

鮫肌釉の再現

常世田 茂* 吉田 博和** 鴨志田 武** 浅野 健治***

焼成試験を行った。(表2)

1. はじめに

茨城県の最北に位置する北茨城市では窯業資源を利用した窯が享保12年(1727年)以前から活動していたことが水戸藩の記録に記されており、中でも「鮫肌」状の釉薬が特徴のひとつとしてあげられている。

平成23年に北茨城市で活動する窯元7社***でつくる「五浦天心焼」が茨城県郷土工芸品の指定を受けた事から、江戸時代に作られていた伝承品や発掘品を研究し、近代初期頃まで使用された鮫肌釉の技法再現の要望があり、再現試験を行った。

2. 目的

釉薬とは陶磁器表面をガラス質で平滑に覆うコーティング技術でヒビや縮れは欠陥と見なされるが、釉薬の縮れを装飾としたものに京都府の粟田焼、鹿児島県の薩摩焼、井戸茶碗の「梅花皮(かいらぎ)釉」などが知られている。

本研究では釉薬が縮れるという一般には欠陥とされる状態を作り出し、図1に示す「鮫肌釉」を再現すると共に、各窯元で独自にアレンジ出来る様、白色(又は無色)の基礎釉開発に向けた試験を行ったのでその報告をする。



図1 鮫肌釉の表面(釉薬の縮れ)

3. 研究内容

鮫肌釉薬の再現

釉薬原料として使用したとされる窯跡近くで採取した土石をベースに、合成土灰と合成わら灰を加える三角座標による配合試験を行った。図2の座標8, 9, 13, 14で鮫肌釉に近い釉調を得ることが出来た。

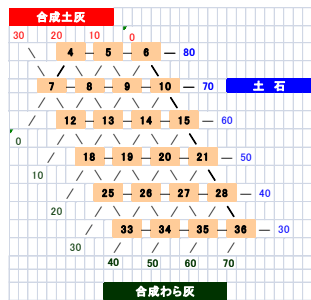


図2 三角座標による配合(wt%)

良好だった座標8と9の中間点の配合A(表2のA)について、釉薬の白色化を目的に表1に示す土石成分の分析からゼーゲル式を使い、土石を鉄分の少ない長石を用いた配合B(表2のB)に置換した配合による

表1 土石と長石の化学組成(wt%)

	Ig.loss	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅
土石	6.44	59.00	19.46	6.24	1.09	1.07	3.49	0.97	2.02	0.10
長石	0.13	66.74	18.80	0.02	0.01	0.01	0.01	2.88	11.35	0.06

表2 鮫肌釉のゼーゲル式による配合(%)

ゼーゲル式		配合A		配合B	
0.14	KNaO	土石	70	長石	3.7
0.47	CaO	合成土灰	15	合成土灰	14.7
0.39	MgO	合成わら灰	15	マグネサイト	4.6
0.61	Al ₂ O ₃			蛙目粘土	33.4
3.9	SiO ₂			合成わら灰	44.6

長石を使用した配合では、釉薬は白色となったが縮れの見られない平滑な釉調となった。

このことから釉薬が縮れる鮫肌釉の開発には、一般的に釉薬開発で用いるゼーゲル式を使った原料置換による方法では、目的とする白色の鮫肌調の釉薬は得にくい事がわかった。

そこで釉薬が縮れる要因をと考えられる下記5項目を検討することで釉薬縮れ技術の確立を目指した。

- 要因1) 釉薬の乾燥収縮(収縮の大きい原料を調べる)
- 要因2) 釉薬の焼成収縮(収縮の大きい原料を調べる)
- 要因3) 釉薬の微粉碎化(釉薬の収縮を大きくする)
- 要因4) 素地との密着性(施釉を厚くして収縮させる)
- 要因5) 釉薬表面状態(素地と釉薬の密着性を悪くする)

3.1 釉薬の乾燥収縮の検証(要因1)

乾燥収縮が変わることにより縮れにどのような変化があるのか、表2配合Bの釉薬を使い検証を行った。

配合Bの中で乾燥収縮による縮れ要因と考えられる蛙目粘土を①仮焼蛙目粘土、②蛙目粘土、③ベントナイトとして3種類で比較した。(図3)

