

経常研究

低温焼成可能な坯土及び釉薬に関する研究（第2報）

星 佳宏* 松本 健一* 早川 嘉* 小林 渡*

Study on Low-temperature Firing Clay and Glaze (2nd Report)
HOSHI Yoshihiro, MATSUMOTO Kenichi, HAYAKAWA Yoshi and KOBAYASHI Wataru

低温焼成が可能な坯土及び釉薬の開発を目的として、1200℃で焼成可能な坯土とそれに適合する釉薬を検討した。その結果、坯土はロクロ成形が可能であり、かつ吸水率が5%未満となる益子水ひ土に対して釜戸長石6%、ドロマイト8%を配合した組成を選定した。この坯土に適合する釉薬として、まず並白釉を検討したところ、伝統釉（大谷津砂60%、鼠石灰20%、天草陶石20%）を基に炭酸ストロンチウム及び焼タルクを添加する配合により、貫入が少なく色調も良好となる可能性が示唆された。飴釉は、本研究で検討した並白釉に二酸化マンガン6%を添加した配合が釉薬の色調が良好であった。

Key words: 坯土、釉薬、低温焼成、ロクロ成形、ドロマイト

1 はじめに

陶磁器製造の焼成工程はガスや電気など多量のエネルギーを必要とし、本焼成時には最も二酸化炭素を排出する。また、近年はガス・電気料金の高騰により県内窯業事業者から焼成コスト低減のニーズがある。

国内の他産地では、焼成温度の低温化による脱炭素化の取り組みや、低温焼成に対応した釉薬・坯土を用いた商品の開発^{1)~4)}が進み、製陶業界全体でカーボンニュートラルへの動きが活発化している。しかし、県内産地においては低温焼成に対応した坯土や釉薬が未だ実用化されておらず、具体的な取り組みは十分に進んでいないのが現状である。

県内製陶事業者の大半を占める益子焼産地では、成形方法はロクロ成形が主流であり、伝統的な坯土や釉薬を使用した場合の本焼成温度は1250～1280℃が一般的である。一方、土鍋などの耐熱陶器は1200℃程度で焼成されるため、ロクロ成形が可能で、かつ1200℃で焼成できる坯土と釉薬が開発できれば、従来の陶器と耐熱陶器を同一条件で焼成できる可能性がある。これにより、県内産地における商品の多様化と焼成コストの低減が期待される。

そこで、本研究では、前年度の結果⁵⁾を踏まえ、安価に入手可能なカリ・ソーダ長石である釜戸長石と前年度の研究で最も吸水率低下に寄与したドロマイトの2種を混合し、ロクロ成形性を有し、1200℃焼成に対応した坯土の開発を試みた。さらに、この坯土に適合する釉薬の配合についても検討を行った。

2 研究の方法

2.1 原料

原料には、益子焼協同組合で販売されている益子水ひ土を乾燥後、乳鉢で粉碎した益子水ひ土粉末を用いた。融剤には、市販の釜戸長石及びドロマイト($\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$)を前処理せず使用した。

釉薬原料には、ネフェリンサイアナイト、鼠石灰、天草陶石、炭酸ストロンチウム(SrCO_3)、焼タルク、二酸化マンガン(MnO_2)は市販の粉末原料を前処理せず用いた。大谷津砂は、市販の原料をポットミルで4時間摺り、80目のふるいで濾し、乾燥して用いた。

2.2 坯土の配合検討

ロクロ成形性を有し、1200℃で焼成可能な坯土の配合を検討するため、釜戸長石及びドロマイトを表1、表2に示す配合条件で混合し、1200℃で焼成した坯土成形体の吸水率を測定した。吸水率は焼き縮まりの指標とし、1250～1280℃焼成時の益子水ひ土と同程度である5%を基準とした^{6),7)}。さらに坯土の物性評価（全収縮率、曲げ強度）及び成形性評価も行った。

表1 配合条件(益子水ひ土+釜戸長石)

釜戸長石 (%)	0	3	4	5	6	7
益子水ひ土 (%)	100	97	96	95	94	93

表2 配合条件(益子水ひ土+釜戸長石6%+ドロマイト)

ドロマイト (%)	0	5	6	7	8	9
釜戸長石 (%)	6	6	6	6	6	6
益子水ひ土 (%)	94	89	88	87	86	85

* 栃木県産業技術センター 窯業技術支援センター

2. 3 低温焼成用釉薬の検討

L字型テストピース（高さ 40 mm×幅 25 mm×奥行き 20 mm、厚み 5 mm）に下絵の発色を見るために表面に弁柄で 2 本線を入れて、釉薬原料を乳鉢で 5 分摺り施釉し、直立させて 1200℃で焼成した。

