

## 15) 有田磁器の源流を求めて

堆積岩(砂石)から調製された唐津焼用陶土の特性

勝木宏昭

約400年前の有田磁器製造技術の源流についてはまだ十分に科学的に検証されていない。また、唐津焼から有田焼への変遷を原料の視点から検証する試みもこれまで十分に行われていない。古くから唐津焼用の陶土には砂岩や砂岩が風化した堆積粘土が利用されていると言われているが、本調査研究では唐津市、伊万里市、武雄市、有田町に広く分布している砂岩の中で、行合野砂岩、芳ノ谷砂岩、畑津砂岩を原料として粉碎—水簸処理により製造されている現在の3種類の唐津焼用陶土の特性(化学組成、鉱物組成、粗粒子の形態、粒子サイズ分布、カオリン微粒子の形態)を検討した。主要鉱物は石英、カリ長石、カオリンであり、セリサイトはほとんど含まれていなかった。ノルム法による鉱物含有量は石英が38~48、カリ長石が26~37、カオリンが17~31mass%であった。どの原料にも粗粒子が多く含まれ、最大粒子サイズは160~260 $\mu\text{m}$ で、平均粒子サイズは24~29 $\mu\text{m}$ であった。

### 1. はじめに

有田泉山の白磁鉱を利用した有田磁器が1616年に創始されて約400年が経過する。白磁鉱が発見される前の1600~1610年代頃には伊万里、有田、武雄地域の多くの窯でも朝鮮半島由来の技術で唐津焼様式の陶器が多量に製造されていたが、有田の西部地区に存在した小溝上、清六、山辺田の窯跡からは陶器の他に白磁や染付けが混在して出土し、1616年前に既に有田で磁器の生産が始まっていた可能性が指摘されている<sup>1)</sup>。しかしながら、1600~1610年代にどのような鉱物原料を用いて磁器の生産が行われていたのか、またその後どのようにして泉山の白磁鉱の利用にたどり着いたのかは不明である。文禄・慶長の頃の朝鮮半島では、オンギ、粉青沙器、李朝白磁技術が高度に完成し、白土(カオリン質、セリサイト質)、花崗岩が風化した高アルミナ質の沙土、白色陶石、砂岩、頁岩が焼き物の原料として広範囲に利用されていた<sup>2)</sup>。文禄・慶長の役で連れて来られた多くの朝鮮陶工は白磁製造技術を持っていたと推察され、以前から唐津地域に帰化していた朝鮮陶工とともに当時の花形商品であった唐津焼の茶器、花器などの陶器を製造していたと言われている。しかし、1594年の「岸岳崩れ」の後には唐津焼発祥地の岸岳周辺の8古窯からほとんどの陶工が有田、伊万里、武雄、松浦、波佐見、三川内等に四散し、広範囲な地域で築窯して唐津焼を製造している<sup>3)</sup>。

1616年以前の有田磁器の製造の源流には、唐津焼の製造技術が潜んでいることを検証するために、現在、唐津焼用の原料として利用されている堆積砂岩由来の陶土の特性について検討を行った。また、各特性を陶石から製造されている天草陶土の特性と比較した。

### 2. 実験方法

唐津市の行合野、芳ノ谷、畑津地区で採鉱され、粉碎、水簸—脱水後、水分を約20mass%含有する3種類の陶土を試料とした。化学組成、鉱物組成をXRF、XRDで評価し、ノルム法により鉱物含有量を算出した。約10gの陶土を200ccの水中で30分間超音波分散処理し、沈殿物と浮遊物を分離した。この処理を数回繰り返して、粗粒子と微粒子を回収した。粗粒子の形態をSEMで、微粒子の形態は超音波処理後、7日間水中に存在していた浮遊物を回収してTEMで観察した。粗粒子の場合は、SEM画像から1 $\mu\text{m}$ 以上の300個の粒子を計測し、平均粒子サイズ、最大粒子サイズを求めた。各特性を市販の天草陶石から製造されている磁器用の陶土の特性と比較して考察した。

