

県産原料による釉薬の開発(3)

— 沖縄伝統釉の調製法とその特性 —

窯業室 照屋善義
与座範弘
富山 進(研修生)
川原小夜()

「**「**釉薬と消石灰による白釉もとの調製法」**」**で得た10種類のもつとを利用して伝統釉の調製を行い釉性状を明らかにした。得られた結果は次のとおりである。

- 1) 釉薬と消石灰を混焼して得るもつの化学組成は、釉性状に大きな影響を与える。特に釉薬から供給される珪酸分の量は、釉組成に影響し釉調に変化をもたらす。
- 2) 伝統的釉配合のもつとは、釉薬5 : 消石灰1の混焼物で得たもつとであるが、このもつとを使用した釉は殆ど貫入が発生した。
- 3) 無貫入の光沢・透明釉を得るためには、釉薬8 : 消石灰1混焼物のもつとが最も良好である。
- 4) 透明釉の色調は具志頭白土の鉄分の影響が強く、同白土の配合が多いと黄味を帯びる。
- 5) 基礎釉に酸化鉄5%、酸化銅4%添加した色釉は、それぞれの配合系に良好な釉と織部釉が得られた。

1. 緒言

沖縄の伝統釉は、具志頭白土-白釉もつと-喜瀬粘土の三原料系で調製される。

具志頭白土と喜瀬粘土は、伝統的な採掘場があって、往昔から今日まで両原料が使用されている。沖縄伝統釉の調製法は、白釉もつとと呼ばれる人工原料を使用することにその特徴がある。

筆者らは「**「**壺屋灰立釉の開発に関する研究」**」**中で白釉もつとの考察を行ったが、今回本研究と関連して白釉もつと(以下もつと)調製法について詳細な検討を行った。

伝統的なもつとの調製法は釉薬5 : 消石灰1の配合物を混焼したのち、それを処理して泥漿として用いることである。

釉調合は一般的に、具志頭白土泥漿2 : もつと泥漿2 : 喜瀬粘土泥漿1の配合比である。

この配合比は伝統技術として継承されているが、釉調製または釉性状との関連性において理化学的考察が不十分であった。

そこで、筆者らは「**「**釉薬と消石灰による白釉もつとの調製法」**」**の研究で得たもつとについて、釉配合試験を行い釉性状を考察するとともに、伝統釉の特性を明らかにした。

