

県産原料による釉薬の開発(6)

— オークスヤーの調製法とその特性 —

窯業室 照屋善義
与座範弘
田里博

1. 緒言

沖縄の伝統釉の一つにオークスヤー（琉球青磁いわゆる銅青磁釉）と称されている銅釉がある。オークスヤーは、具志頭白土、白釉、土灰、及び青磁もとの4原料で調合される。オークスヤーの配合は、それぞれの原料をポットミル粉碎し調泥後、具志頭白土（7杯）、白釉（15杯）、土灰（7杯）、及び青磁もと（7杯）の割合で容量法¹⁾により調製されている。

4原料のうち青磁もとは人工原料であるが、筆者らは「真鍮屑と珪灰による青磁もとの調製法」²⁾について検討しその特性について明らかにした。

本研究では、具志頭白土、白釉、土灰を基礎釉原料とみなし、着色材として青磁もとを一定量外割添加したときの銅釉の釉性状について検討したのでその結果について報告する。

2. 実験方法

2. 1 原料の前処理

具志頭白土：水簸法により軽石、粘土等を除去したのちポットミル粉碎し、60目フルイを通して風乾試料とした。

白 釉：具志頭白土40%＋白釉もと30%＋喜瀬粘土30%の配合物³⁾をポットミル粉碎し60目フルイを通して風乾試料とした。白釉もとは、消石灰1と珪穀8の割合で仮焼し得た物である。

土 灰：石垣産土灰を脱鉄したのち水簸法によりアク抜きをくり返し行い、60目フルイを通して風乾試料とした。

青 磁 も と：文献²⁾で得た4種類の青磁もとを使用した。

2. 2 X線回折

釉薬原料の組成鉱物について、島津X線回折装置XD-D1により測定した。

2. 3 化学組成

釉薬原料について、島津ICPS-1000Ⅲにより元素分析を行った。

2. 4 試験体の作製と施釉

市販赤土坯土（壺屋製土工場陶土）を用いて35mm×45mm×8mmの平板を押型成形し、その半分を白化粧し素焼したのち施釉に供した。

2. 5 基礎釉とオークスヤーの予備試験

図-1に示した配合系の66試験体についてガス窯により1,230℃で酸化焼成した、また同配合系の各試料に対し青磁もと25%を添加したときの釉性状についても予備的に検討した。

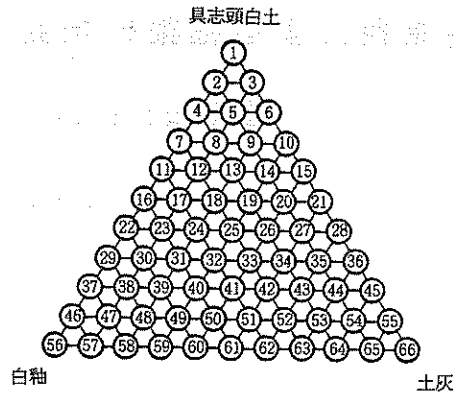


図-1 オークスヤーの基礎釉試験

2.6 オークスヤーの配合試験

図-1の予備試験の結果から、白釉の少ない配合が得策と考えられるため図-2の20#を中心に前後左右の8種類の基礎釉に対し、表-1の1,000℃仮焼物の青磁もとを15%、25%、35%添加した釉調合試験を行った。

