13[#] 及び17[#] 釉はやや気泡が多く透明感に乏しい淡緑色の釉調を呈している。20%以上の添加では、どの釉も気泡が多い半透明の釉調を呈し、部分的な酔いが見られる。

呉須は、4[#]、7[#]、8[#] 及び12[#] 釉に亜鉛華10%添加した釉が比較的良好であるが、その他の

表6. あかいし石—柞灰—珪石—大嵩粘土(D)系における添加剤効果

釉番号 添加剤	4 [#]	7 [#]	8 [#]	12 [#]	13 [#]	17 [#]
亜鉛華 10%	透明	透明	透明	透明		
" 20%	やや透明	やや透明	やや透明	やや透明	やや透明	やや透明
" 30%						
炭酸バリウム 10%	やや透明		やや透明		やや透明	やや透明
" 20%	透明	透明 (ピンホール)		透明 (ピンホール)	やや透明	透明
" 30%	(ピンホール)		透明 (ピンホール)		透明 (ピンホール)	(ピンホール)
タルク 10%	半透明	光沢失透	半透明	半マット	光沢失透	半マット
" 20%	光沢失透	マット	マット	マット	マット	
" 30%	マット	不溶	不溶	不溶	不溶	不溶

添加剤	釉番号						4# 7# 8# 12# 13# 17#						4# 7# 8# 12# 13# 17#					
	4#	7#	8#	12#	13#	17#	4#	7#	8#	12#	13#	14#	4#	7#	8#	12#	13#	17#
亜鉛率 10%																		
" 20%																		
" 30%																		
炭酸バリウム 10%																		
" 20%																		
" 30%																		
タルク 10%																		
" 20%																		
" 30%																		
	8-(a) 添加剤効果						8-(b) 呉須						8-(c) 釉裏紅					

写真8 あかいし石一柞灰一珪石一大高粘土(D)系における添加剤効果

釉では気泡が多いため染付した線がぼける。

釉裏紅(A)は暗赤色、釉裏紅(B)は明るい赤色を呈し、ほとんどの釉でにじむ傾向がある。

(2) 炭酸バリウム添加の釉性状

炭酸バリウムの添加量が増えると溶けやすく光沢もよくなるが、気泡やピンホールが多くなり、透明釉として適当でない。

呉須は炭酸バリウムの添加量が20%以上になるとにじむ傾向がある。釉裏紅でも炭酸バリウムの添加量が20%以上になると鮮やかな赤色を呈するものの、気泡やピンホールが多く、染付釉としては不適當である。

(3) タルク添加の釉性状

4#、8# 釉にタルク10%添加では、気泡が多く発生する。7#、13# 釉の10%添加では白色結晶による失透釉の釉調を呈するのが特徴である。また、12#、17# 釉では半マットになる。20%添加では4# 釉は光沢失透、17# 釉は不溶、その他の釉はマット調を呈する。30%添加では4# 釉がマット調を呈し、他の釉は不溶である。

この配合では、呉須や釉裏紅に適した透明釉は得られない。

5. 色釉の釉性状について

磁器では染付釉が主に使われるが、色釉としては青磁釉や辰砂釉などが多様されている。基礎釉に添加剤を加えた釉に弁柄2%、炭酸銅を2%及び発色補助剤として酸化錫3%、ピロリン酸カルシウム2%を添加し、1,260℃で焼成した。以下に、その釉調について述べる。

5.1 川平長石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系における色釉と釉性状

この配合系の弁柄添加及び炭酸銅添加による色釉の結果を写真9に示す。

釉番号 添加剤	2#	4#	5#	8#	9#	2#	4#	5#	8#	9#
亜鉛華 10%										
" 20%										
" 30%										
炭酸バリウム 10%										
" 20%										
" 30%										
タルク 10%										
" 20%										
" 30%										
着色剤 ・ 補助剤	弁柄 2%					炭酸銅 2% 酸化錫 3% ピロリン酸カルシウム 2%				

写真9 川平長石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系における色釉と釉性状

(1) 弁柄添加と添加剤効果

- ① 亜鉛華の添加効果では、一般的に灰色—暗灰色、緑色—暗緑色の青磁釉を呈する。中でも2#釉に亜鉛華10%添加した釉が良好である。
- ② 炭酸バリウムの添加効果では、灰色または緑色～暗緑色の青磁釉を示す。4#及び5#釉では釉中に結晶を生じるが、炭酸バリウムの添加量が増えると結晶が減少し、30%添加で消失する。この配合では9#釉に炭酸バリウムを10～30%添加した釉が良好である。
- ③ タルクの添加効果では、10%添加で釉中に結晶の析出した青磁釉が得られ、5#及び9#釉にタルク20%添加、2#及び8#釉に30%添加すると伊羅保調のマット釉となる。