以下得られた知見について報告する。

2. 実験方法

2.1 原料処理

具志頭白土は水簸法により軽石、粘土などをなるべく除去した。喜瀬粘土は採掘場で水簸された

市販品をさらに水簸して使用した。もとは文献1で得た10種類の原料である。

2. 2 鉱物組成

島津X線回折装置XD-D1型により原料の組成鉱物を同定した。

2. 3 化学組成

もとはJIS-M8850「石灰石の分析法」、具志頭白土、喜瀬粘土は蛍光X線分析法により測定した。

2. 4 原料配合

図1の14配合について重量法により調査し、水を加え攪拌播潰機で20分間混合し、適当な釉泥漿とした。

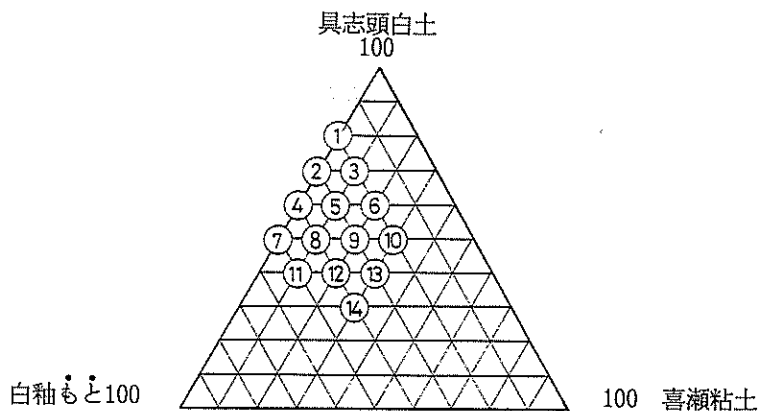


図1 釉葉の配合系と配合番号

2. 5 色釉試験

2. 4 調査の基礎釉に酸化鉄 (Fe_2O_3) 5%及び酸化銅 (CuO) 4%を外割添加し鉄釉と銅釉の性状を調べた。

2. 6 供試体の作製と施釉

市販赤土坏土(壺屋製土工場陶土)を用いて35mm×45mm×8mmの平板を押型成型し、その半分を喜瀬粘土で化粧し、素焼したのち施釉に供した。

2. 7 焼成試験

L. P. G (0.2M³) 窯により、1,230℃で酸化焼成した。

図2に焼成曲線を示す。

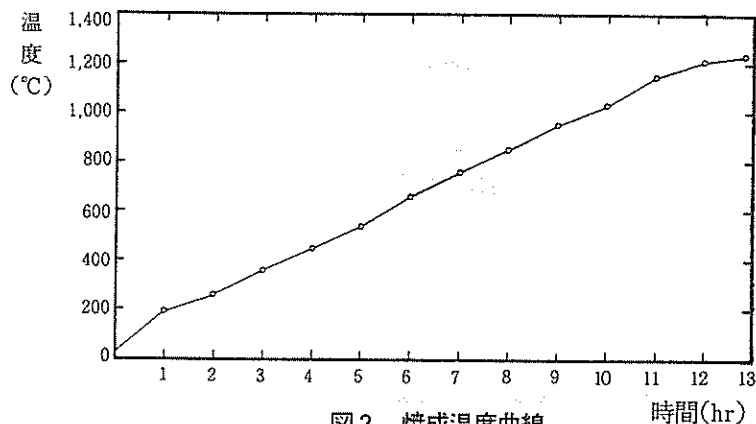


図2 焼成温度曲線

3. 結果及び考察

3. 1 釉原料の特性

3. 1. 1 鉱物組成

図3と図4に釉原料の X線回折の結果を示す。

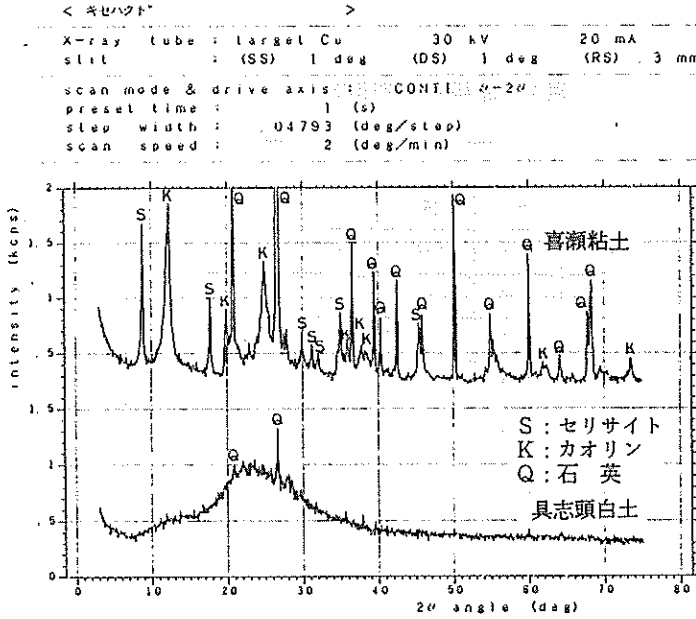


図3 釉原料のX線回折

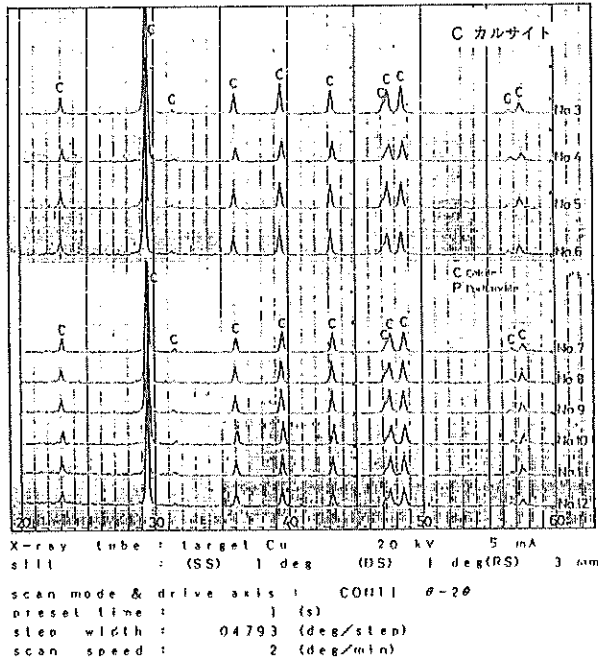


図4 釉原料のX線回折

図3は具志頭白土と喜瀬粘土のX線回折図である。具志頭白土は地質的にも凝灰岩であるためバックグラウンドの高い火山ガラス質からなり、僅かな石英が確認できる程度である。喜瀬粘土の組成鉱物は、ハロサイトとセリサイトの粘土鉱物、それに石英である。図4のものは、殆どカルサイトが確認できる。