2. 4 測定・評価方法

吸水率、坯土の成形性評価、全収縮率、曲げ強度、焼成条件は前報⁵⁾と同様の方法で行った。

釉薬の評価は、焼成した釉薬テストピースの割れ、貫入、剥離等について目視により行った。

3 結果及び考察

3. 1 坯土の配合検討

益子水ひ土に各融剤を配合した坯土の吸水率測定結果を図 1、2 に示す。釜戸長石のみを配合した場合、無添加の益子水ひ土と比較して吸水率は低下したものの、最も低い吸水率は配合率 6% の 7.1% であった。次に釜戸長石の添加率を吸水率低下が確認された 6% で固定し、ドロマイトの配合率を変化させて検討した。その結果、ドロマイトを 8% 及び 9% 添加した配合において、目標値である吸水率 5% 以下となった。

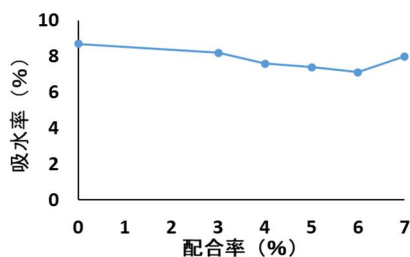


図1 吸水率測定結果(益子水ひ土+釜戸長石)

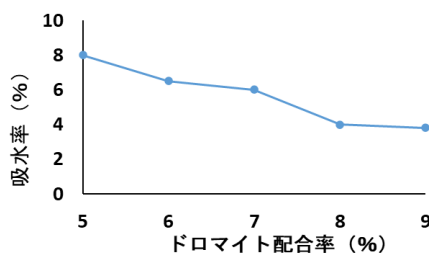


図2 吸水率測定結果(益子水ひ土+釜戸長石 6% +ドロマイト)

次に吸水率 5% 以下を満たし、かつ融剤添加量が最も少ない釜戸長石 6%、ドロマイト 8% を配合した坯土について、物性試験を実施した結果を表 3 に示す。

表 3 物性試験結果

試料	全収縮率 (%)	吸水率 (%)	曲げ強度 (MPa)
試作坯土(1200℃)	10.4	4.0	21.8
益子水ひ土(1250℃)	11.7	6.5	22.1
益子水ひ土(1280℃)	12.2	5.5	22.8

この坯土は従来の益子水ひ土（焼成温度 1250℃、1280℃）と比較して全収縮率が低く、曲げ強度はほぼ同等であった。また、成形性評価では湯呑の成形が可能であり、ロクロ成形性を有することが確認された。

以上の結果から、釜戸長石 6%、ドロマイト 8% 添加の坯土（以下、試作坯土）を今回の低温焼成用坯土として選定し、その後の試験に供することとした。

3. 2 低温焼成用釉薬の検討

釉薬が素地と適合しない場合、剥離や貫入が発生するため、試作坯土に現行の益子焼伝統釉をそのまま適用することは困難である。そこで、試作坯土に対し、益子焼伝統釉 6 種（並白釉、飴釉、糠白釉、糠青磁釉、柿釉、黒釉）を施釉し、1200℃で焼成試験を行った。伝統釉の配合・原料を表 4 に、テストピースの外観を図 3 に示す。

その結果、糠白釉、糠青磁釉、柿釉、黒釉は十分に熔融せず、原料の残存が確認され、1200℃での低温焼成には適さないことが明らかとなった。一方、並白釉及び飴釉の 2 種は 1200℃で熔融が確認されたものの、いずれも貫入が発生した。

以上の結果を踏まえ、熔融が確認された並白釉及び飴釉について、低火度原料を添加し、既存の伝統釉の外観・色調に近づけるための調合検討を行うこととした。

表 4 益子焼伝統釉の原料

釉薬名	原料
並白釉	大谷津砂、石灰、天草陶石
飴釉	並白釉に二酸化マンガンを添加
糠白釉	長石、天草陶石、モミ灰
糠青磁釉	糠白釉に酸化銅を添加
柿釉	芦沼石
黒釉	柿釉、並白釉、糠白釉の混合



図3 益子焼伝統釉の焼成テストピース
(左から：並白釉、飴釉、糠白釉、糠青磁釉、柿釉、黒釉)

3. 2. 1 試作坯土に適合する並白釉配合の検討

下記に示す配合で、主原料として低温で熔融する長石であるネフェリンサイアナイト、並白釉の原料である大谷津砂の 2 種を用い、副原料として低火度化に寄与が期待できる亜鉛華、炭酸ストロンチウムを添加し、試作坯土に適合する釉薬の検討を行った。

