

陶石利用技術支援事業

「泉山陶石 一輪花入れ」展支援

蒲地 伸明

佐賀県窯業技術センター

有田磁石場組合事務所にて開催された「泉山陶石 一輪花入れ」展の支援を行った。泉山陶石のみを原料とする陶土を手ろくろにて成形することから、泉山陶土と天草陶土の違いについて検証した。泉山陶土は硫黄の影響により酸性土であり、成形体の密度は天草陶土に比べ低くなった。又、陶土中に長石鉱物を含み耐火度が低いことが確認できた。得られたデータと過去に泉山陶土を取り扱った経験から、工程上の注意点を指導した。又、素焼き、本焼きの温度を泉山陶土に合わせ調整する必要があったため焼成支援を行った。

Support for The Porcelain stone utilization

“Izumiyama porcelain stone a single-flower vase” exhibition

KAMOCHI Nobuaki

Saga Ceramics Research Laboratory

We supported “Izumiyama porcelain stone a single-flower vase” exhibition held by Arita zisekiba kumiai. The works were made from Izumiyama clay containing only Izumiyama porcelain stone. We confirmed the difference between Izumiyama clay and Amakusa clay. Izumiyama clay is acid clay due to the influence of sulfur, thus the green density is lower than Amakusa clay. Izumiyama clay showed low refractoriness since it contained feldspar. From the obtained data and educated guesses, we supported manufacturing.

1. はじめに

2020年11月19～23日、有田磁石場組合事務所にて有田磁石場組合主催の「泉山陶石 一輪花入れ」展が開催され、泉山陶石のみを原料とする陶土を用い、手ろくろにより成形した31の窯元や作家の作品が展示された。開催案内にある本展の趣旨を以下に抜粋する。

「今回、有田焼の原点である泉山磁石場の陶石のみで作品を制作・展示することにより、先人の偉業を讃えるとともに、有田焼の付加価値とは何かを考える機会といたしました。この企画展で得られた知識や経験を生かし、ブランド土『泉山陶石』の開発を行い、未来の有田焼の可能性を追求することを目的としております。」

案内にあるように、泉山陶石は日本初の磁器原料とされ元和年間以降長年にわたり利用されてきた¹⁾。しかし明治以降、天草陶石の利用が増え、現在、肥前地区で流通している陶土のほとんどは天草陶石を原料とした天草陶土であり、泉山陶石を主原料として一般に流通している陶土は無い。必然的に泉山陶土を用いた製陶経験者も少なく、仮に天草陶土に適化された製造方法で泉山陶土を取

り扱った場合、問題が生じる可能性は高い。

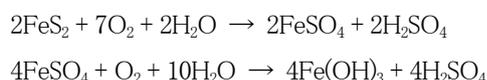
当センターは以前より、泉山陶石の現状確認を行ってきた²⁻³⁾。また、今回、参加者に配布された泉山陶土は製土から5～10年程度寝かしたもので、センターが圧力鋳込み成形の支援を行い2019年3月に泉山磁石場に設置された陶板モニュメントの製作に用いられた陶土と同じものである⁴⁾。そこで有田磁石場組合から泉山陶土の取り扱いに関して当センターへの協力の依頼があり支援を行った。

2. 泉山陶石と天草陶石

泉山鉱床、天草鉱床共に多くの調査報告がある。それぞれの陶石から製土した泉山陶土、天草陶土の性状の違いを説明するためにこれらの調査報告を抜粋する。両陶石ともに主成分鉱物は石英、絹雲母であり副成分鉱物として、カオリナイト、長石類を含む。磁器原料として用いられる陶石は長石類が殆ど含まれないものが選別される。

白磁を製造する上で問題となるのが不純鉱物として含まれる鉄系の鉱物であり、黄鉄鉱(FeS₂)、褐鉄鉱(FeOOH)、菱鉄鉱(FeCO₃)等がある。このうち黄鉄鉱は泉山陶石のみに確認され、流通する天草陶石には含まれていない。上野による天草鉱床の調査によると天草鉱床でも深部においては黄鉄鉱の密度が増すが、採掘の対象となる浅部においてはほとんど認められないと報告されている⁵⁾。一方で、同じ上野の泉山鉱床の調査では泉山鉱床が全体に著しい黄鉄鉱化作用を受けており、陶石中に常に若干の黄鉄鉱が含まれることを報告している⁶⁾。