3. 1. 2 化学組成

表1に原料の化学組成を示す。

表1 原料の化学組成

No	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 %
1	具志頭白土	74.2	12.3	0.91	0.15	0.74	0.19	3.52	3.13	4.91
2	喜瀬粘土	68.9	20.4	0.65	0.68	0.55	0.31	2.24	0.02	6.22
3	白袖もと(No.3)	9.98	0.07	0.03	—	50.0	0.17	0.11	0.03	40.8
4	白袖もと(No.4)	12.2	0.10	0.03	—	48.2	0.17	0.15	0.04	40.1
5	白袖もと(No.5-2)	12.7	0.15	0.04	—	46.9	0.16	0.18	0.04	39.4
6	白袖もと(No.6)	14.9	0.13	0.04	—	45.3	0.16	0.22	0.04	38.6
7	白袖もと(No.7)	19.0	0.18	0.04	—	44.1	0.15	0.43	0.05	37.4
8	白袖もと(No.8)	19.7	0.18	0.06	—	43.2	0.16	0.44	0.06	37.0
9	白袖もと(No.9)	22.7	0.15	0.06	—	41.5	0.16	0.48	0.06	36.1
10	白袖もと(No.10)	22.5	0.21	0.06	—	41.3	0.17	0.49	0.06	35.1
11	白袖もと(No.11)	33.2	0.34	0.06	—	35.2	0.16	0.77	0.08	30.4
12	白袖もと(No.12)	37.8	0.32	0.07	—	31.2	0.18	0.61	0.09	29.8
1'	具志頭白土	71.3	11.8	1.43	0.20	1.32	0.67	3.59	1.81	5.56
2'	喜瀬粘土	72.0	19.3	1.10	0.58	0.04	—	—	1.46	6.02
5'	白袖もと(5:1)	9.52	0.28	0.13	—	50.6	0.41	0.13	0.11	39.5

※1、2、5は文献2の分析値

No.1, No.2, No.5, とNo.1', No.2', No.5', との違いは、今回精製処理した試料と昭和58年頃の原料の違いである。

具志頭白土の前処理として水簸法によって軽石や粘土類は除去してある。軽石を除去したために鉄分が、1.43%から0.91%に減少している。喜瀬粘土は水簸物であるが、石英の除去に伴い珪酸分(SiO₂)が減少し、鉄分も水簸により減少している。

具志頭白土は伝統的に具志頭長石と呼称されているが、同白土中には、K₂O3.52%, Na₂O3.13%のアルカリ成分を含むために正長石と曹長石を含む鉱物と見做すことができる。下記にノルム計算による鉱物組成を示す。

具志頭白土のノルム計算値

正長石	20.8%	カオリナイト	5.0%
曹長石	26.5%	珪石	38.3%
灰長石	3.7%	その他	5.7%

白釉も^とについては文献1に詳細な報告がある。本研究では^と 3 : 消石灰 1 の配合比から^と 20 : 消石灰 1 の配合比まで種々な配合比で得た10種類^のも^とを使用した。

