

磁器の焼成と気孔

不二門義仁

1. まえがき

一般に陶磁器の気孔には、外部と全く連絡のない閉気孔、外部と連絡している開気孔とがある。植木鉢、赤レンガなどの土器はすべてが開気孔を有している。織部、志野茶碗などの陶器の素地は大部分が開気孔でわずかの閉気孔を持っている。朱泥急須などの炆器や飯茶碗などの磁器は微細な閉気孔しか有していない。これらの気孔は原料、成形、焼成などによって大きな違いがあると言われている。そこで磁器の中でも特になじみの深い飯茶碗などを対象として、気孔について試験したので報告する。

2. 実験方法

2-1 試料

飯茶碗は業界で焼成されている茶碗の素焼にスクリン転写、だみづけして施釉したもの（通称唐子茶碗）を使用した。

またこれに使用されている磁器坯土を真空土練機で直径7cm、長さ6cmの円柱に成形した。使用坯土の主要成分はX線回折によると石英、カオリン鉱物、長石である。

2-2 焼成方法

20KWの炭化珪素発熱体による電気炉で、飯茶碗を匣鉢に入れ、所定温度に達した後に1時間保持して自然放冷した（表1）。磁器は通常還元焼成を行うものであるが、焼成温度との関連を追求するための試験だからあえて酸化（酸素21%）焼成で行った。

更に飯茶碗と円柱の試験体を0.1m³ベンチュリータイプガス炉（自然燃焼方式）で還元雰囲気中のCO濃度3, 5, 7%の3水準、還元開始温度900, 1000, 1100℃の3水準とし、他に中性雰囲気O₂ = 0%, CO = 0%, 弱酸化雰囲気O₂ = 2~3%, 電気炉による酸化雰囲気O₂ = 21%で焼成⁽¹⁾