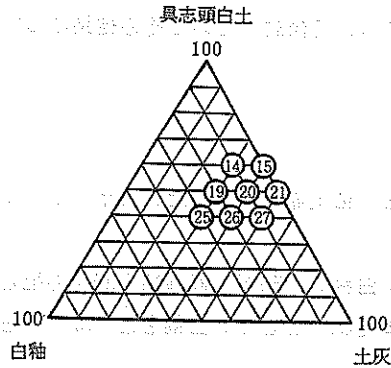


図-2 オークスヤーの配合試験

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-3に焼成曲線を示す。

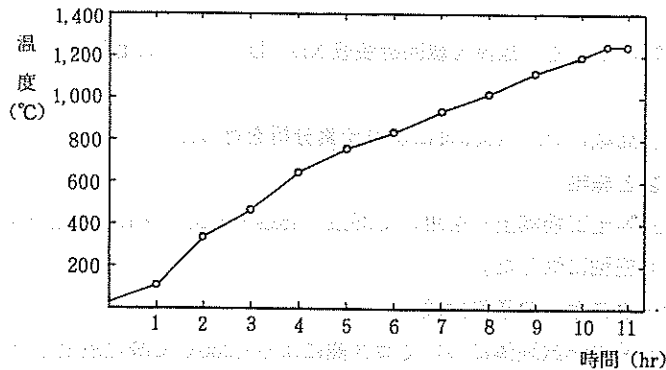


図-3 焼成温度曲線

3. 結果及び考察

3. 1 釉原料の特性

3. 1. 1 鉱物組成

図-4 に使用した釉原料のX線回折の結果を示す。

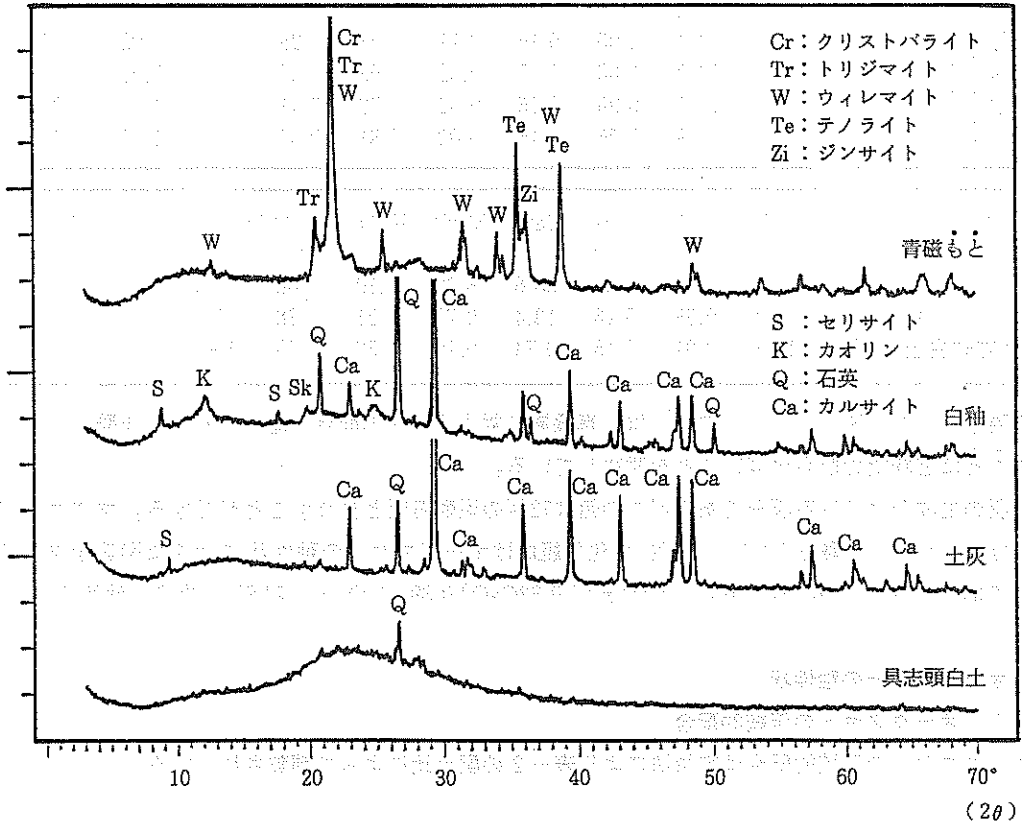


図-4 釉原料のX線回折図

具志頭白土は、非晶質の凝灰岩であることはよく知られている、また化学組成のブルム計算結果からは正長石21%、曹長石27%、灰長石4%、珪石38%その他11%となっており珪長石と見なすことができる。土灰は、カルサイトを主な鉱物として含有し若干の石英と粘土を含む。白釉は具志頭白土、喜瀬粘土、白釉もとの配合物であるためこれらの原料の組成であるカルサイト、石英、カオリン、セリサイトが確認できる。青磁もどはトリジマイト、クリストバライトの他ウィレマイト ($2ZnO \cdot SiO_2$)、ジンサイト (ZnO)、テノライト (CuO) と若干のキュウプライト (Cu_2O) が確認できる。