も^との主成分は、珪酸 (10%~38%)、石灰 (50%~31%)、Ig. Loss (41%~30%) の三成分である。

3. 2 釉の焼成性状

3. 2. 1 各配合系の基礎釉性状

各配合系の基礎釉の性状結果を図5にまとめて示した。なおNo.12配合系は省略した。

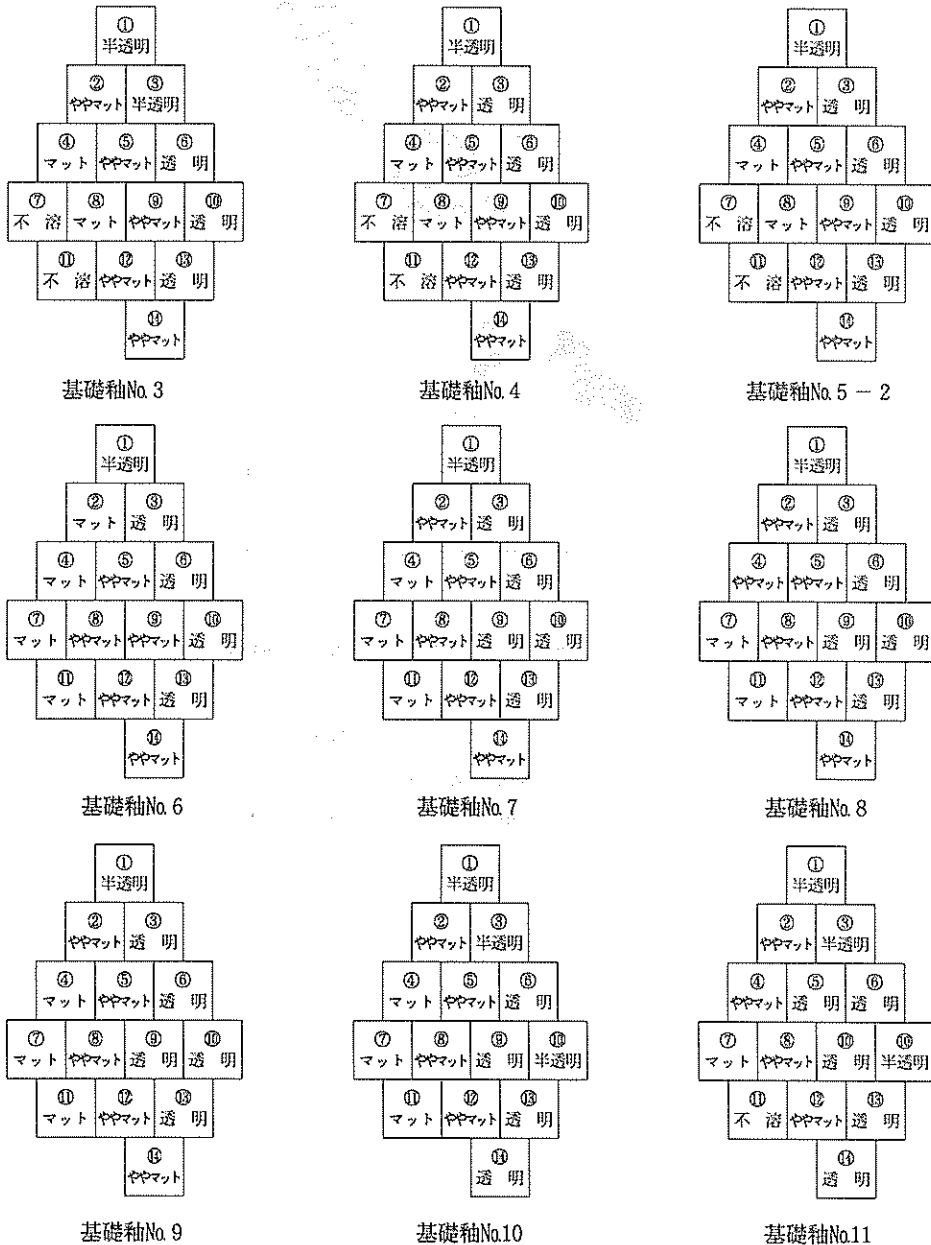


図5 各配合系の基礎釉の性状

3. 2. 2 釉組成と釉性状

図6は10配合系の14配合(140試料)の焼成結果について、石灰(CaO) - アルミナ(Al_2O_3) - 珪酸(SiO_2)成分の関係を示した伝統釉の組成図である。この性状図はもとの違い、つまり粉殻と消石灰の配合比を変えたときどのような釉性状の変化が起きるかを検討する基礎釉である。

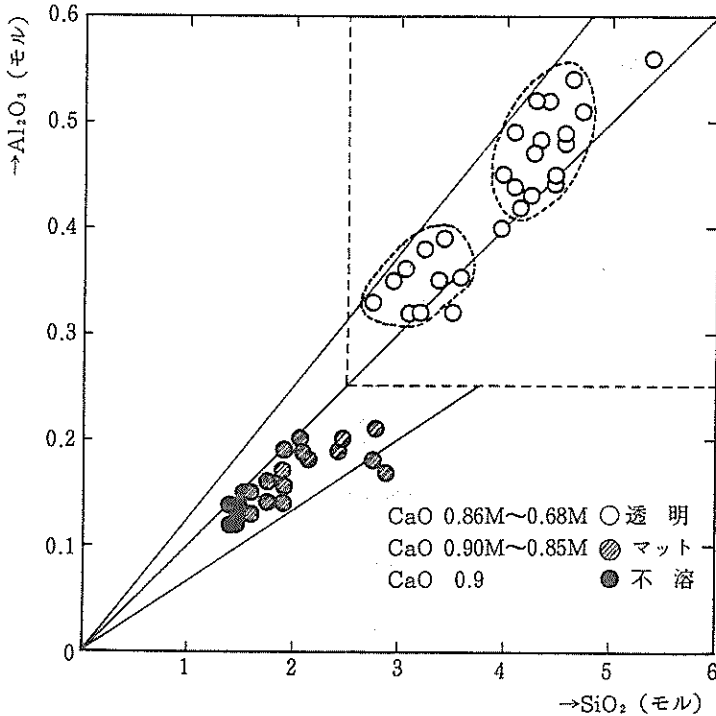


図6 伝統釉の Al_2O_3 - SiO_2 系状態図 (SK7焼成)

透明釉はCaO 0.86モル~0.68モルにおいて、 Al_2O_3 と SiO_2 の比が1:8と1:10との線内領域に納まり、加藤が示した Al_2O_3 - SiO_2 概念図に合致する。さらに図6は Al_2O_3 、 SiO_2 とも少ない領域と Al_2O_3 と SiO_2 ともに多い領域との二領域に区別することが可能である。 Al_2O_3 と SiO_2 の少ない領域は、 Al_2O_3 0.35モル~0.39モル、 SiO_2 2.74モル~3.41モルの範囲内において、この領域には光沢で透明感のある良好な釉が多い。