### 3. 結果と考察

図1に各陶土のXRD図を、図2には水中に浮遊した微粒子の形態を示す。一般的に天草陶土は石英( $\text{SiO}_2$ )、セリサイト( $\text{K}_2\text{O} \cdot 3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 6\text{SiO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ )、カオリン( $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot$

2SiO<sub>2</sub>・2H<sub>2</sub>O)が主成分であるが、砂岩から調製された3種の唐津焼陶土は主成分として石英、長石(K<sub>2</sub>O・Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>・6SiO<sub>2</sub>、Na<sub>2</sub>O・Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>・6SiO<sub>2</sub>)とカオリンで構成されていた。図2から天草陶土の場合は、粘土の可塑性に寄与するサイズが0.1~1 μm程度の板状のセリサイトが存在し、唐津陶土にはサブミクロン以下の板状のカオリナイトとパイプ状のハロイサイトが多く存在した。

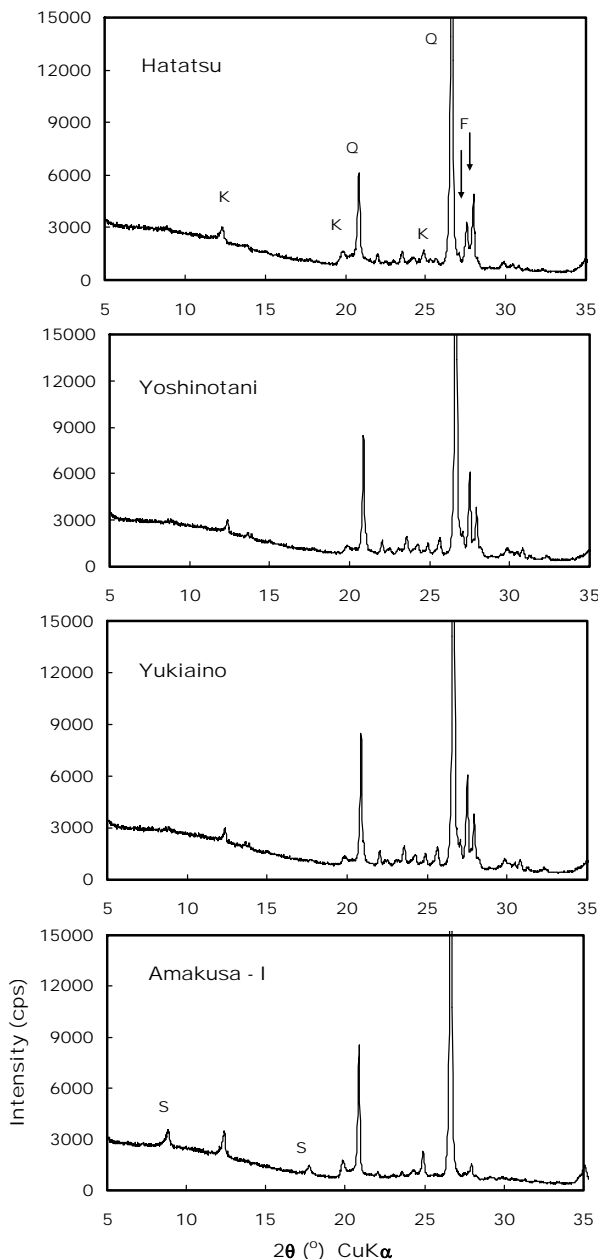


図1 唐津陶土と天草陶土のXRD図  
 Hatatsu(畑津砂岩からの陶土)、Yoshinotani(芳ノ谷砂岩からの陶土)、Yukiaino(行合野砂岩からの陶土)、Amakusa(天草陶土)  
 Q: 石英、K: カオリン、S: セリサイト、F: 長石