(2) 炭酸銅添加と添加剤効果

- ① 亜鉛華の添加効果では、辰砂釉としては銅の発色がうすく、また暗赤色を呈している。
- ② 炭酸バリウム添加効果では、一般的に鮮やかな赤色を呈する。この配合では9# 釉に炭酸バリウム20%添加した釉が良好である。
- ③ タルクの10%添加では4#、5#及び8# 釉が辰砂釉、9# 釉が均窯釉を呈する。9# 釉にタルク20%添加では均窯マットとなるが、2#、4#、5#及び8# 釉は均窯釉となる。30%添加では、ほとんどの釉が均窯マットになる。

5.2 あかいし石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系における色釉と釉性状

この配合系の弁柄添加及び炭酸銅添加により色釉の結果を写真10に示す。

添加剤	釉番号						釉番号					
	2#	4#	5#	8#	9#	12#	2#	4#	5#	8#	9#	12#
亜鉛華 10%												
" 20%												
" 30%												
炭酸バリウム 10%												
" 20%												
" 30%												
タルク 10%												
" 20%												
" 30%												
発色剤 ・ 補助剤	弁柄 2%						炭酸銅 2% 酸化錫 3% ピロリン酸カルシウム 2%					

写真10 あかいし石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系における色釉と釉性状

(1) 弁柄添加と添加剤効果

- ① 亜鉛華の添加効果では灰色～暗灰色及び淡緑色～緑色～暗緑色の青磁釉を示す。淡緑色の青磁釉は、8[#] 釉に亜鉛華20%添加した釉が良好である。
- ② 炭酸バリウムの添加効果では、一般的に光沢があり気泡のやや多い淡緑色～緑色の青磁釉を呈する。8[#] 釉に炭酸バリウム10%添加した釉が、緑色の青磁釉として使用可能である。
- ③ タルクの添加効果では、10%添加により淡緑色～緑色～暗緑色の青磁釉を示し、9[#] は釉中に結晶が析出する。20%添加では2[#] 釉が緑色の青磁釉、4[#] 及び8[#] 釉が蕎麦釉、5[#] 及び12[#] 釉はマット釉になる。30%添加では、いずれの釉も伊羅保釉になる。

(2) 炭酸銅添加と添加剤効果

- ① 亜鉛華の添加効果では、10%及び20%添加により2[#]、5[#] 及び9[#] 釉が暗赤色を呈する。4[#]、8[#] 及び12[#] 釉は鮮やかな赤色を呈し、良好な辰砂釉である。30%添加では2[#] 釉が暗赤色を呈し、4[#] 及び8[#] 釉は銅の揮発がみられる。5[#] と12[#] 釉は良好な辰砂釉、9[#] 釉は均窯に近い釉調を呈する。
- ② 炭酸バリウムの添加効果では、一般的に添加量が増えると赤色から濃赤色の辰砂釉となる。この配合では4[#] 釉に炭酸バリウムを10%添加した釉が良好である。
- ③ タルクの添加効果では、10%添加により2[#]、4[#]、5[#] 及び9[#] の各釉が辰砂釉を呈し、2[#] 釉が最も良好である。また、12[#] 釉は良好な均窯釉である。20%添加では2[#] 釉が辰砂釉、4[#] 及び5[#] 釉が均窯調の釉調を呈し、8[#]、9[#] 及び12[#] 釉は均窯マットの釉調を呈する。30%添加では、ほとんどの釉が均窯マットを呈する。

5.3 川平長石一柞灰一珪石一大嵩粘土(D)系における色釉と釉性状

この配合系の弁柄添加及び炭酸銅添加による色釉の結果を写真11に示す。

(1) 弁柄添加と添加剤効果

- ① 亜鉛華の添加効果では、一般的に緑色～暗緑色の気泡の多い青磁釉となる。
- ② 炭酸バリウムの添加効果では、気泡やピンホールの多い淡緑色～緑色の青磁釉を呈する。
- ③ タルクの添加効果では、4[#] 釉にタルク10%添加で良好な緑色青磁釉を呈するが、7[#] 及び8[#] 釉は釉中に結晶を析出する。20%添加では7[#] 釉が蕎麦釉になり、他の釉は伊羅保調の釉になる。30%添加では、いずれの釉も不溶である。