各配合系では、No.13配合シリーズがそれに相当するが、No.3-13配合とNo.5-13配合の化粧部には貫入が発生している。

これに対して Al_2O_3 、 SiO_2 の多い領域は、 Al_2O_3 0.40モル~0.56モル、 SiO_2 3.99モル~5.40モルの範囲内において、総じて無貫入釉であるが、前者と比較して透明感の劣る硬い釉である。各配合系ではNo.6、No.9、No.10、No.14配合釉にその傾向が見られる。

マット系の釉は、CaO 0.85モル~0.90モルの狭い範囲内において、 Al_2O_3/SiO_2 の値が1:10と1:15との線内の領域において得られる。各配合系ではNo.4、No.7、No.11配合がマット釉である。石灰が0.9モルに対し Al_2O_3 、 SiO_2 とも極端に少ない領域では不溶である。

以上の釉組成と釉性状の結果から伝統釉の基礎性状は、もとすなわち珪殻と消石灰の配合比の影響が大きく、もとの調製法は勿論のこと就中珪殻と消石灰の混焼比が釉組成と釉性状を決定する重要な因子であることがわかった。以下基礎釉について得られた結果を示す。

1) 珪殻 8 : 消石灰 1 のもとが最も良好な透明釉を示した。その配合比は、具志頭 40 : もと 30 : 喜瀬粘土 30 である。また、ゼーゲル式で示せば次のとおりである。

0.15KNaO

0.02MgO 0.38Al₂O₃ · 3.24SiO₂

0.83CaO (Fe₂O₃ 0.57% TiO₂ 0.26%)

伝統的方法の珪殻 5 : 消石灰 1 配合のもとを配合する白釉の配合比は、具志頭 60 : もと 25 : 喜瀬 15 であるが、この配合比は、No.5 配合の 5 # 釉と 6 # 釉の中間釉であり、この配合比では貫入の発生は必然的に起こる結果となる。

貫入の発生は白化粧土と釉との熱膨張係数の違いによって起きる現象であるが、その防止策は、珪殻の多いもとを使用することによって解決できる。

2) 同一配合系において、具志頭白土の多くなる配合の方向に黄味の増す透明釉ができる。

各配合系において、最も具志頭白土の多い (80%) 1 # 釉の鉄分は 0.74% である。これに対し最も少ない (30%) 14 # 釉で 0.48% となり、鉄分に差がある。

赤素地を白化粧する沖縄の陶器は、たまたま黄味を帯びる場合がある。この黄味の程度は、白化粧土の鉄分によるものと見做されがちであるが、本研究の結果が示すように釉薬の黄味すなわち具志頭白土の多い配合釉によって呈色するものであり、釉と化粧土の重なった呈色として評価すべきである。

伝統釉のなかに具志頭イルー⁴⁾と呼ばれる釉がある。具志頭白土泥漿 4 に土灰泥漿 1 の容量比で調製される。この具志頭イルーは具志頭白土を土灰で溶融した黄味の梅花木調の釉である。

3) 各配合系 2 # 釉に乳白状の釉がある。伝統釉のミーシル⁴⁾に類似するが、拡大鏡で観察した結果、微細な気泡による気泡釉であることがわかった。この気泡は釉原料の共融反応において微細な炭酸石灰が分解する際、釉中に残留したものと考えられる。