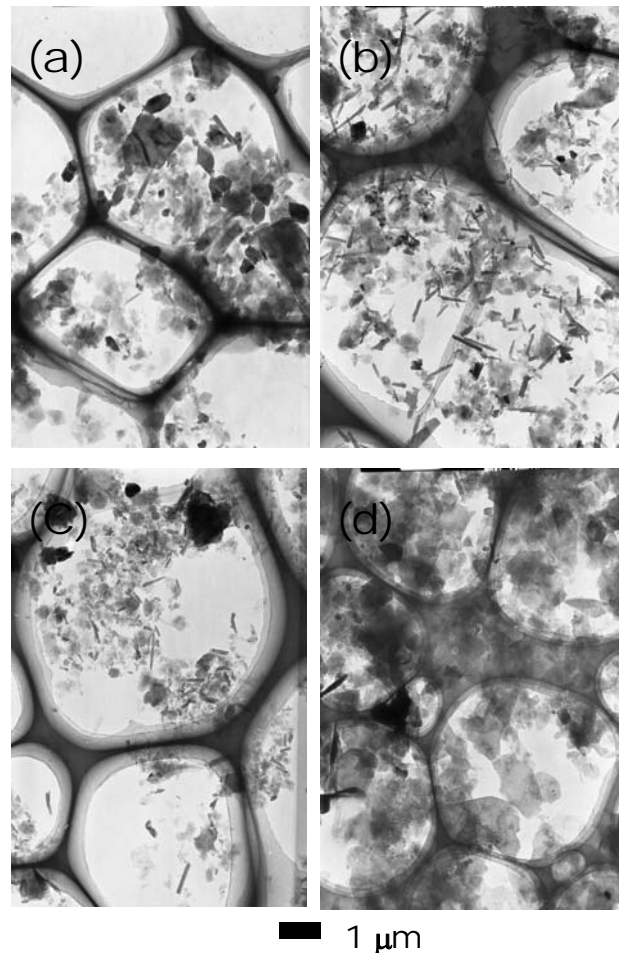


図2 唐津陶土と天草陶土に含まれる微粒子の形態  
 (a)畑津砂岩からの陶土、(b)芳ノ谷砂岩からの陶土  
 (c)行合野砂岩からの陶土、(d)天草陶土

表1、2に各陶土の化学分析値とXRDによる含有鉱物を基にしてノルム法により算出した鉱物組成値を示す。木村らによりX線プロファイル法により算出された汎用天草陶土の鉱物組成は、石英: 51.7、長石: 8.7、カオリン: 12.2、セリサイト: 26.9mass%である<sup>4)</sup>。一方、本研究で利用した現在の市販天草陶土の鉱物のおおよその組成は、石英: 50 - 56、長石: 1 - 5、カオリン: 11 - 17、セリサイト: 25 - 38mass%であった。いずれにしても天草陶土は長石よりもセリサイトとカオリン鉱物を多く含む傾向がある。砂岩からの唐津陶土は、石英: 34 - 48、長石: 26 - 37、カオリン: 17 - 31mass%でありセリサイトの含有がほとんど認められなかった。一般的に、長期間の加水・風化作用により長石が分解してセリサイトになり、その後風化が進むとセリサイトがカオリンに分解すると言われている<sup>5)</sup>。以上のことから、砂岩から調製された現在の唐津焼用の陶土は天草陶土より

表1 唐津焼陶土と天草陶土の化学組成(mass%).

陶土試料	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>	CaO	MgO	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O	Ig. Loss
畑津砂岩陶土	75.27	14.75	0.99	0.53	0.13	0.24	2.6	1.16	3.95
芳ノ谷砂岩陶土	76.93	13.06	0.73	0.33	0.15	0.14	4.13	1.4	2.71
行合野砂岩陶土	70.16	17.27	1.5	0.61	0.25	0.36	3.52	1.56	4.42
天草陶土-I	75.56	16.65	0.4	0.01	0.07	0.08	3.67	0.09	3.19
天草陶土-II	74.04	17.01	0.37	0.04	0.09	0.16	2.9	0.59	4.87
天草陶土-III	70.33	20.05	0.57	0.01	0.07	0.09	4.69	0.07	3.8

表2 ノルム法による各種陶土中の鉱物組成(mass%).