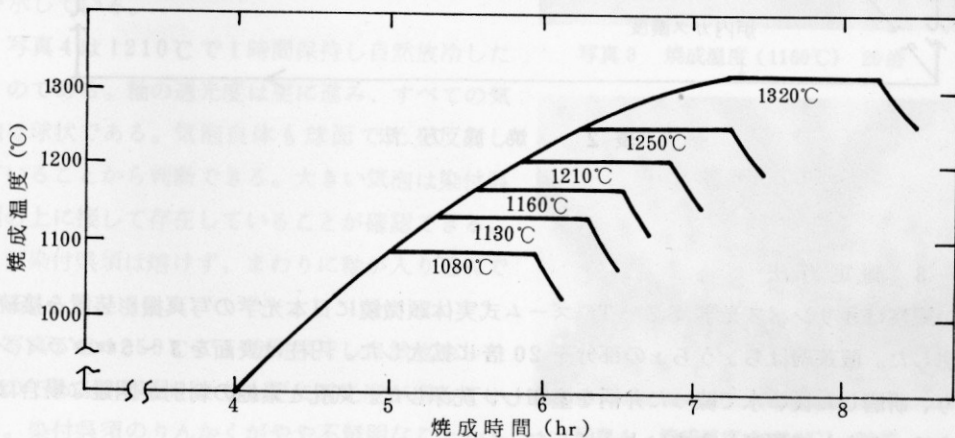


表1 磁器の焼成方法（電気炉）

した(表2)。これらの最高温度はいずれも1320℃である。

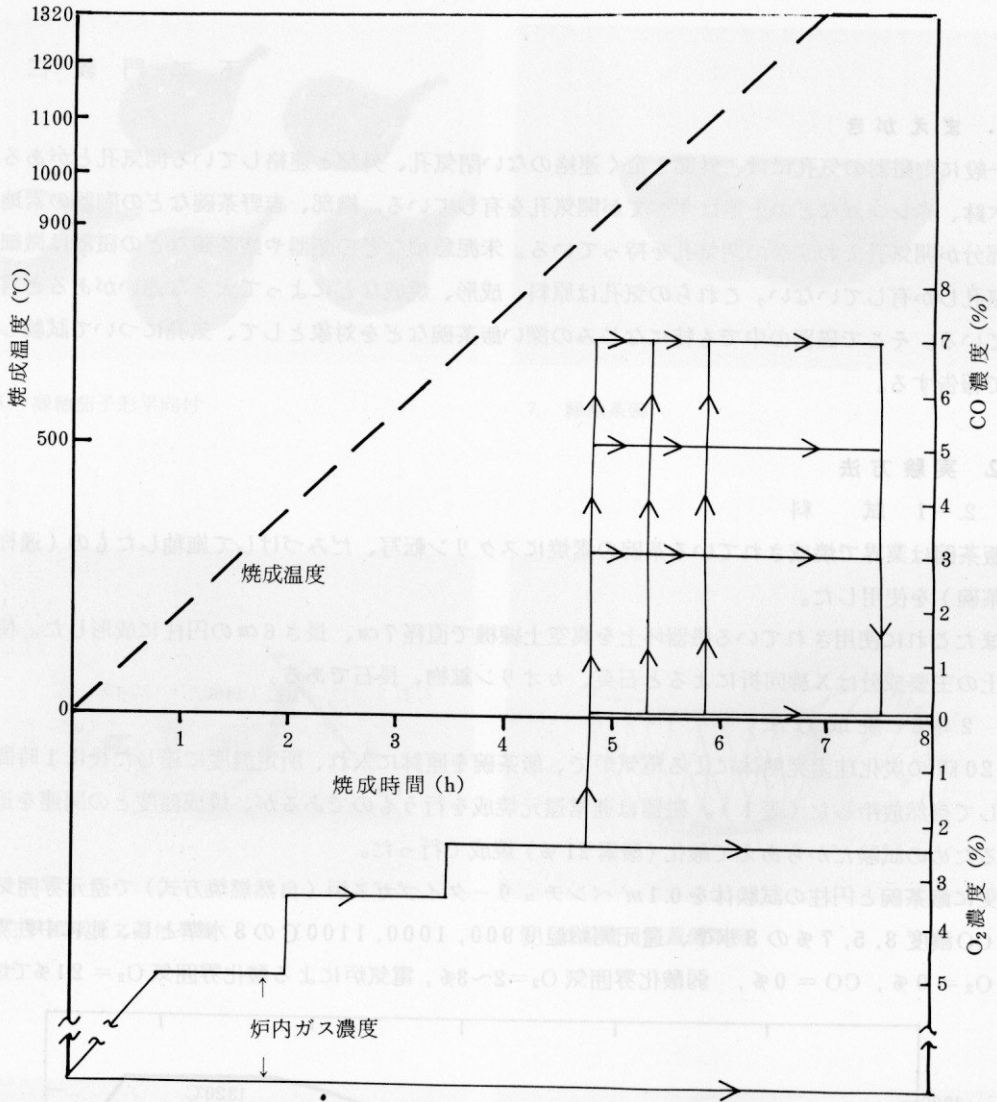


表2 焼成方法

2-3 測定方法

気孔の観察はオリンパス光学 SZ-Trズーム式実体顕微鏡に日本光学の写真撮影装置を接続して、撮影した。飯茶碗はちょうちょの部分で20倍に拡大した。円柱は表面を3~5mmグラインダーで削り、研磨した後、水で練った弁柄を塗布し、洗浄した。気孔と素地の判別が困難な場合はマジックを塗ったりして観察しやすいようにした。

3. 実験結果と考察

3-1 焼成温度と釉の気孔

写真1は1080℃で1時間保持し、自然放冷したものである。染付呉須が釉葉を通してわずかに観察される。これは釉の焼結が始まっていることを示している。粒子の鋭角部分が丸味を持って、互いに接触し合う程度と思われる。硬度は爪程度で、気孔の形状はまだ複雑でほとんどが開気孔のため吸水性がある。

写真2は1130℃で1時間保持し自然放冷したものである。写真1よりも焼結が進み、粒子間の点接触から面接触へと発達し、わずかながら閉気孔が観察される。気孔の形状はまだ鋭角のものが多く、開気孔と閉気孔が混在している。