3. 1. 2 化学組成

表-1 に使用した釉原料の化学組成を示す。

表-1 釉原料の化学組成 (%)

試料名	CuO	ZnO	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	K ₂ O	Na ₂ O	Ig.Loss
青磁もとA ₂	25.6	16.1	54.4	1.00	0.16	0.11	0.67	0.25	0.11	1.02	0.87
青磁もとB ₂	26.1	16.4	54.2	1.00	0.17	0.02	0.68	0.26	0.12	0.98	0.09
青磁もとC ₂	19.6	12.7	64.0	0.89	0.16	0.02	0.72	0.41	0.14	1.09	0.23
青磁もとD ₂	17.3	11.3	67.3	0.96	0.16	0.02	0.81	0.46	0.14	1.15	0.57

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	P ₂ O ₅	MnO ₂
土 灰	18.1	3.69	0.65	0.33	38.6	5.28	0.10	0.08	30.3	3.10	0.72
白 釉	56.3	11.1	0.58	0.26	13.4	0.22	2.21	1.28	14.9		
具志頭白土	74.2	12.3	0.91	0.15	0.74	0.19	3.52	3.13	4.91		

青磁もと (A₂, B₂, C₂, D₂) の違いは、真鍮屑に対する珧灰の配合の違いであって珧酸分の多い青磁もとほど珧灰の配合が高いことを意味している。

土灰の主成分は39%珧灰分であるがこの値は72%の炭酸珧灰と見なすことができる。マグネシア (MgO) 5.3%、リン酸分 (P₂O₅) 3.1% の化学組成はオーグスヤーの釉性状に大きな影響を与える成分である。白釉は (0.15KNaO+0.02MgO+0.83CaO) 0.38 Al₂O₃ · 3.24 SiO₂ 組成の釉薬である。

4. オーグスヤーの釉性状

4. 1 オーグスヤーの伝統的配合

オーグスヤーの伝統的配合は容量法により表-2 の配合比によって調製されている。

表-2 オーグスヤーの伝統的配合

原料名	配合	容 量	配合比	配分容量※	配合比
具志頭白土	泥漿	7	19.4%	13	36.1%
土 灰	泥漿	7	19.4	7	19.4
白 釉	泥漿	15	41.7	—	—
青磁もと	泥漿	7	19.4	7	19.4
白釉もと	泥漿	—	—	6	16.8
喜瀬粘土	泥漿	—	—	3	8.3
合 計		36	100	36	100

※ 配分容量は白釉泥漿15容を伝統的白釉の調合比 (2 : 2 : 1) に従って具志頭白土泥漿 6 + 白釉もと泥漿 6 + 喜瀬粘土泥漿 3 として配分した値である。

4. 2 オークスヤーの基礎釉と予備試験結果

図-5は具志頭白土-白釉-土灰を原料とするオークスヤーの基礎釉である。また図-6は図-5の基礎釉に青磁もと (B₂) 25%添加したときのオークスヤーの釉性状である。