陶土試料	石英	長石	カオリン	セリサイト
畑津砂岩陶土	47.9	25.9	25.3	~0
芳ノ谷砂岩陶土	46.6	37	16.3	~0
行合野砂岩陶土	38.3	30.8	31	~0
天草陶土-I	56.1	0.8	11.6	31.5
天草陶土-II	52.9	4.8	17.1	25.2
天草陶土-III	50.1	1.2	11.4	37.2

も長石とカオリンの含有量が高いことがわかった。泉山陶石から調製されている泉山陶土の特性は現在調査中である。

唐津焼は磁器に比べて焼成後の素地肌が粗い。砂岩から調製された陶土中の粗粒子のサイズやその分布を調べ、天草陶土中の粒子と比較を行った。水簸処理により容器の底に残量した粗粒子の形態を図3に示す。図3に示す粒子はXRD測定の結果、石英と微量の長石からなる。図4に1μm以上の粒子の分布図を、また表3には粗粒子の平均粒子サイズと最大粒子サイズを示す。

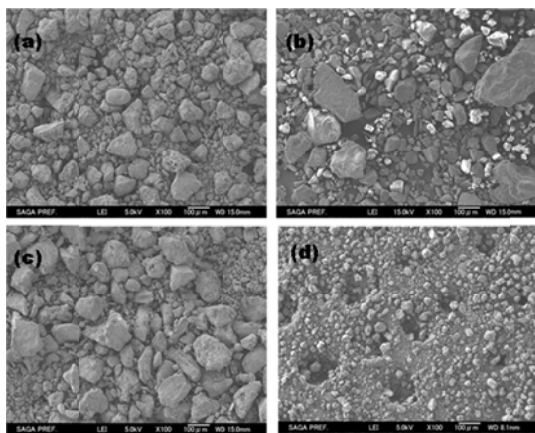


図3 粗粒子の形態

- (a)畑津砂岩陶土中の粗粒子、(b)芳ノ谷砂岩陶土中の粗粒子、  
(c)行合野砂岩陶土中の粗粒子、(d)天草陶土中の粗粒子

天草陶土の場合は陶石が粉碎機により長時間微粉碎されているために粗粒子の形態は一般的に丸く小さく、均一なサイズである。粗粒子の平均径は4.8 - 7.7μmで最大粒子径は高々29 - 55μm程度である。一方、唐津焼陶土の場合はいずれの場合も粗く、平均粒子サイズは24 - 29μmで最大粒子径は160 - 260μmであった。唐津焼