①～③：主原料をネフェリンサイアナイトとし、副原料に炭酸ストロンチウム（①）、亜鉛華（②、③）

を添加

④～⑦：主原料を大谷津砂とし、副原料に亜鉛華(④)、炭酸ストロンチウム添加量を増加(⑤～⑦)

⑧～⑩：主原料を大谷津砂とし、一定量の炭酸ストロンチウムを添加し、鼠石灰添加量を増加

試作並白釉の1200℃焼成試験結果を表5に、焼成テストピースの外観を図4に示す。亜鉛華添加(②～④)ではネフェリンサイアナイト及び大谷津砂の両方で結晶の発生が認められた。炭酸ストロンチウム添加(①、⑤～⑩)では結晶の発生は確認されなかったが、貫入が生じた。

貫入改善を目的として、炭酸ストロンチウム(⑤～⑦)及び鼠石灰(⑧～⑩)の添加量を増加させた配合を検討したが、いずれの配合においても貫入の解消には至らなかった。特に、鼠石灰の添加量を増加させた場合には、釉薬表面にざらつきが生じた。



図4 焼成テストピース(試作並白釉)
(左から：①、③、⑥)

表5 試作釉の焼成試験結果(並白釉、主原料：ネフェリンサイアナイトまたは大谷津砂)

※総合評価：○(良い), △(やや良い), ▲(やや悪い), ×(悪い)

No.	ネフェリンサイアナイト	大谷津砂	鼠石灰	炭酸ストロンチウム	亜鉛華	ゼーゲル式			外観評価 (比較:並白釉(伝統釉))	総合評価
						アルカリ	Al ₂ O ₃	SiO ₂		
①	61.5	-	18.3	20.2	-	0.30KNaO 0.40CaO 0.01MgO 0.30SrO	0.31	1.36	貫入あり 並白釉(伝統釉)より白い	▲
②	67.6	-	20.1	-	12.3	0.30KNaO 0.40CaO 0.01MgO 0.30ZnO	0.31	1.36	焼成テストピース表面に結晶析出	×
③	65.1	-	21.7	-	13.2	0.30KNaO 0.40CaO 0.01MgO 0.30ZnO	0.31	1.36	焼成テストピース表面に結晶析出	×
④	-	64.2	19.1	14.6	2.2	0.24KNaO 0.46CaO 0.06ZnO 0.24SrO	0.27	1.76	焼成テストピース表面に結晶析出	×
⑤	-	68.1	20.2	11.6	-	0.27KNaO 0.52CaO 0.01MgO 0.2SrO	0.30	2.01	貫入あり 並白釉(伝統釉)に似た黄色味	△
⑥	-	65.6	19.5	14.9	-	0.25KNaO 0.49CaO 0.01MgO 0.25SrO	0.28	1.88	貫入あり 並白釉(伝統釉)に似た黄色味	△
⑦	-	59.9	20.4	19.7	-	0.12KNaO 0.41CaO 0.01MgO 0.46SrO	0.17	1.52	貫入あり 並白釉(伝統釉)に似た黄色味	△
⑧	-	66.9	19.9	13.2	-	0.11KNaO 0.52CaO 0.35SrO 0.02BaO	0.20	1.94	貫入あり 並白釉(伝統釉)に似た黄色味	△
⑨	-	65.9	21.0	13.1	-	0.11KNaO 0.54CaO 0.34SrO 0.01BaO	0.21	1.88	貫入、ざらつきあり 並白釉(伝統釉)に似た黄色味	▲
⑩	-	65.0	22.2	12.9	-	0.10KNaO 0.55CaO 0.33SrO 0.02BaO	0.20	1.81	貫入、ざらつきあり 並白釉(伝統釉)に似た黄色味	▲

主原料をネフェリンサイアナイト、大谷津砂とする両方の配合で貫入の発生が見られたため、基本配合を変更し、伝統釉の配合（大谷津砂 60%、鼠石灰 20%、天草陶石 20%）に炭酸ストロンチウムを添加した（⑪～⑬）。試作並白釉の 1200℃焼成試験結果を表 6 に、焼成テストピースの外観を図 5 に示す。