写真3は1160℃で1時間保持し自然放冷したものである。釉の透光度もやや増し、大きな気(泡)孔が観察される。釉の表面近くはほとんど溶けて、染付呉須の上部に大きな気泡が発生している。素地上は小さい気泡が多く中間が少ない。これは染付呉須の粒子間に存在していた空気が出口を失なったものと思われる。素地の焼結は見掛上行われていない。また釉が素地や染付呉須よりも早く溶けることをものがたっている。すべての気孔は閉気孔である。これらのことは焼成雰囲気と、素地や釉との相互作用は釉面を除き行われにくいことを示している。

写真4は1210℃で1時間保持し自然放冷したものである。釉の透光度は更に進み、すべての気泡は球状である。気泡自体も球面で光を反射していることから判断できる。大きい気泡は染付呉須の上に接して存在していることが確認できる。まだ染付呉須は熔けず、まわりに釉が入り込んでいる。

写真5は1250℃で1時間保持し自然放冷したものである。写真4よりも更に透光度が増している。染付呉須のりんかくがやや不鮮明なことから

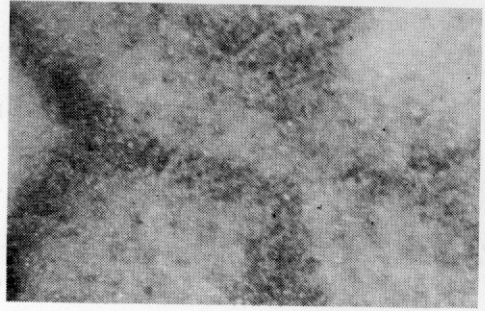


写真1 焼成温度(1080℃) 20倍

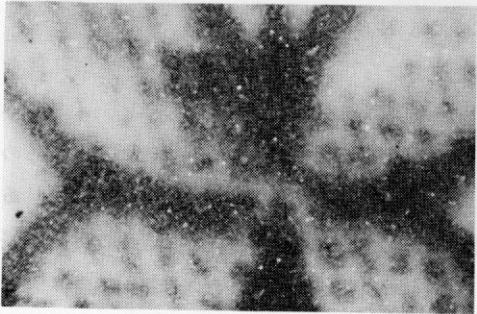


写真2 焼成温度(1130℃) 20倍

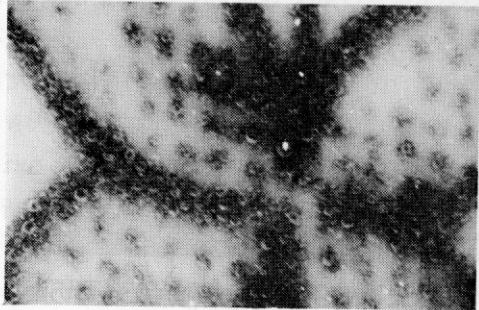


写真3 焼成温度(1160℃) 20倍

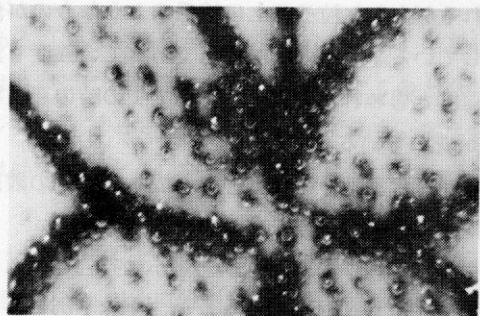


写真4 焼成温度(1210℃) 20倍

釉と染付呉須の共融現象が始まりつつある。気泡も染付呉須からやや浮き上がって観察されることから判断できる。

写真6は1320℃で1時間保持し自然放冷したものである。透光度は染付呉須の色で低下してくる。釉と染付呉須の共融で全体を青くしたためである。気泡は染付呉須や素地から離れ、浮き上がっている。気泡は大きいものが多く、中位のものも少く、小さいものは観察されない。たぶん小さい気泡は大きい気泡に吸収されたりしたものと思われる。