仮焼蛙目粘土と蛙目粘土配合では釉薬が縮れないのに対し、ベントナイト配合では乾燥段階で釉薬に縮れが発生し、焼成後も鮫肌状に縮れた状態となった。

また表2Aの土石配合に原料①②③を外割で10~20%添加した。ベントナイトでは良好な鮫肌状になるのに対し(図3中央)、原料①②では縮れ効果が小さかった。

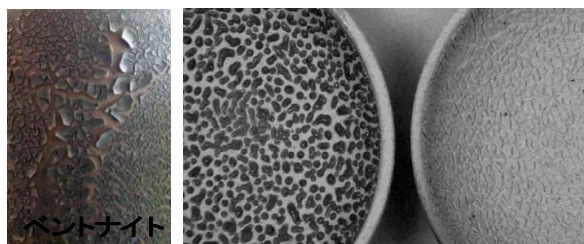


図3 乾燥段階のベントナイト(左)

ベントナイトと蛙目粘土の焼成比較 (右)

3.2 釉薬の焼成収縮の検証 (要因2)

3.1 の検証で有望な原料のベントナイトの嵩比重が小さい事に注目し、嵩比重が小さい原料は焼成によって縮れ要因になるのではないかと予想し、嵩比重(粉体)による検証を行った。

検証では釉薬原料等20種類について乾燥段階と焼成後の嵩比重を検証した結果、実際に焼成で縮れる原料ほど比重が小さい傾向が出た。(図4)

特にベントナイト、ゼオライト、天然わら灰は縮れる釉薬を得るのに有効な原料という結果を得ることが出来、嵩比重は釉薬の縮れを予測するのに有効だと分かった。

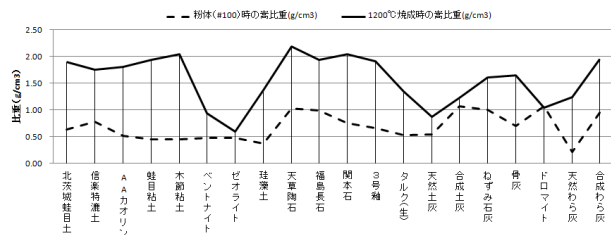


図4 窯業原料の嵩比重の比較

窯業原料は一般に高温で焼成する過程で、含有成分の一部が焼失することから、原料の灼熱減量によって実際の焼成収縮がある程度予測できるのではないかと考え焼成収縮と灼熱減量の関係を検証した。(図5)

粘土・土石類では焼成収縮率と灼熱減量は類似の傾向が見られたが、図5の媒熔材では余り関係性が見られなかった。このことから原料の灼熱減量では釉薬の縮れは予測出来ないと考えられる。

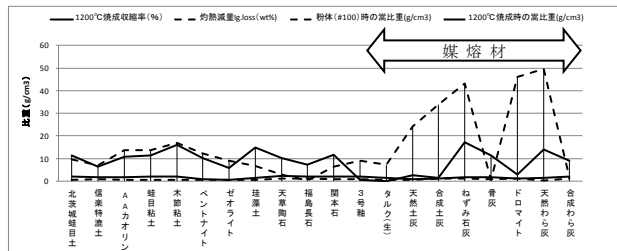


図5 焼成収縮と灼熱減量の比較

3.3 原料の検証

3.2 の結果からゼオライト→ベントナイト→天然わら灰を用いると釉薬が縮れることがわかったが、成分の不安定な天然原料に対して、一般的に使用される代替原料や合成原料が縮れない事に疑問が残った。

そこで天然/合成ゼオライト、ベントナイト/蛙目粘土、天然/合成灰について走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いた観察を行った。天然原料と合成原料では微細な形状・形態的な差が見受けられ、このことが縮れに影響を与えていると考えられる。(図5~7)

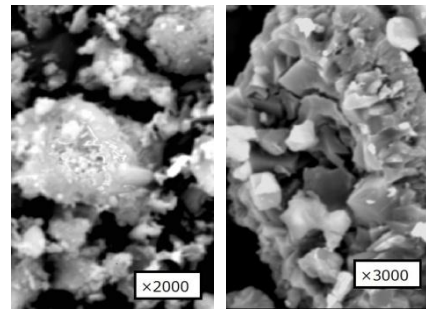


図5 天然ゼオライト (左) と合成ゼオライト (右)