3. 2. 3 鉄釉の性状

各配合系の鉄釉の性状結果を図7に示す。

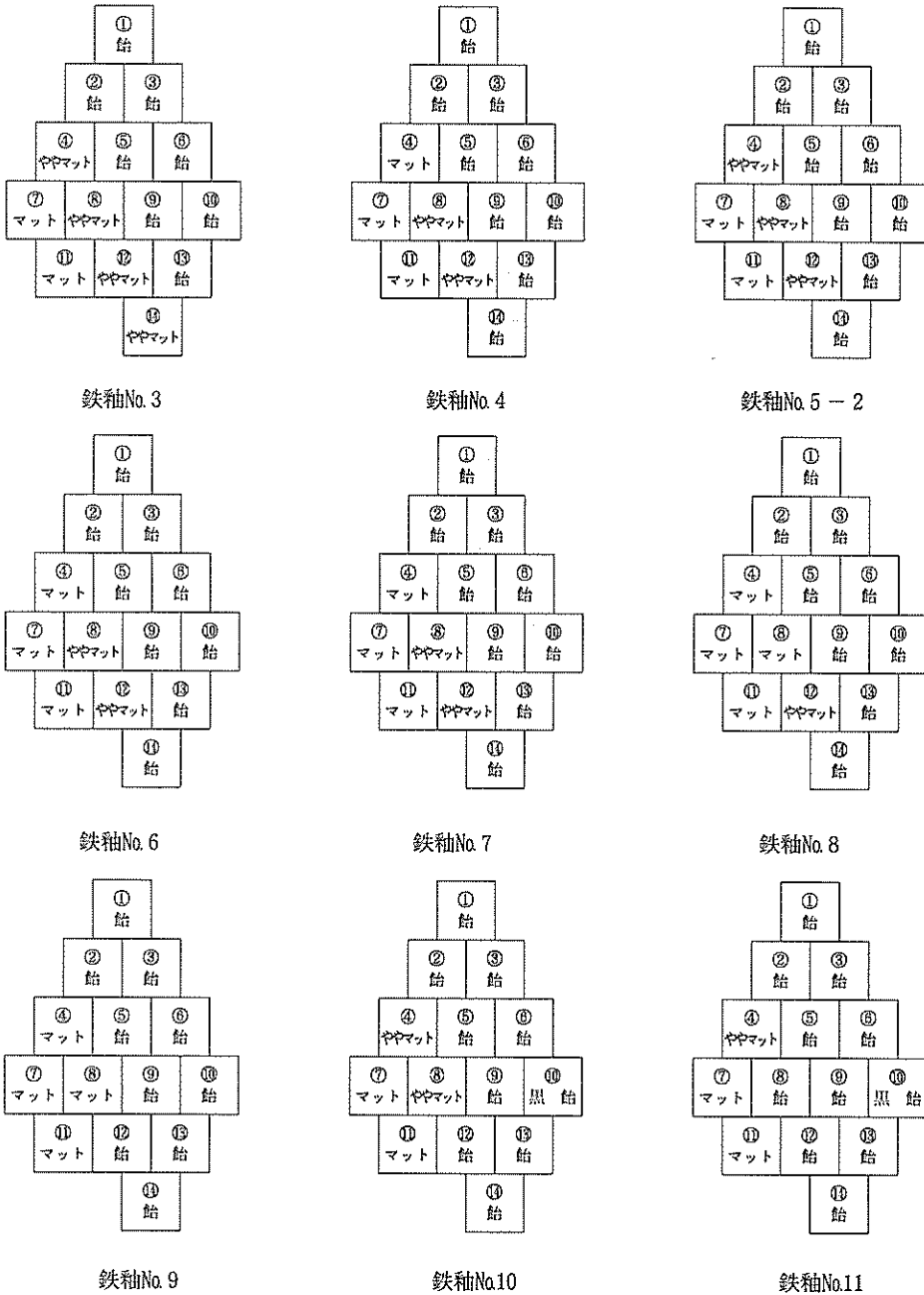


図7 鉄釉の性状

各配合系の基礎釉に酸化鉄5%添加の釉調は、始釉を基調にした釉であり、全体的な傾向として以下の釉調を示す。

- 1) 貫入の発生は、基礎釉の傾向と一致する。
- 2) 具志頭白土が多い配合ほど暗い色調となる。
- 3) No.8、No.9、No.10、およびNo.11の配合系では、もとの配合が30%以下において貫入の少ない飴釉となる。
- 4) いずれの配合系でも、もと添加量が50%ラインにおいてマット調となる。
- 5) 飴釉の調子は、もと20%ラインが良好である。
- 6) 特に好みの飴釉は、No.8配合系の3#釉とNo.15配合系の2#釉である。