図 5 焼成テストピース（試作並白釉）
（左から：⑪、⑫、⑬）

炭酸ストロンチウム 10%（⑪）及び 15%（⑫）では貫入は残るものの、並白釉（伝統釉）に近い外観・色調となった。一方、20%添加（⑬）では貫入が増大した。

貫入は、素地と釉薬の熱膨張差が大きい場合に生じやすい。マグネシウムを添加した釉薬は熱膨張が小さくなることが知られているため⁸⁾、マグネシウムを含有する焼タルクを添加して貫入が抑制できるかを検討した（⑭～⑱）。

大谷津砂、天草陶石、焼タルクの比率を固定し、鼠石灰の配合を変えた配合を検討したところ、⑮、⑯の配合でこれまでの配合と比べて貫入が減り、良好な色調となった。

表 6 試作釉の焼成試験結果（並白釉、主原料：大谷津砂、鼠石灰、天草陶石）
※総合評価：○（良い）、△（やや良い）、▲（やや悪い）、×（悪い）

No.	大谷津砂	鼠石灰	天草陶石	炭酸ストロンチウム (外割)	焼タルク (外割)	ゼーゲル式			外観評価 (比較：並白釉（伝統釉）)	総合評価
						アルカリ	Al ₂ O ₃	SiO ₂		
⑪	60	20	20	10	—	0.13KNaO 0.57CaO 0.30SrO	0.30	2.65	貫入あり 並白釉（伝統釉）に似た黄色味	△
⑫	60	20	20	15	—	0.10KNaO 0.50CaO 0.39SrO	0.26	2.27	貫入あり 並白釉（伝統釉）に似た黄色味	△
⑬	60	20	20	20	—	0.10KNaO 0.43CaO 0.46SrO	0.22	1.99	貫入が増えている 並白釉（伝統釉）に似た黄色味	▲
⑭	60	20	20	5	5	0.15KNaO 0.57CaO 0.13MgO 0.15SrO	0.29	2.72	細かい貫入あり 並白釉（伝統釉）に似た黄色味 溶けすぎ	△
⑮	60	20	20	6	5	0.15KNaO 0.55CaO 0.13MgO 0.17SrO	0.28	2.64	細かい貫入あり 並白釉（伝統釉）に似た黄色味 溶け具合良好	○
⑯	60	15	20	5	5	0.18KNaO 0.50CaO 0.15MgO 0.17SrO	0.34	3.13	細かい貫入あり 並白釉（伝統釉）に似た黄色味 溶け具合良好	○
⑰	60	10	20	5	5	0.21KNaO 0.42CaO 0.17MgO 0.20SrO	0.40	3.68	貫入あり 並白釉（伝統釉）に似た黄色味 やや溶けている	△
⑱	60	5	20	5	5	0.25KNaO 0.29CaO 0.21MgO 0.24SrO	0.48	4.47	貫入あり 並白釉（伝統釉）に似た黄色味 溶けが悪い	△
伝統釉	60	20	20	—	—	0.21KNaO 0.77CaO 0.02MgO	0.40	3.52	薄黄透明	×

焼タルク添加で貫入の減少が確認されたため、大谷津砂、天草陶石、焼タルクの比率を固定し、⑮と⑯の配合を参考にアルカリ源である鼠石灰を 15～20%添加、炭酸ストロンチウムを 4～6%添加と変化させて、さらに貫入の少ない配合を検討した。

この検討の中で並白釉に近い色調で溶け具合が良好だった配合 (⑮) の焼成結果を表 7、焼成テストピースの外観を図 6 に示す。



図 6 焼成テストピース (試作並白釉薬: ⑮)

細かい貫入が残っているが、釉薬はよく溶け、色調は黄色透明と並白釉 (伝統釉) とほぼ同じ色調で下絵の弁柄の 2 本線も良好に発色していた。

これらの結果から 1200℃焼成に適した並白釉の配合について、鼠石灰の配合が 18～19%、ゼーゲル式では Al_2O_3 が 0.3 付近、 SiO_2 が 2.8 付近で最も良好となった。焼タルクの添加が貫入を減らす効果があることが確認できたが、貫入のない釉薬の調合にはさらなる検討が必要である。

3. 2. 2 試作坯土に対応した飴釉配合の検討

飴釉は並白釉に二酸化マンガンを加えて調合する釉薬である。本研究で改良した並白釉の配合 (⑮) を基にし、二酸化マンガン を 3%、6%、9% 添加し、飴釉の配合を検討した (⑳～㉔)。

試作飴釉の 1200℃焼成試験結果を表 8、焼成テストピースの外観を図 7 に示す。



図 7 焼成テストピース (試作飴釉)

(左から: 二酸化マンガン 3%、6%、9% 添加)