黄鉄鉱は酸素と水と反応し、以下のような化学反応により最終的に水酸化鉄と硫酸を生じる。



陶石は流紋岩が熱水変質を受けることにより形成されるが、泉山鉱床の陶石化の時代は K-Ar 年代測定等により 2.4~2.6Ma (Ma は 100 万年前を示す単位)、天草鉱床の陶石化の時代は 13~16Ma と推定されている⁷⁻⁸⁾。従って泉山鉱床は天草鉱床に比べ形成された年代が 1,000 万年以上若いため黄鉄鉱の風化が進行しておらず、陶石中に多く残っていると考えられる。かつては、泉山鉱床では陶石を放置し風化による黄鉄鉱の消失、二次富鉄化を待つて利用されたと伝えられている⁹⁾。

3. 泉山陶土及び素地の諸物性

支援にあたり、今回参加者に配布された泉山陶土及び素地の物性を確認した。

レーザー回折式粒度分析装置(セイシン企業製、LMS-2000e)を用いて測定した泉山陶土の粒度分布を図1に示す。中心粒径は 5.4 μm で 100% 粒子径が 75 μm と標準的な肥前地区の磁器用陶土の粒度分布を持つことが判った。

表1 泉山陶土と天草陶土の化学分析値(mass%)

原料名	LOI	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	SO ₃
泉山陶土	3.24	76.32	14.82	0.68	0.05	0.04	0.05	0.04	4.27	0.29
天草撰上陶土	3.65	74.18	17.42	0.47	0.01	0.08	0.06	0.11	3.63	--

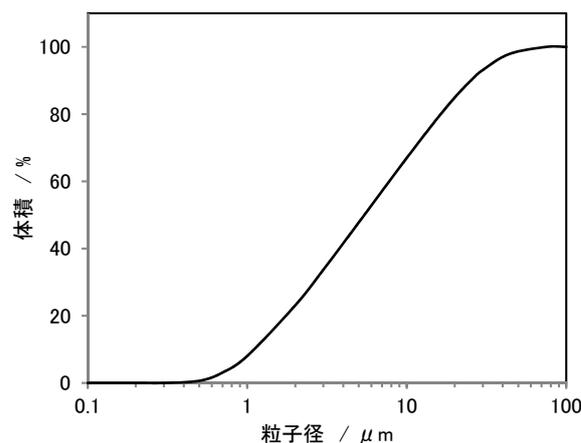


図1 泉山陶土の粒度分布

蛍光X線分析装置(Rigaku 製、ZSX PrimusII)を用いて検量線法により定量分析した泉山陶土及び比較試料の天草撰上陶土の化学組成を表1に示す。ただし SO₃については FP 法による定量値である。表から明らかなように泉山陶土は天草撰上陶土と比較して SiO₂ 及び K₂O の含有量が多く Al₂O₃ は少ない。また SO₃ 換算で 0.29mass%の硫黄成分が確認された。

X 線回折装置(リガク製、SmartLab)により測定した泉山陶土及び天草撰上陶土の X 線回折パターンを図2に示す。両陶土とも主構成相は α-Quartz, Muscovite, Kaolinite であるが、泉山陶土には Microcline 等のカリ長石のピークも明確に認められた。本来、高い耐火度を必要とする磁器用の原料としては長石を含む陶石は避けるべきであるが、以前報告したように³⁾泉山陶石の選鉱を実施するのは困難な現状があり長石の混入は避けられない。なお、黄鉄鉱に関しては陶土の回折パターンでは確認できなかった。黄鉄鉱が陶土中に残った場合、焼成後に黒点となって現れるが、今回展示された作品において黒点はほとんど認められなかった。このことから、ほとんどの黄鉄鉱は製土工程における水篩および篩(粒度分析における最大粒子径から 200mesh と推定される)によって除かれたと考えられる。