3. 2. 4 銅釉の性状

各配合系の銅釉の性状結果を図8に示す。

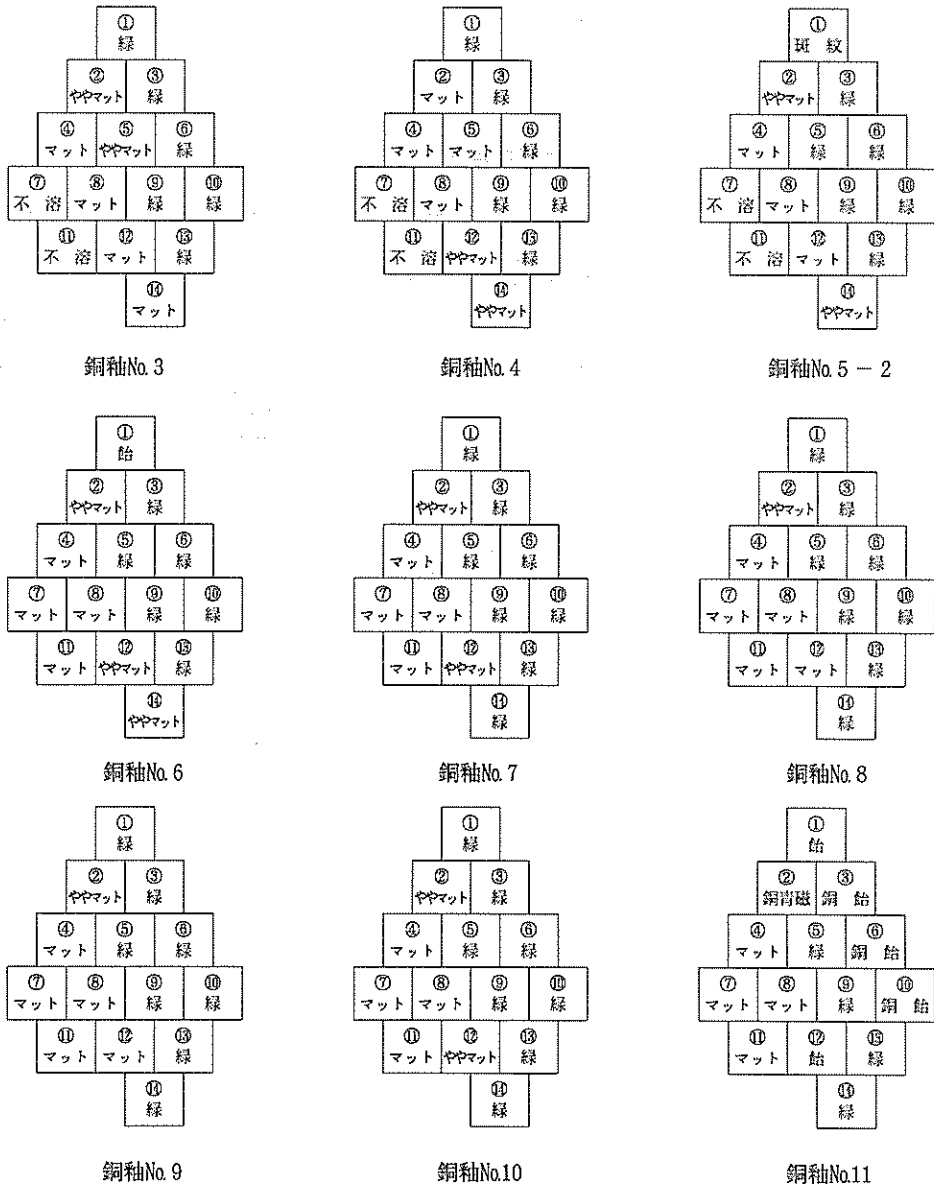


図8 銅釉の性状

各配合系の基礎釉に酸化銅4%添加の釉調は、織部釉の傾向がある。

- 1) 貫入の発生は、透明釉の傾向と一致するが、喜瀬粘土が増え具志頭白土が減る配合ほど貫入は少なくなる。
- 2) 基礎釉、鉄釉の傾向と同様、具志頭白土が多くなるほど暗い織部釉となる。
- 3) 喜瀬粘土30%ラインともと30%ラインの織部釉は良好である。
- 4) いずれの配合系でももと50%ラインの釉は、マット調を示す。
- 5) もと20%ラインにおいて、銅飴釉となる。
- 6) No.6配合の1#釉とその隣接配合において銅斑紋釉が見られる。
- 7) 特に好みの織部釉は、No.8配合の5#釉とNo.11配合の11#釉である。

3. 2. 5 各配合系の良好な釉調と配合

釉の焼成性状の結果から、もとの違いによる釉調と配合割合は表2のとおりである。

表2 良好な釉調と配合比

配合系		配合				添加剤	釉性状
配合系番号	配合系の種類	配合番号	具志頭白土	白釉もと	喜瀬粘土		
No. 5-2	基礎釉	13#	40	30	30	—————	透明釉
	鉄釉	1#	80	20	0	Fe ₂ O ₃ 5%添加	飴釉
	銅釉	13#	40	30	30	CuO 4%添加	緑釉
No. 6 No. 7	基礎釉	13#	40	30	30	—————	透明釉
	鉄釉	13#	40	30	30	Fe ₂ O ₃ 5%添加	飴釉
	銅釉	13#	40	30	30	CuO 4%添加	緑釉
No. 8	基礎釉	13#	40	30	30	—————	透明釉
	鉄釉	3#	70	20	10	Fe ₂ O ₃ 5%添加	飴釉
	銅釉	5#	60	30	10	CuO 4%添加	緑釉
No. 9 No. 10	基礎釉	13#	40	30	30	—————	透明釉
	鉄釉	13#	40	30	30	Fe ₂ O ₃ 5%添加	飴釉
	銅釉	13#	40	30	30	CuO 4%添加	緑釉
No. 11	基礎釉	14#	30	40	30	—————	透明釉
	鉄釉	5#	60	30	10	Fe ₂ O ₃ 5%添加	飴釉
	銅釉	14#	30	40	30	CuO 4%添加	緑釉