(2) 炭酸銅添加と添加剤効果

- ① 亜鉛華の添加効果では全体的に暗赤色の釉調を呈し、亜鉛華の添加量が増えるとピンホールが多く発生する傾向を示す。
- ② 炭酸バリウムの添加効果では、添加量が増えるに従って鮮やかな赤色を呈するが、気泡やピンホール、釉ムラが発生する。
- ③ タルクの添加効果では、10%添加による7[#]、8[#] 及び12[#] 釉、20%添加では殆どどの釉が均窯釉を呈し、各々8[#] 釉と12[#] 釉が良好である。30%添加では均窯マットとなっている。

5.4 あかいし石一柞灰一珪石一大嵩粘土(D)系における色釉と釉性状

この配合系の弁柄添加及び炭酸銅添加による色釉の結果を写真12に示す。

(1) 弁柄添加と添加剤効果

- ① 亜鉛華の添加効果では、一般的に淡緑色～緑色～暗緑色のやや気泡の多い青磁釉を呈する。12[#]

添加剤	釉番号				4#	7#	8#	12#
	4#	7#	8#	12#				
亜鉛華 10%								
" 20%								
" 30%								
炭酸バリウム 10%								
" 20%								
" 30%								
タルク 10%								
" 20%								
" 30%								
着色剤 ・ 補助剤	弁柄 2%				炭酸銅 2% 酸化錫 3% ピロリン酸カルシウム 2%			

写真11 川平長石一柞灰一珪石一大嵩粘土(D)系における色釉と釉性状

- 釉に亜鉛華を10%添加した釉が淡緑色の青磁釉として良好である。
- ② 炭酸バリウムの添加効果では淡緑色～緑色の青磁釉を呈し、7#、12#及び17#釉はピンホールが多く発生する。その他の釉では、炭酸バリウムの添加量が増えるとピンホールが発生する。淡緑色の青磁釉としては、4#釉に炭酸バリウム10%添加した釉が使用可能である。
 - ③ タルクの添加効果では、10%添加により緑色系の青磁釉となるが、7#、12#及び17#釉は釉中に結晶を析出している。20%添加では4#、8#、13#及び17#釉が伊羅保釉となり、30%添加では殆どどの釉が不溶である。
- (2) 炭酸銅添加と添加剤効果
- ① 亜鉛華の添加効果では全体的に暗赤色の釉調を呈している。
 - ② 炭酸バリウムの添加効果では、炭酸バリウムの添加量が増えると鮮やかな赤色を呈するが、釉ムラやピンホールを多く発生する傾向がある。辰砂釉としては7#釉に炭酸バリウムを20%加え

添加剤	釉番号						釉番号					
	4#	7#	8#	12#	13#	17#	4#	7#	8#	12#	13#	17#
亜鉛華 10%												
" 20%												
" 30%												
炭酸バリウム 10%												
" 20%												
" 30%												
タルク 10%												
" 20%												
" 30%												
着色剤 ・ 補助剤	弁柄 2%						炭酸銅 2% 酸化錫 3% ピロリン酸カルシウム 2%					

写真12 あかいし石一柞灰一珪石一大嵩粘土(D)系における色釉と釉性状

た釉が使用可能である。

- ③ タルクの添加効果では、10%添加により4#、7#及び8#釉が暗赤色の釉調を呈し、12#、及び17#釉では均窯釉を呈する。20%添加では4#、7#及び8#釉が均窯釉、12#、13#及び17#釉が均窯マツトを呈する。30%添加では、ほとんどの領域で溶けが甘い。

6. まとめ

県産磁器釉を開発する目的で、石垣産原料を基本原料に基礎釉の配合試験、添加剤効果及び色釉試験を行ない、その結果からいくつかの知見を得ることができた。その概要を以下に示す。

- (1) 川平長石やあかいし石、珪石及び大嵩粘土(D)は磁器釉の基礎釉原料として十分対応できる。
- (2) 本研究で使用した柞灰は若干鉄分が多く、基礎釉に影響を与えている。基礎釉を調整するためには、柞の木の灰化方法や柞の木そのものを吟味する必要がある。

(3) 基礎釉について

- ① 川平長石による配合系よりもあかいし石による配合系の方が、透明釉領域が広い。
- ② 柞灰による配合系では、柞灰中の鉄分により透明釉領域にある釉が青磁調を呈する。また、全体的に気泡の多いのが特徴である。
- ③ 表7に各配合系における良好な基礎釉の原料配合比を示す。

表7. 良好な基礎釉の原料配合比

配合系	釉No.	川平長石 (%)	あかいし石 (%)	石灰石 (%)	柞灰 (%)	珪石 (%)	大嵩粘土(D) (外割%)
川平長石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系	5#	70	—	20	—	10	10
あかいし石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系	4#	—	70	30	—	0	10
	5#	—	70	20	—	10	10
川平長石—柞灰—珪石—大嵩粘土(D)系	7#	60	—	—	40	0	10
あかいし石—柞灰—珪石—大嵩粘土(D)系	7#	—	60	—	40	0	10