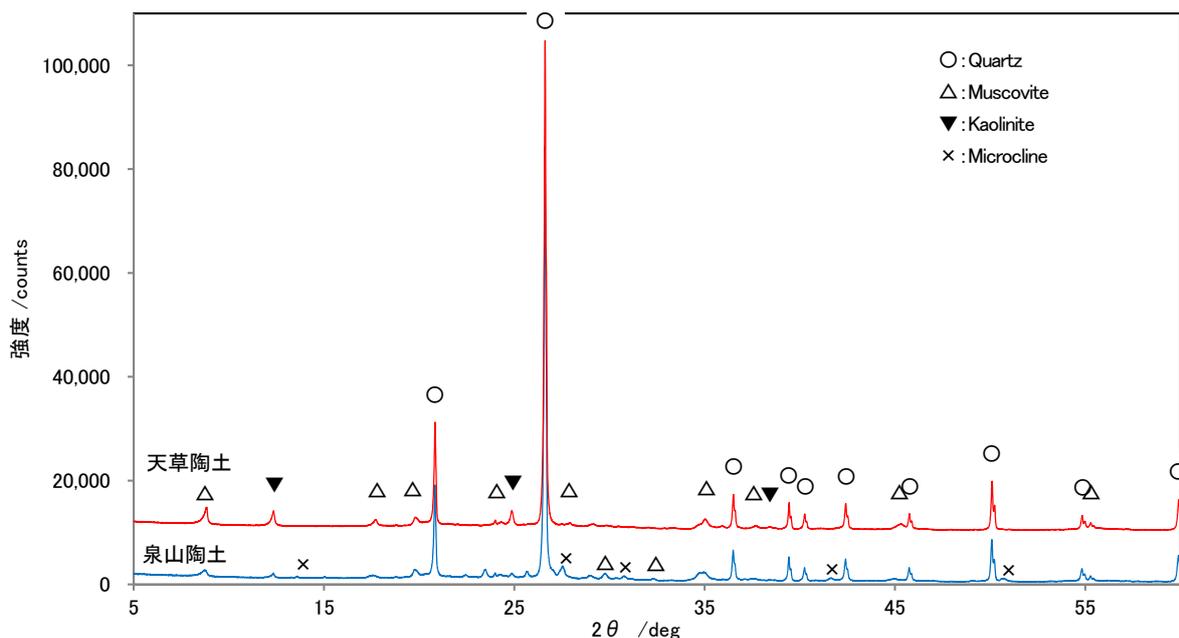


図2 泉山陶土と天草陶土のX線回折パターン。

JIS R2204による耐火度測定(戸田超耐火物製、TODA’ S ミニファーネス)の結果は SK16(熔倒温度 1460℃)と天草撰上陶土の SK28(熔倒温度 1630℃)と比較してかなり低いものとなった。

昇温速度 10℃/min の条件でディラトメーター(Bruker Corp 製、TD5000SA)により測定した生地膨張収縮曲線を図3に示す。泉山、天草生地共に1080℃付近から急激に収縮を開始しており、焼結開始温度はほとんど差がないことが分かる。収縮の進行は泉山生地が早く1365℃で最大の収縮率を示した後ブローティングによる膨化に転じている。一方、天草生地は焼結が緩やかであり1400℃

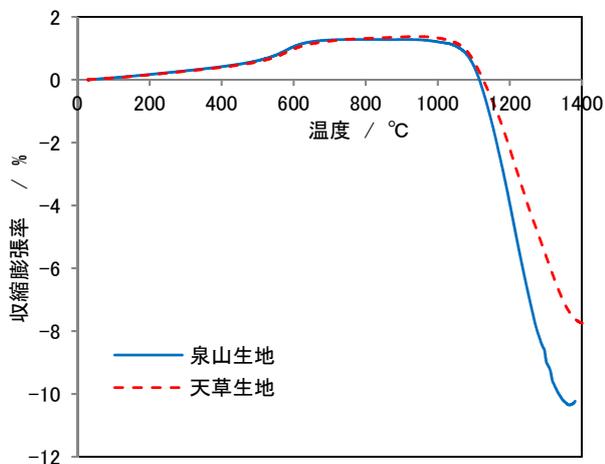


図3 泉山陶土と天草陶土の膨張収縮曲線。

までの測定ではブローティングは確認できなかったが、1400℃で収縮の進行はほぼ停止した。今回のロットの泉山生地の焼成は天草生地よりも30~40℃低い温度が望ましいことが明らかとなった。なお、酸化雰囲気かつ急速昇温の計測結果であるため、実際のガス窯による昇温速度100℃/h程度の焼成と比較し膨張収縮曲線は高温側にシフトすることに注意が必要である。

泉山陶土は硫酸根の影響により酸性土になり易い。そこで、粘土ハンドブックの粘土浸出液のpH測定方法⁹⁾を参考に、陶土10gに蒸留水50mLを加え2時間攪拌後、陶土浸出液のpHをpHメーター(東亜DKK製、HM-30R)にて測定した。天草撰上陶土浸出液はpH6.8と中性であったが泉山陶土の浸出液のpHは4.9と弱酸性を示した。