写真1から写真6まで開気孔から閉気孔になる様子が観察されたが、気孔が気泡となって外へ放出されることが観察されなかったのは閉じ込められた気泡は外へまず出ることは困難と思われる。なぜなら釉の粘度は非常に高いことから推察される。

3.1-2 焼成温度と素地の気孔

写真7は長石40、珪石30、カオリン30%の磁器素地(生)の電子顕微鏡写真である。珪石や長石の微粉碎は困難であるため成形体の骨格としてはたらしきの間げきに粘土粒子が存在する。大きな粒子の間げきに大きな気孔が観察される。これらの気孔はすべて連通していることが容易に判断でき、閉気孔は無い。

写真8は素地を800℃で焼成したものの電子顕微鏡写真である。生の状態が継続したように観察されるが大きな粒子の上に綿毛のようなものが付着している。粒子の接触は点であって、強度も素焼程度と思われる。気孔はすべて生の時の連通状態が続いている。

写真9は素地を1200℃で焼成したものの破面を電子顕微鏡で観察したものである。

生素地の粒子のなごりがわずかに残っているけれどもその形状は判別できない。すべての粒子は点から面へと接触を拡大し、更に一体化されたも

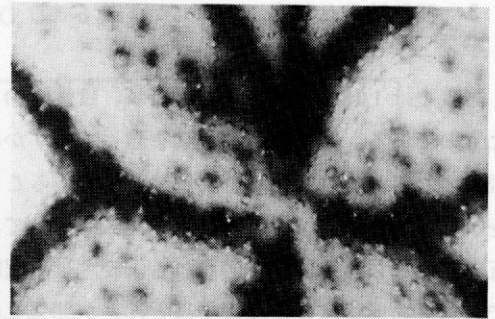


写真5 焼成温度(1250℃) 20倍

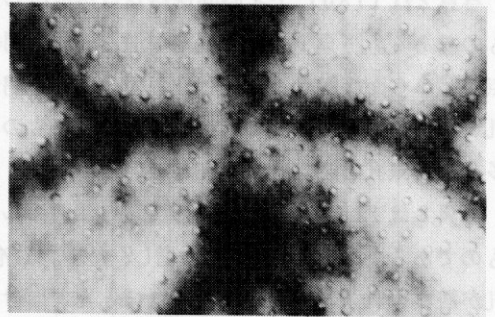


写真6 焼成温度(1320℃) 20倍



写真7 磁器素地(生) 7000倍

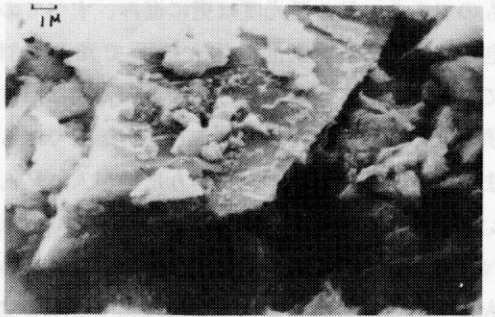


写真8 磁器素地(800℃焼成) 7000倍

のと思われる。面接触と共融の段階で取り残こされた気孔が帯状に存在する。破面は多少の凹凸があるものの貝殻状を呈している。閉気孔と開気孔の混在している状態である。

写真10は素地を1300℃で焼成したものの破面の電子顕微鏡写真である。

すべての素地は一見熔けているように観察される。気孔の形状は球状、棒状、円盤状と複雑であるが、鋭角のない気孔となっている。このことは素地が熔け表面張力等によって丸味をもってくるものと思われる。気孔はすべて閉気孔である。

写真11は1300℃で焼成した破面に珪酸のみを溶かす5%のフッ化水素酸で処理したものの電子顕微鏡写真である。一見ガラス質の磁器でも内部にはガラス分、未焼結の石英、ムライト、クリストバライト、閉気孔等が存在する。しかもこれらが無作意に複雑に絡み合っていることが観察できる。磁器の強さの秘密が内部構造の観察によって明らかにされたよい例である。いわばガラスに金網を入れたり、セメントに鉄筋を入れたり、プラスチックに繊維を入れたりして強化する方法と同じ原理を応用していたのである。