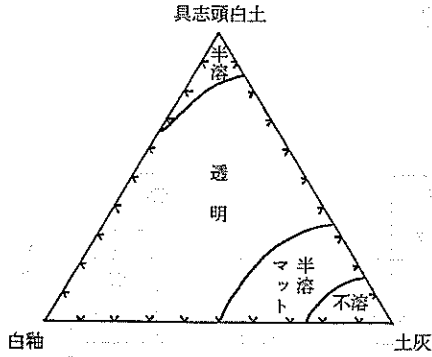


図-5 オークスヤーの基礎釉

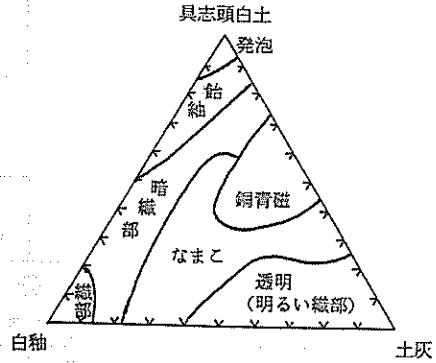


図-6 オークスヤーの釉性状

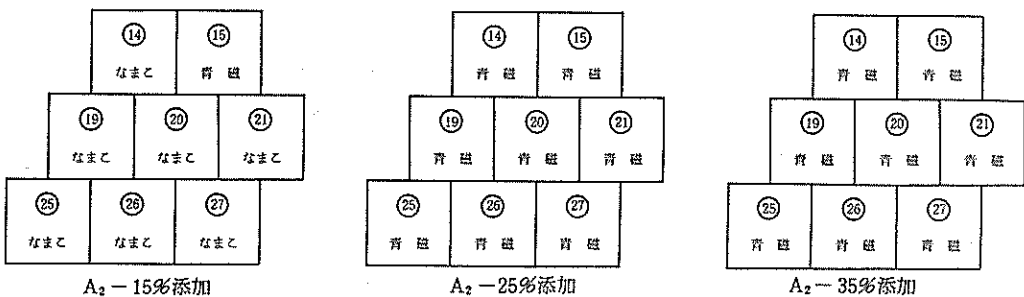
オークスヤーの基礎釉は白釉を頂点に透明領域が広い範囲にできるが、具志頭白土と土灰の多い領域では不溶または半溶マットの傾向を示す。

一般的に銅青磁釉は乳濁釉を基礎釉としそれに乳濁剤を添加して調合⁵⁾するが、オークスヤーの基礎釉はこれらの調合とは異なった内容となっている。この釉の特徴は乳濁領域が確認できないことである。

オークスヤーの基礎釉に青磁もと (B₂) 25%添加した釉調の変化は明らかに銅青磁釉、銅なまこ釉、銅織部釉等の銅釉がみられる。このことは青磁もとの添加効果すなわち青磁もとの主成分である珪酸分、銅分、亜鉛分が釉組成に影響を与えているものと考えられる。

4. 3 オークスヤーの特性について

オークスヤーの基礎釉 Na 14、Na 15、Na 19、Na 20、Na 21、Na 25、Na 26、Na 27 に青磁もと (A₂、B₂、C₂、D₂) をそれぞれ 15%、25%、35%添加し、1,230℃で焼成した後のオークスヤーの性状を図-7に示す。