乾燥生地の締りを確認するために、手の感覚で同程度の硬さに練り上げた陶土を押し型で成型し乾燥後、3mm程度に粉碎し、水銀圧入法(島津製作所製、オートポアIV9520)により細孔分布を測定した。結果を図4に示す。細孔直径0.3μm以下の領域で明確な差が表れており泉山生地の細孔容積が大きい。両陶土の見かけ密度は共に2.59g/cm³であったが嵩密度は天草生地で1.84g/cm³、泉山陶土で1.66g/cm³と泉山生地は天草生地に比べ締まりが悪いことを示した。なお、気孔率は天草生地の29%に対して泉山生地は36%であった。

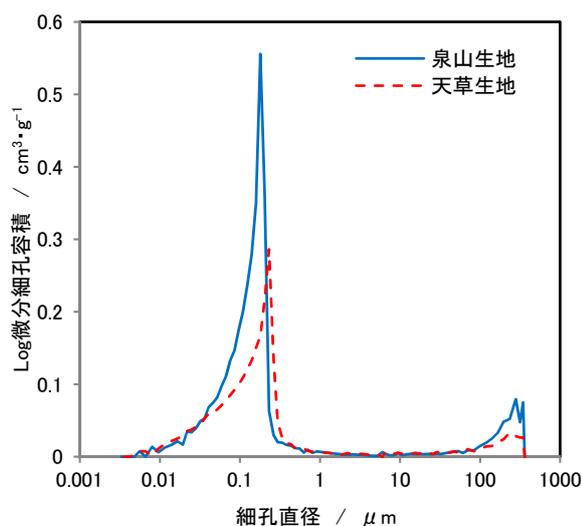


図4 泉山生地と天草生地の細孔分布

4. 泉山陶土の取り扱い

以上の泉山陶土と天草陶土の諸物性の違いをふまえ、泉山陶土使用方法の支援を行った。以下、工程別に泉山陶土使用における注意点と支援内容を記す。

4.1 成形

今回の泉山陶土はpH4.9と弱酸性を示したが酸性領域では粘土鉱物は端面電荷がプラス電荷となるため、層面のマイナス電荷との関係で層面一端面結合状態であるカードハウス構造をとり易くなり可塑性が低下する。又、生地の細孔分布で明らかになったように成形体密度が上がりにくく力が陶土に伝わりにくい。天草陶土と同じ感覚でろくろ成形を行った場合、表面の陶土だけが移動している状態になり、表面と内側で粗密差が生じやすく乾燥割れが生じやすくなる。特に高台内では中心にS字クラックが発生し易く注意が必要である。陶土に水ガラス等のアルカリを添加し酸を中和することで陶土の締りは改善するが、入れすぎた場合、成形腰が無くなるためアルカリの添加には慎重を要する。

4.2 乾燥

泉山陶土成形体は生地の締りが悪く、気孔が多いため乾燥速度は天草生地に比べ速くなる。よって生地の乾燥むらによる乾燥割れが生じやすい。生地をビニールで覆うなど乾燥速度が遅くなるように気を付ける必要がある。

4.3 素焼

天草生地は900～950℃で素焼きを行う場合が多いが、生地の嵩密度が低い泉山生地の場合、天草生地と同じ温度での素焼きでは素焼き強度が不足する。表面がザラザラとした粉っぽい状態となる上に、気孔率が高いことで施釉時の吸水に素地が耐えられず釉薬中で爆発し破損することが多い。特に大物になるとその傾向が顕著となる。素焼き強度を高めるために1000℃以上の素焼きを推奨した。

通常の素焼き温度よりも高いことから、対応できない展示会参加者へ1,000℃による素焼きの支援を行った。1,000℃素焼き泉山素地の表面状態はざらつきもほとんどなく、900℃素焼きの天草素地と同じ程度の質感であった。

4.4 本焼成

本焼成における最高到達温度は素地の熱膨張に大きな影響を与える。耐火度の低い泉山陶土を天草陶土と同じ1,300℃前後で焼成した場合、石英粒子の熔融が進み熱膨張が低くなる。当センターの過去の泉山陶土を用いた試作では焼成体の線膨張係数が $6.0 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ を下回った例もある。 $7.0 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 前後である天草素地に合わせて $6.0 \sim 6.5 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ で調整されている一般的な肥前地区の釉を用いた場合、貫入が生じる恐れがある。そこで今回は膨張収縮曲線から判断し通常より30～40℃低い1260～1270℃程度での本焼成を推奨した。素地の焼締りだけを考えるとさらに20℃程度低い温度でも問題は無いと思われるが、今回の展示会での作品は一輪花入れと比較的焼成変形に強い形状であったことと、参加者で様々な釉が使用されることから釉の融け不足を生じない温度ということで判断した。