(4) 添加剤効果について

- ① あかいし石—石灰石—珪石—大嵩粘土(D)系は亜鉛華の添加量が増えると透明感や光沢を増すが、他の配合系では大きな変化はみられなかった。
- ② 炭酸バリウム添加では気泡やピンホール及び貫入を発生する傾向がある。したがって、良好な透明釉を調製するには10%を限度として試験する必要がある。
- ③ タルク添加では失透釉やマット釉をつくるのに効果的である。
- ④ 呉須及び釉裏紅の発色は、石灰石による配合系が良好である。呉須(A)が呉須(B)よりも発色が濃く、釉裏紅では釉裏紅(B)が明るい赤色を呈する。釉裏紅は発色が難しく、釉裏紅そのものと上掛け釉の組成、焼成方法を検討する必要がある。

(5) 色釉について

- ① 弁柄の添加によって得られる釉調は灰色～暗灰色及び淡緑色～緑色～暗緑色の青磁釉、蕎麦釉や伊羅保釉などである。
 - ② 炭酸銅の添加では、辰砂釉、均窯釉及び均窯マット釉などが得られる。
- 表8は、各配合系における良好な色釉の結果についてまとめたものである。

あ と が き

釉薬は原料の種類やその処理方法、配合や焼成方法の違いによって様々な釉調を呈する。したがって所望する釉調を得るには、くりかえし試験を実施していくことが肝要と思われる。本研究では、石垣島の原料を主体とした磁器釉の開発について基礎的試験を行なった。本研究の成果は、釉原料の開発とともに石垣産磁器製品の開発の一助となるものと考えられる。

本研究を実施するにあたって、石垣市商工課友利一男課長に多大な御協力をいただきました。ここに謝意を表します。

表8 各配合系における良好な色釉

配合系	川平長石—石英—珪石—大嵩粘土(D)系		あかいし—石英—珪石—大嵩粘土(D)系		川平長石—石英—珪石—大嵩粘土(D)系		あかいし—石英—珪石—大嵩粘土(D)系	
	炭酸銅 2% 酸化錫 3% ピロリン酸 2% カルシウム	弁柄 2%	炭酸銅 2% 酸化錫 3% ピロリン酸 2% カルシウム	弁柄 2%	炭酸銅 2% 酸化錫 3% ピロリン酸 2% カルシウム	弁柄 2%	炭酸銅 2% 酸化錫 3% ピロリン酸 2% カルシウム	弁柄 2%
亜鉛華	10%	No.2 青磁	No.4、No.8 No.12 辰砂		No.12 青磁			
	20%		No.4、No.8 No.12 辰砂	No.8 青磁				
	30%		No.5、No.12 辰砂					
炭酸バリウム	10%	No.9 青磁	No.4 辰砂 No.12	No.8 青磁	No.4 青磁			No.17 辰砂
	20%	No.9 青磁	No.9 辰砂	No.8 青磁				
	30%	No.9 青磁		No.8 青磁				
タルク	10%	No.4 辰砂 No.8	No.2 辰砂 No.12	No.5、No.8 No.12 青磁	No.4 青磁	No.4 青磁	No.8 均窯	
	20%	No.5 No.9 伊羅保	No.12 均窯マット	No.2、No.5 No.9 伊羅保	No.4 伊羅保	No.4 伊羅保	No.12 均窯	
	30%	No.2 No.8 伊羅保	No.4 均窯マット No.8	No.2、No.5 No.9 伊羅保	No.4 伊羅保			

参考資料

- 1) 与座範弘、花城可英、宜野座俊夫、照屋善義 (1984) 石垣産磁器原料について、沖縄県工業試験場研究報告、P101 ~ P119
- 2) 与座範弘、花城可英、宜野座俊夫、照屋善義 (1985) 石垣産磁器素地の特性について、沖縄県工業試験場研究報告、P85 ~ 100
- 3) 加藤悦三著、釉調合の基本、窯技社
- 4) 素木洋一著、陶芸・セラミック辞典
- 5) 森田四郎著、陶磁器釉薬について

編 集 沖縄県工業技術センター

発 行 沖縄県工業技術センター

〒904-2234 沖縄県うるま市字州崎 12 番 2

T E L (098)929-0111

F A X (098)929-0115

U R L <https://www.pref.okinawa.lg.jp/site/shoko/kogyo/>

著作物の一部および全部を転載・翻訳される場合は、当センターに

ご連絡ください。