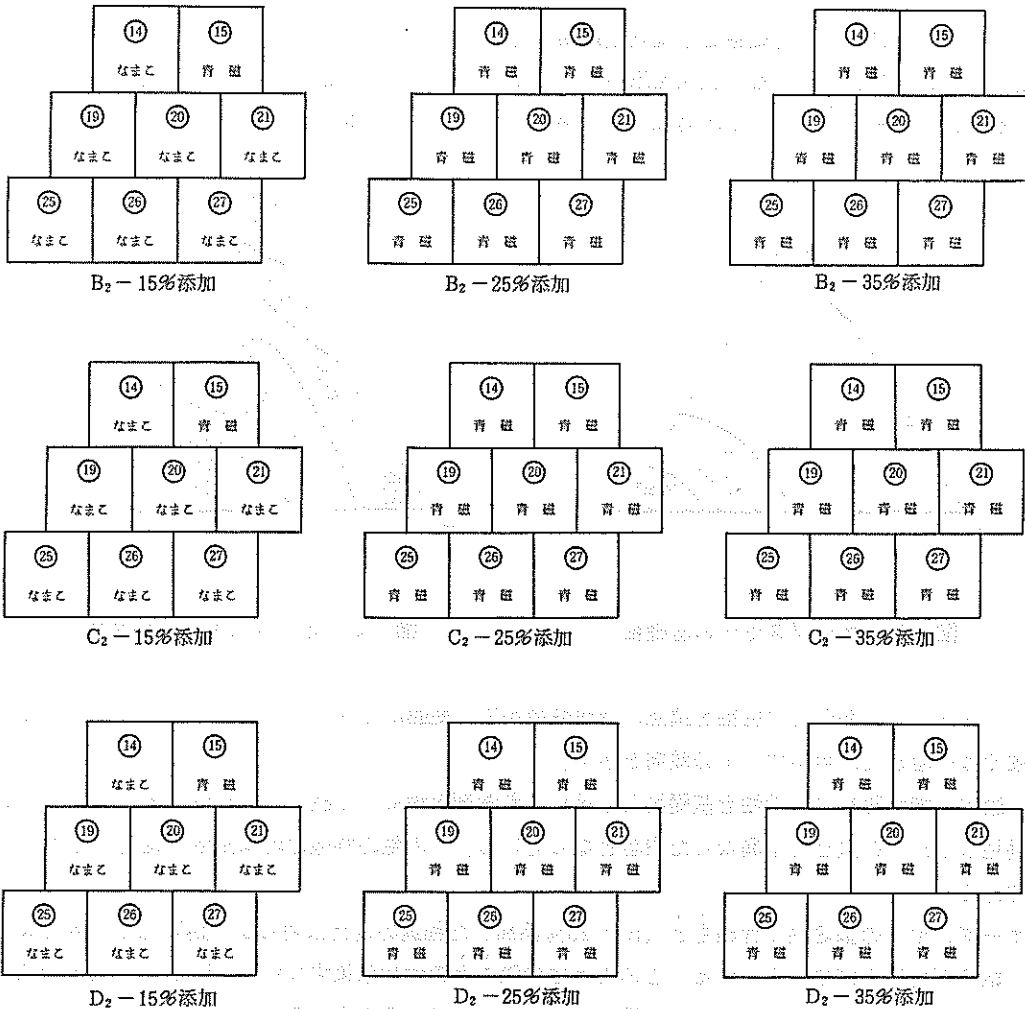


図-7 オグスヤーの釉性状

図-7の結果は、以下のようなオグスヤーのいくつかの特性を示唆している。

- ① 青磁もとの違いによって釉性状が変化する、ヌゲの状態から判断して珪灰配合の多い青磁もほどほど釉が硬くなる。オグスヤー中の銅分 (CuO) は、青磁もと15%、青磁もと25%、青磁もと35%添加でそれぞれ3.4%、5.2%、6.8%である。
- ② Na 14~Na 27の基礎釉に青磁もとA₂ B₂ C₂ D₂を15%添加した場合Na 15釉だけはオグスヤーであり、その他の配合釉はなまこ釉となっている。Na 15釉は具志頭白土と土灰のいわゆる珪長石-土灰系の釉であり白釉を配合しなくてもオグスヤーが可能であることを示している。この傾向は青磁もと25%及び35%添加によってより明瞭である。この結果は珪酸分、銅分、りん酸分が関与しているものと考えられる。
- ③ Na 14~Na 27の基礎釉に青磁もとA₂ B₂ C₂ D₂を25%または35%添加した場合ほとんどの配合釉でオグスヤーとなるが、珪灰の配合が多い青磁もほどほど緑味から青味のオグスヤーに変化

する、と同時に表面に黄灰色の結晶が析出する。

- ④ 以上の結果から良好なオーグスヤーを得るためには、白釉の少ない基礎釉に B₂、または C₂ の青磁もとを25%~30%程度添加し、230℃で焼成することが望ましい。

5. 総括

5.1 オーグスヤーの基礎釉と釉性状との関係

筆者らは具志頭白土-白釉もと-喜瀬粘土の三成分系いわゆる白釉の配合系において具志頭白土(80%)-白釉もと(0%)-喜瀬粘土(20%)を基礎釉とし、それに青磁もたと土灰を50%ずつ配合した着色剤を50%添加することによってオーグスヤーを得ることを確認⁶⁾した。