また、硫黄成分が残留した素地は還元焼成開始時に煤を巻き込み易くなり本焼成後の素地は灰色となり易い。この現象は酸化焼成時に温度が上がりにくい窯の棚組の下段、さらに棚板に近く温度が上がりにくい生地の下部で特に発生し易い。したがって下段の製品も十分に温度が上昇してから還元焼成を開始する必要がある。天草生地の焼成においては900～950℃で還元焼成に移行するが、泉山陶土では1,000℃以上で還元焼成を開始することが必要となる。

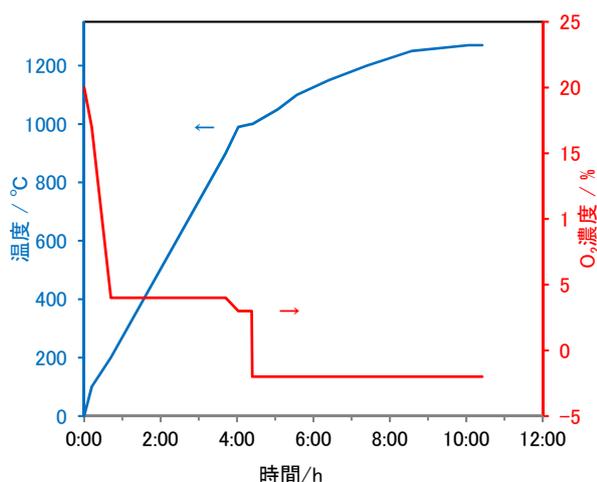


図5 本焼成の焼成パターン。

センターで焼成支援を行った焼成パターンを図5に示す。焼成体に貫入や、煤の巻き込みは確認されず、良好な状態であった。しかし一部の作品では焼成変形が認められたため釉の熔け等を考慮した上で、さらに低い温度での本焼きが望ましいと思われる。

5. まとめ

「泉山陶石 一輪花入れ」展を支援するにあたり、改めて泉山陶土の性状の確認を行った。前回、同ロットの陶土による陶板モニュメントの製作を支援した際には、泉山陶土としては比較的低含水率となる含水率25%の圧力用泥漿が調整可能で、圧力鑄込み成形も問題なく実施できた⁴⁾。さらに製土から5年以上の寝かしが行われている本ロットの泉山陶土は近年になく良質なものであるが、天草陶土との作業性の差は大きいものであった。

素焼き温度や本焼き温度、還元焼成に移行するタイミングを泉山陶土に合わせることで、焼成による不具合は一部の作品で変形が生じた程度で、焼成呈色や焼締りについては良好な結果を得ることができた。

泉山陶土の扱いにくさの原因のほとんどが硫酸根に起因することが明らかになったことから、今後の泉山陶石の活用のためには脱硫処理を十分に考慮する必要がある。陶石を小粒程度まで粉碎し、放置し雨水にさらして、脱硫の進行速度を確認する等の検証を今後実施していきたい。

謝辞

本支援事業を行うにあたり、泉山陶土をご提供いただいた有田磁石場組合に、深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 中島浩気, “肥前陶磁史(復刻版)”, 名著出版, 85-99 (1974).
- 2) 寺崎信, 蒲地伸明, 白石敦則, 川原昭彦, 釘島裕洋, 佐賀県窯業技術センター 平成20年度 研究報告書, 84-88 (2009).
- 3) 寺崎信, 蒲地伸明, 吉田秀治, 佐賀県窯業技術センター 平成23年度 研究報告書, 16-22 (2012).
- 4) 藤靖之, 蒲地伸明, 鮎川祐太, 佐賀県窯業技術センター 平成30年度 研究報告書・支援事業報告書, 23-25 (2019).
- 5) 上野三義, 地質調査所月報, 3, 405-420 (1952).
- 6) 上野三義, 地質調査所月報, 11, 155-172 (1960).
- 7) 濱崎聡志, 地質調査所月報, 47, 201-206 (1996).
- 8) 三浦千佳, 大平寛人, フィッション・トラック ニュースレター, 24, 75-78 (2011).
- 9) 大沼正吉, “粘土ハンドブック”, 日本粘土学会編, 519-523 (1967).