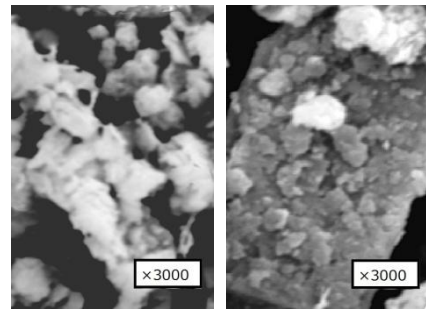


図6 ベントナイトと蛙目粘土

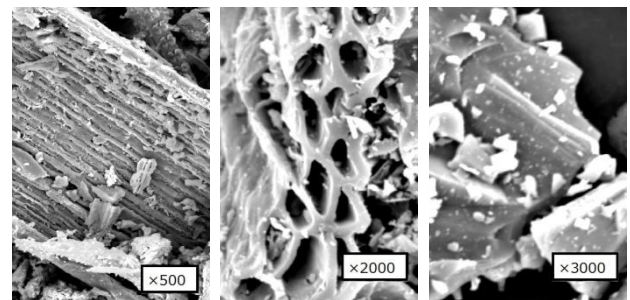


図7 天然わら灰 (左) もみ灰 (右) 合成わら灰 (下)

3.4 釉の粉砕時間の検証 (要因3)

乳鉢を使い磨砕時間を長くする事で原料の微粉碎化が進み、空気や水分を多く含む釉薬となる事で縮れを促進できるか検証を行った。(図8)

検証では釉薬の磨砕時間を1時間と4時間で比較試験を行い、磨砕時間が4時間のものでは1時間と比べ縮れが大きくなる反面、素地から剥離が見られた。

また釉薬の粒度測定を行い、磨砕時間が長くなると大きな粒径が減少することが確認できた。(図9)

このことから微粉碎化により大きな粒子が減り、縮れが進むものと推測された。



図8 1時間 (左) と4時間 (右) の焼成比較

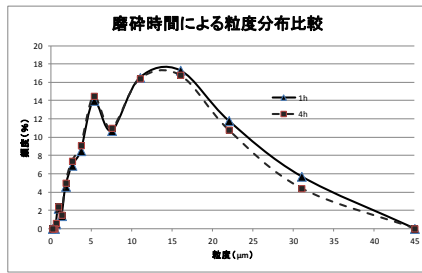


図9 磨砕時間による粒度分布の比較

3.5 釉薬厚さの検証(要因4)

釉薬によっては厚く施釉すると、焼成後に縮れが起きる事が知られている。

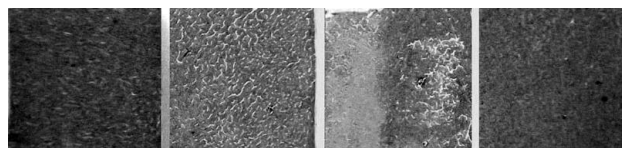
そこで厚めに施釉することで生じる釉薬の縮れについて、表2の配合Bの釉薬に厚く施釉する為に用いられ剥離防止にも有効なCMC(カルボキシメチルセルロース, セロゲン化学糊)を添加して実験を行った。CMC添加なし, CMC 2%添加, CMC 5%添加の3種類を、釉薬を通常の2mm厚の2倍程度の厚さで施釉し釉薬の縮れを検証した。

- 1) CMC添加なしは、釉薬に厚みを持たせることが難しく縮れは見られなかった。
- 2) 2%添加では施釉は容易であったが、焼成後わずかに縮れがあり効果が確認された。
- 3) 5%添加ではCMCの影響で釉薬中の含水率が多くなり施釉の厚みの感覚が分かりにくい。
- 4) 5%添加では施釉後、釉薬の乾燥に時間を要する。
- 5) 5%添加を焼成した結果、釉の濃い部分で焼成後、剥離が確認された。

3.6 素地表面状態の検討(要因5)

釉薬を施釉する際、素地表面が平滑ではない、手脂や埃の付着等により、釉薬が縮れる事がある。

そこで素焼き素地の表面処理を行い、表2の配合Bを施釉し焼成後の縮れ変化を試験した。(図10)