また良好なもとのNo.8の配合系の基礎釉、鉄釉、銅釉の結果を写真1～写真3に示す。
基礎釉の13#釉、鉄釉の3#釉、銅釉の5#釉が好みの釉と見なされる。

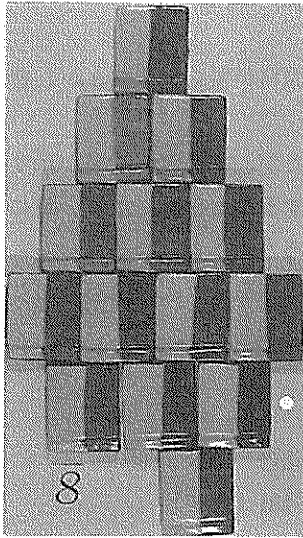


写真1 No.8 配合系基礎釉

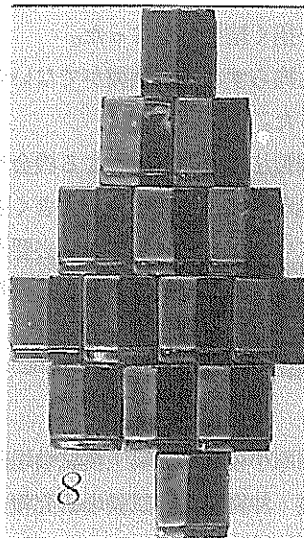


写真2 No.8 配合系鉄釉

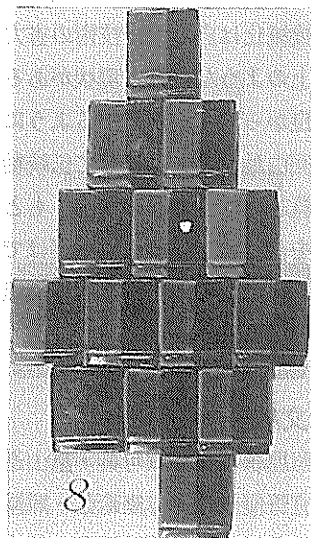


写真3 No.8 配合系銅釉

4. ま と め

以上の実験結果をまとめて示すと次のとおりである。

- 1) もと中の化学組成、特に珪酸分量は、釉組成と釉性状に影響を及ぼす。
- 2) 具志頭白土と喜瀬粘土は、できる限り精製することが望ましく脱鉄効果が期待できる。
- 3) 透明釉の色調は、具志頭白土が多くなる配合では黄味を帯びた釉調となる。従って白化粧土の白さも釉配合の影響を受ける。
- 4) 無貫入の光沢・透明釉を得るには、No.8配合の具志頭白土40%、もと30%、喜瀬粘土30%の配合比が最もよい。
- 5) 基礎釉に酸化鉄5%添加の鉛釉は、No.8配合の具志頭白土70%、もと20%、喜瀬粘土10%の配合釉がよい色調を示す。
- 6) 基礎釉に酸化銅4%添加の織部釉は、No.8配合の具志頭白土60%、もと30%、喜瀬粘土10%の配合釉がよい色調を示す。

あ と が き

釉薬は原料の種類および配合比、窯の種類、焼成法によって変化する。釉調製法においては原料配合比に関心が注がれ過ぎて、原料の前処理がおろそかになったり、焼成法（時間・雰囲気・温度・冷却）の違いがあっても配合比にこだわったりする場合がある。

釉の調子は、原料配合比ではなく、むしろ原料の前処理によってそのノウハウが見えかくれる場合が多い。

沖縄では昔から釉の調合は婦女子の仕事であった。その仕事は終戦直後まで継承されていた。また半農半陶であったし、現在のように量産を必要とすることもなく、のんびりと丁寧に仕事をこなしていたことが想像できる。機械化が進むにつれて丁寧さがなくなり、いろいろな合理化が促進された。機械化は自ら工程技術の省力化を招く結果ともなった。

以上のような背景と現状があるにも拘らず、昔の釉調がでないのは原料が悪くなったとか、昔の窯は良かったとか言及するようになった。

今回白釉ももとに関連して伝統釉の調製法について検討する機会を得たが、本研究の結果が示すように具志頭白土、喜瀬粘土、もとの処理法によって釉調が大きく変化することを知ったし、単に配合比を合わすだけでよい釉薬はできないことも理解しておく必要がある。

本研究は、釉原料の前処理に気を配って得た結果である。伝統釉に興味をもつ人々の参考となれば幸いである。

参考文献

- 1) 照屋善義・花城可英・富山進・川原小夜：沖縄県工業試験場研究報告 18号 (1990)
- 2) 宜野座俊夫・与座範弘・照屋善義：沖縄県工業試験場研究報告10号91 (1982)
- 3) 加藤悦三著：「釉調合の基本」窯技社 (1979)
- 4) 照屋善義：セラミック19 (1984) No.9

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。