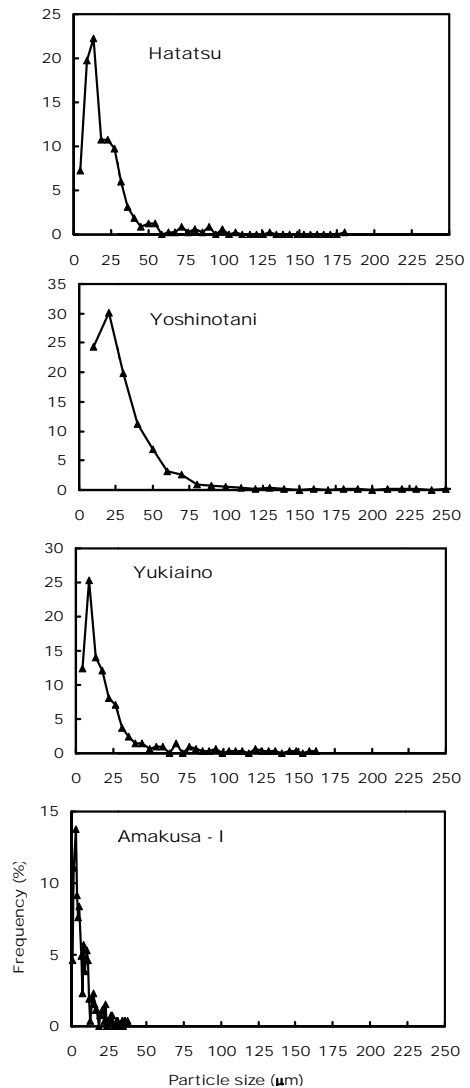


図4 唐津陶土と天草陶土中の粗粒子の粒子径分布.

表3 各粗粒子の平均サイズ、最大サイズ。

陶土試料	粗粒子の平均粒子径 ( $\mu\text{m}$ )	粗粒子の最大粒子径 ( $\mu\text{m}$ )
畑津砂岩陶土	27.5	185
芳ノ谷砂岩陶土	28.5	260
行合野砂岩陶土	24.3	160
天草陶土-I	7.7	37
天草陶土-II	4.8	29
天草陶土-III	6.1	44

陶土中の粗粒子の平均サイズは天草陶土中の粗粒子に比べて、約4～5倍大きいことがわかった。唐津焼独特の粗い地肌を醸し出すことや、高温での軟化変形を防止するために粗粒子を積極的に利用していることがわかった。

今後、砂岩が風化した堆積粘土から現在調整されている唐津焼用の陶土の特性評価や、さらに約400年前に製造された唐津焼の発掘陶片の素地の化学分析、粗粒子サイズの測定を今後実施し、唐津焼から有田焼への変遷を検証する予定である。

#### 4. まとめ

砂岩を原料とする唐津焼用の陶土の特徴について調べた結果、以下のことを明らかにできた。

- (1) 主要鉱物は石英、長石、カオリンであり、天草陶土とは異なり、セリサイトはほとんど含まれていなかった。
- (2) ノルム法による含有量は石英が38～48、長石が26～37、カオリンが17～31mass%であった。
- (3) どの原料にも粗粒子が多く含まれ、最大粒子サイズは160～260 $\mu\text{m}$ で、平均粒子サイズは24～29 $\mu\text{m}$ であった。粗粒子の平均粒子サイズは天草陶土の場合に比べて約4～5倍大きかった。

#### 謝辞

本研究で利用した砂岩由来の3種類の唐津焼用の陶土は、古唐津研究交流会より提供していただきました。ここに、厚くお礼申し上げます。また、本研究の遂行には、佐賀県窯業技術センター元所長 河口純一氏、元技術開発室長 中尾 浩氏、有田歴史民俗資料館文化財課学芸員 村上伸之氏、九州陶磁文化館館長 鈴田由紀夫氏から多大の助言をいただきました。ここに、厚くお礼申し上げます。本報告で利用した図並び表は公益法人日本セラ

ミックス協会学術論文誌, 121(9), 863-866(2013)にて公表済みであり、引用については日本セラミックス協会より許可を快諾していただいた。

#### 参考文献

- 1) 「町内古窯跡詳細分布調査報告書第8集, 小溝上窯・迎ノ原窯」, 1-79 (1995) 有田町発行.
- 2) 申 翰均, 「井戸茶碗の謎」, 127-140 (2008) バジリコ(株)発行.
- 3) 大橋康二, 「土の美 古唐津—肥前陶器のすべて—」, 200-213 (2008) 佐賀県立九州陶磁文化館発行.
- 4) 木村邦夫, 立山 博, 石橋 修, 窯業協会誌, 95(11), 92-94 (1987).
- 5) 田賀井秀夫, 「入門 やきものの科学」, 77-80 (1974) 共立出版(株)発行.