なし サンドブラスト 皮脂(ラノリン) 埃

図10 表面処理による釉薬縮れ

素焼きテストピースの素地表面を、サンドブラストによる粗面化、皮脂(ラノリン)の付着、埃(蛙目粘土微粉)を噴霧による付着、の3パターンを行い、未処理品と比較した結果を下記に示した。

- 1) サンドブラストを使った表面の粗面化処理では縮れが大きくなった。
- 2) 皮脂処理は釉の掛かりや縮れが不均一になる。
- 3) 埃の噴霧処理では縮れに変化は無かった。

この結果から素地表面の粗面化は縮れに有効であることが分かった。

3.7 白色鮫肌釉の検討(主原料)

要因1~5の検証の結果から嵩比重の小さい原料(ゼオライト-ベントナイト-天然灰)の組合せに加え、必要に応じて原料の粉碎や施釉厚の調整、素地表面の加工が妥当ではないかと結論づけた。

3.1, 3.2の検証から得られたゼオライト-ベントナイト-天然灰の3成分を用いた三角座標による試験を行ったところ、ゼオライトリッチの領域で鮫肌釉を得ることが出来た。

ゼオライト-ベントナイト-天然灰で得られた釉薬は鉄分などの酸化金属由来の茶-黒系の釉調であったので、原料の分析を行った。(表3)

表3 ゼオライトの分析値(wt%)

試料名	Ig.loss	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	MnO	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅
ゼオライト(福島)	8.69	68.19	14.42	2.13	0.17	0.02	2.90	0.31	1.84	1.27	-
ゼオライト(秋田)	6.55	70.20	15.16	0.95	0.14	0.05	0.89	0.47	3.12	2.37	-
ゼオライト(宮城)	7.27	70.13	14.96	1.02	0.17	0.03	2.49	0.45	2.60	0.85	-
合成ゼオライト①	11.50	38.96	31.79	0.61	0.10	-	1.17	3.05	0.18	12.14	0.36
合成ゼオライト②	7.31	81.38	10.97	0.04	-	-	-	-	0.02	0.29	-

主原料であるゼオライトについて、これまで使用してきた福島県産の天然ゼオライトの他に、秋田県産、宮城県産を比較した結果、宮城県産ゼオライトの方がより白く、縮れの入り方も細かい事が分かった。

しかし釉調はやや黄色味がかった呈色を示しており、原因となるFe₂O₃-TiO₂-MnOをほとんど有しない原料として合成ゼオライトを用いた試験を行った。

①は洗剤用ゼオライト(和光純薬製)、②は先に使用した天然ゼオライトと同様のモルデナイト型ゼオライト(東ソー製)を使用した。

結果は①②共に1200~1250℃焼成では熔け不足の上、鮫肌状にはならないことが分かり合成ゼオライトでは目的の白色鮫肌釉が得られない事が分かった。

3.8 白色鮫肌釉の検討(副原料)

主原料のゼオライトに対して、副原料として配合しているベントナイトと天然わら灰についてFe₂O₃-TiO₂-MnOの少ない原料への置換の検討を行った。成分分析結果は下記の通り。(表4)、(表5)

表4 ベントナイトの分析値(wt%)

試料名	Ig.loss	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	MnO	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅
ベントナイト	6.49	65.22	17.64	1.99	0.18	0.05	2.06	2.44	0.94	2.63	0.08
ベンゲルフライト	7.36	66.21	18.62	1.13	0.14	0.02	1.93	4.41	0.06	0.10	-
ベンゲルFW	6.17	61.43	21.61	2.12	0.11	0.02	0.68	5.24	0.45	2.08	-
ベンゲルF	6.05	61.86	23.44	2.62	0.13	-	0.97	3.08	0.27	1.46	0.03
ベンゲルA	6.51	59.23	24.91	2.88	0.11	-	0.93	3.25	0.18	1.90	-
蛙目粘土	13.77	48.38	33.32	1.46	0.75	-	0.15	0.33	1.12	0.09	0.03

表5 シリカ原料の分析値(wt%)