図-8はオーグスヤーの基礎釉とそれに青磁もたと B₂ をそれぞれ15%、25%、35%添加した時の釉性状の変化である。

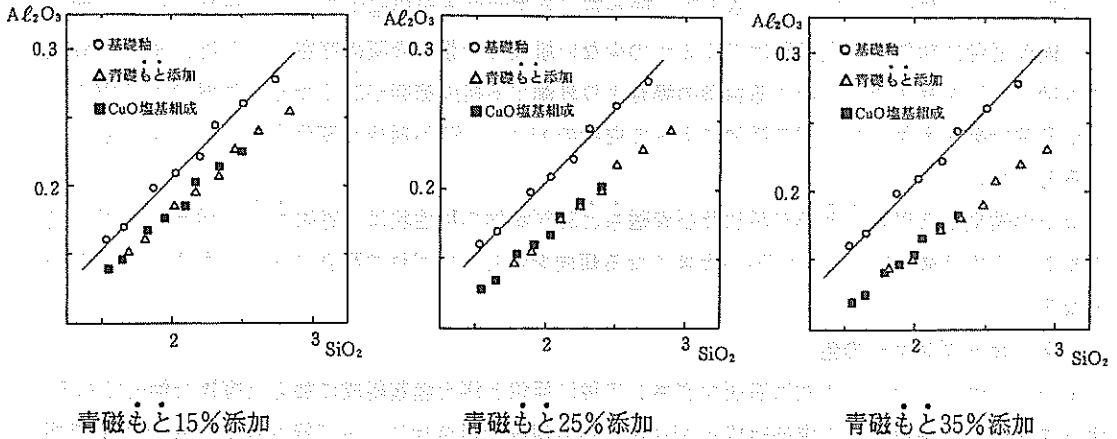
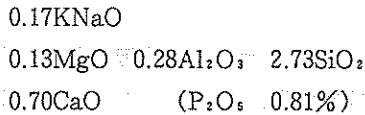


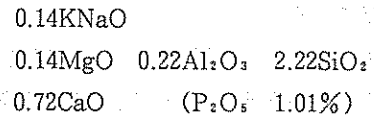
図-8 オーグスヤーの基礎釉と青磁もと添加による釉性状の変化

基礎釉のアルミナと珪酸の比は1本の直線上にのり $SiO_2/Al_2O_3 = 9.4 \sim 9.9$ の範囲にあって透明領域である。

Na 14 基礎釉のゼーゲル式

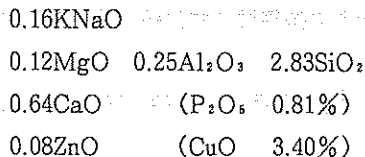


Na 15 基礎釉のゼーゲル式

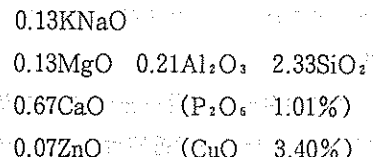


上記基礎釉に青磁もと15%添加したオーグスヤーの釉性状は珪酸が多くアルミナの少ない釉組成となり $SiO_2/Al_2O_3 = 10.7 \sim 11.3$ と変化する。Na 14基礎釉及びNa 15基礎釉のゼーゲル式は次のようになり、それぞれなまこ釉とオーグスヤーとなる。

Na 14 なまこ釉のゼーゲル式



Na 15 オーグスヤーのゼーゲル式



さらにCuO3.4%をゼーゲル式の塩基組成に導入すると $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=10.7\sim 11.3$ と変わらないが珪酸で0.33モル、アルミナで0.02モルと組成が小さくなりゼーゲル式は以下ようになる。

Na 14 なまこ釉のゼーゲル式	Na 15 オーフスヤーのゼーゲル式
0.14KNaO	0.12KNaO
0.10MgO	0.12MgO
0.57CaO 0.23Al ₂ O ₃ 2.50SiO ₂	0.60CaO 0.19Al ₂ O ₃ 2.09SiO ₂
0.07ZnO (P ₂ O ₅ 0.81%)	0.06ZnO (P ₂ O ₅ 1.01%)
0.12CuO	0.10CuO

Na 14のなまこ釉は弱い乳濁釉であり透明性の緑釉から強い乳濁釉に移行する中間体であると考えられており、Na 15オーフスヤーとの違いは珪酸 (SiO₂)、アルミナ (Al₂O₃) 及びマグネシア組成と燐酸 (P₂O₅) 含有量の違いである。

加藤⁷⁾らは、昔から使われている土灰+珪長石 (具志頭白土が相当する) 系の銅釉について検討し、銅青磁釉に類似する乳濁釉はアルミナの少ない組成で少量の骨灰の存在で得られ、また一般的に銅釉では銅を含まないいわゆる白釉の場合より乳濁する組成範囲が広がる。見掛け上は銅の存在が乳濁効果を大きくし、銅の添加によって白釉のAl₂O₃・SiO₂組成が変化することによるものであるとした。