いずれの試験体も細かい貫入が入っていたものの、二酸化マンガン 6% 添加が最も飴釉 (伝統釉) に近い色調であり、1200℃焼成の飴釉は本研究で改良した並白釉の配合 (⑮) に二酸化マンガン 6% 添加したものが適していると考えられた。

以上の結果から、試作坯土に適合した 1200℃における低温焼成用釉薬について、試作並白釉では伝統釉の基本配合 (大谷津砂 60%、鼠石灰 20%、天草陶石 20%) に炭酸ストロンチウム及び焼タルクを添加することで、貫入が少なく、並白釉 (伝統釉) に似た色調となり、最も優れていた。

表 7 試作釉の焼成試験結果 (並白釉、最終配合検討)

※総合評価: ○ (良い), △ (やや良い), ▲ (やや悪い), × (悪い)

No.	大谷津砂	鼠石灰	天草陶石	炭酸ストロンチウム (外割)	焼タルク (外割)	ゼーゲル式			外観評価 (比較: 並白釉 (伝統釉))	総合評価
						アルカリ	Al_2O_3	SiO_2		
⑮	60	18	20	5	5	0.16KNaO 0.54CaO 0.14MgO 0.16SrO	0.31	2.87	細かい貫入あり よく溶けている 並白釉 (伝統釉) に似た黄色味 弁柄の 2 本線が良好に発色	○

表 8 試作釉の焼成試験結果 (飴釉)

※総合評価: ○ (良い), △ (やや良い), ▲ (やや悪い), × (悪い)

No.	大谷津砂	鼠石灰	天草陶石	炭酸ストロンチウム (外割)	焼タルク (外割)	二酸化マンガン (外割)	ゼーゲル式			外観評価 (比較: 飴釉 (伝統釉))	総合評価
							アルカリ	Al_2O_3	SiO_2		
⑳	60	18	20	5	5	3	0.16KNaO 0.54CaO 0.14MgO 0.16SrO	0.31	2.87	細かい貫入あり 色が薄い	△
㉑	60	18	20	5	5	6	0.16KNaO 0.54CaO 0.14MgO 0.16SrO	0.31	2.87	細かい貫入あり 色は飴釉 (伝統釉) に最も近い	○
㉒	60	18	20	5	5	9	0.16KNaO 0.54CaO 0.14MgO 0.16SrO	0.31	2.87	細かい貫入あり 色が濃い	△

また、試作飴釉では本研究で改良した 1200℃焼成に適合する並白釉に二酸化マンガンを 6%添加することで飴釉（伝統釉）に似た色調となり、最も優れていた。

1200℃焼成での貫入のない実用的な並白釉及び飴釉の実現には、今回の結果を基に更なる天草陶石、炭酸ストロンチウム、焼タルクの配合割合の更なる検討が必要である。

4 おわりに

低温焼成可能な坯土及び釉薬の開発のため、1200℃焼成可能な坯土及び適合する釉薬について検討した。その結果、以下のことが明らかになった。

- (1) 益子水ひ土にドロマイト 8%、釜戸長石 6%を配合した坯土は、焼成温度 1200℃で吸水率 5%を下回り、従来温度（1250～1280℃）で焼成した益子水ひ土より焼き締まった。この坯土はロクロ成形が可能であり、益子水ひ土と比較して全収縮率が低く、曲げ強度はほぼ同等であった。
- (2) 試作坯土に適合する低温焼成用釉薬については、並白釉は伝統釉の配合（大谷津砂 60%、鼠石灰 20%、天草陶石 20%）を基に炭酸ストロンチウム及び焼タルクの添加により、貫入が少なく色調も良好となる可能性が示唆された。また、飴釉は当該並白釉の配合に二酸化マンガン 6%添加した配合が釉薬の色調が良好であった。両方の釉薬とも細かな貫入が見られ、実用化には更なる検討が必要であった。

参考文献

- 1) 河野ら：“長崎県窯業技術センター研究報告”，55, 18-22, (2007)
- 2) 新島ら：“三重県科学技術振興センター工業研究部 研究報告”，32, 36-41, (2008)
- 3) 吉田ら：“茨城県工業技術センター研究報告”，40, 33-36, (2012)
- 4) 吉田ら：“茨城県工業技術センター研究報告”，41, 37-40 (2013)
- 5) 星ら：“栃木県産業技術センター研究報告”，22, 105-108, (2025)
- 6) 仁平ら：“栃木県産業技術センター研究報告”，6, 121-126, (2009)
- 7) 仁平ら：“栃木県産業技術センター研究報告”，7, 99-102, (2010)
- 8) 磯部ら：“栃木県産業技術センター研究報告”，21, 107-112, (2024)