試料名	Ig.loss	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	MnO	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅
天然わら灰	33.05	54.44	0.52	1.16	-	0.36	1.67	1.10	5.92	0.64	0.92
天然もみ灰	66.35	29.33	0.10	0.19	-	0.07	0.96	0.39	1.41	0.33	0.78
合成わら灰	1.57	81.00	6.47	0.10	0.03	-	2.92	1.01	3.16	1.15	2.70

副原料として配合するベントナイトについて、 $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2\text{-MnO}$ の含有が少ない精製ベントナイト（ベンゲル：(株)ホーゲン製）を使用した配合試験を行った結果、若干の呈色の改善が見られた。

同様に副原料として配合するシリカ原料の天然わら灰を鉄分の少ない天然もみ灰への置換試験を行った。その結果、若干の呈色の改善が見られたが、同時に釉薬の若干の剥離が発生することが分かった。（図11）

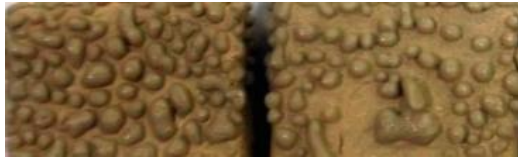


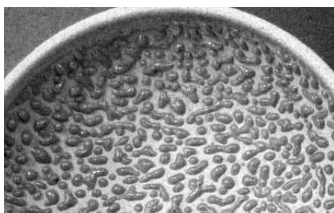
図11 天然わら灰(左) ーもみ灰(右)の比較

4. 結果とまとめ

- ① 釉薬の乾燥収縮を大きくするベントナイトを配合すると鮫肌状になった。
- ② 釉薬の収縮の大きい原料を探す際、高比重は参考になるが、灼熱減量は参考にならない。
- ③ 微粉碎化によって釉薬の収縮は大きくなるが、剥離に注意が必要。
- ④ 施釉の厚みは釉薬の収縮に効果がある。CMCの添加量は2%以下が望ましい。
- ⑤ 素地の粗面化は釉薬の収縮に効果がある。
- ⑥ 釉薬の白色化に着色元素($\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2\text{-MnO}$)の少ない原料の使用は有効だが、合成原料は収縮しないので使用不可。

5. 今後の課題

- 1) ゼオライトーベントナイトー天然わら灰の配合で鮫肌釉が得られることが分かった。（図12）課題として配合中のベントナイトが過多により、釉薬の沈殿が遅くなり、濃度調整が難しいため、ベントナイトの添加量は検証が必要。また、他にも火山灰を精製した中空構造を持つシラスバルーンと呼ばれる高比重の小さい原料を用い、鮫肌釉に似た性状の蛇蝟(じゃかつ)釉を作ることから原料の入手が出来れば検証したい。
- 2) 上記配合原料を粉碎時間による効果検証について課題が残った。
- 3) 上記配合でも乾燥時に剥離が見られるので、CMCの添加での効果検証の課題が残った。
- 4) 素地表面の粗面処理の荒さ程度について数値的な効果で検証する課題が残った。
- 5) 原料に精製ベントナイトを用いることは、釉薬の白色化に有効。



天然ゼオライト	70
ベントナイト	15
天然わら灰	15
KNaO	0.39
CaO	0.32
MgO	0.29
Al ₂ O ₃	1.1
SiO ₂	9.8

図12 開発した鮫肌釉(左)、配合(%)とゼーゲル式

目標とする白色(無色)鮫肌釉は実現していないが、鮫肌釉を得るために必要なファクターを明らかにすることができ、商品化に結びついた。（図13）しかし開発した釉薬は若干の薄黄色味を帯びており、白色(無色)化の為の試験を継続すると共に、まとめと考察であげた課題をクリアすることで、縮み方をより細かく制御する技法を確立したい。



図13 鮫肌釉を使った商品例

7. 謝辞

本研究の実施にあたり、江戸時代の文献や資料提供などご助力を頂きました茨城キリスト教大学非常勤講師の瓦吹堅様に感謝いたします。

8. 参考文献

- 1) 北茨城史壇6 北茨城市の陶器窯跡と窯道具について 瓦吹 堅 (1986年)
- 2) 図解 工藝用陶磁器 伝統から科学へ 素木洋一 (1970年)