以上の結果から青磁もと25%添加及び青磁もと35%添加の釉性状は、青磁もとが増えるに従ってアルミナ組成は減り $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ が大きくなる傾向を示し、いずれの配合においてもオーフスヤーとなる。

5. 2 オーフスヤーの色

オーフスヤーのゼーゲル式は石灰マグネシア釉に亜鉛と銅を塩基組成に加えた複雑な釉式である。オーフスヤーの呈色はこの塩基組成とAl₂O₃・SiO₂組成の組合せによって緑色系から青色系まで幅広く着色する。

加藤⁷⁾らは骨灰、酸化チタン、酸化スズ、ジルコン等少量の乳濁剤の添加効果について検討し乳濁作用と呈色の変化について言及している。オーフスヤーは乳濁剤の使用はないが、土灰中のリン酸 (骨灰) 分がその役目を担っている。一般的に $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=11.3$ 以下では銅なまこ釉、それ以上においてオーフスヤーとなる傾向を示し青磁もと25%添加で緑色、青磁もと35%添加では青味を帯びてくる。

オーフスヤーに現れやすい欠点として「かぶり」、「ピンホール」、「暗褐色の結晶」⁷⁾が表面に生ずることがある。「かぶり」は10%酢酸液に浸せば取れる、「ピンホール」の防止は決め手が無いようであるが、「暗褐色の結晶」はジルコンやバリウムの添加によって防止できるとしている。

6. まとめ

- ① オーフスヤー (琉球青磁) は具志頭白土+白釉+土灰を基礎釉とし青磁もとを着色剤として添加し得られるが、基本的には土灰+具志頭白土系の基礎釉に酸化銅の着色釉と見なすことができる。
- ② 具志頭白土+白釉+土灰系の基礎釉には、乳濁、透明、失透釉の区分が明瞭でなく、 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=9.4\sim 9.9$ で透明釉の範囲が広い。

- ③ 基礎釉に青磁もとを添加すると銅織部釉、銅なまこ釉、オーグスヤーができる。この場合銅織部釉は、白釉と土灰の多い配合側、銅なまこ釉は三原料の均等な配合域、オーグスヤーは比較的具志頭白土と土灰が多く白釉の少ない領域にできる。
- ④ オーグスヤーの性状は青磁もとの種類と添加量によって大きく変化する。青磁もと15%添加ではなまこ釉ができやすく、25%以上の添加でオーグスヤーとなる。
- ⑤ オーグスヤーの釉組成は $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=11.3$ 以上において呈色する。その場合の塩基組成は石灰マグネシア釉に亜鉛と銅が加わった物である。
- ⑥ オーグスヤーの発色には乳濁剤は添加しないが土灰中の1%前後のリン酸分が発色を助長する従ってオーグスヤーの発色は釉組成とリン酸の複合効果と考えられる。
- ⑦ 良好なオーグスヤーは、白釉の少ない基礎釉に B_2 、または C_2 の青磁もとを25%~30%程度添加し、1,230℃で焼成することによって得られる。

あとがき

オーグスヤーは不安定な土灰や青磁もとを使用し、あるいは容量法により調配合するため発色が不安定と言われている。

本研究は沖縄の代表的な伝統釉であるオーグスヤー（琉球青磁）の配合法と釉性状について明らかにした。伝統的技術に興味を示す現場において参考となれば幸いである。

参考文献

- 1) 照屋善義：セラミックスVol.19、No.9 p33~36 (1984)
- 2) 照屋善義、花城可英、田里博：沖縄県工業試験場研究報告 19号 p101~110 (1991)
- 3) 照屋善義、与座範弘、富山進、川原小夜：工業試験場研究報告 18号 p161~172 (1991)
- 4) 照屋善義、花城可英、富山進、川原小夜：工業試験場研究報告 18号 p131~159 (1991)
- 5) 加藤悦三著：「釉調合の基本」p128~135、窯技社 (1976)
- 6) 宜野座俊夫、与座範弘、照屋善義：工業試験場研究報告 10号 p87~135 (1982)
- 7) 加藤悦三、森田四郎、調子勇：名古屋工業技術試験所報告 第10巻第8号 p514~521 (1961)

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。