3-3 焼成雰囲気と釉の気孔

気孔と焼成雰囲気の関係は以前から識者間で種々の意見があったが定量的、定性的でしかも系統的な研究結果の報告はわずか⁽²⁾である。そこで表2のように焼成雰囲気を変化させて飯茶碗の焼成を行い、実体顕微鏡によって写真観察を行った。

写真12・13は酸化雰囲気焼成の顕微鏡写真である。大きな気泡が釉の表面近くに多く存在し、写真13には呉須上に大きな気泡が認められ、やはり呉須の粒子間にとじ込められたものと思われる。器体はいくぶん黄色味がかかり「酔い」又は「シミ」と言って焼成不良の典型である。またややふくらんでいる。(これをブクと言う)更に表面は柚の膚のような凹凸が観察される。(これをジワと言う)

写真14は中性雰囲気焼成の顕微鏡写真である。呉須上に大きな気泡が観察されるが写真12・13ほどではない。気泡そのものは小さく呉須上の気泡を除けば均一に分布している。器体の色はほぼ白く、販売品と比較しても大差がない。このことは中性雰囲気焼成でも磁器らしい白色が可能なの



写真9 磁器素地(1200℃焼成) 7000倍

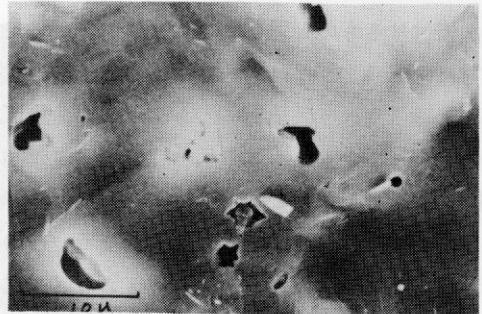


写真10 磁器素地(1300℃焼成) 3500倍

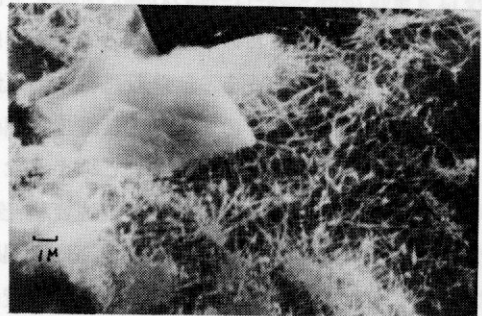


写真11 磁器素地(1300℃焼成物のフッ化水素酸5%処理物) 3500倍

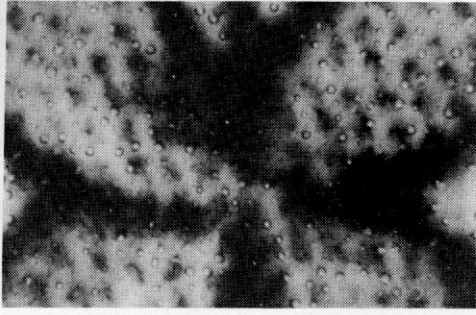


写真12 酸化(O₂=21%)焼成 20倍

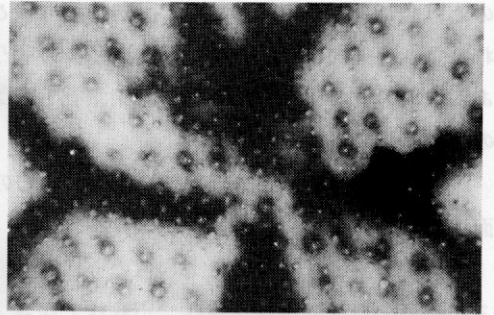


写真13 酸化(O₂=2~3%)焼成 20倍

とを裏付けるものと思われる。

写真15, 16, 17は還元雰囲気焼成の顕微鏡写真である。やはり呉須上に大きな気泡を除けば均一に分布している。器体の色は乳白色で販売品と同等の品位を有している。

磁器焼成において還元雰囲気を何度で、どの位の濃度で行うか、原料や器体の大きさなどで異なるが、飯茶碗では900~950℃で還元雰囲気CO濃度は3%位が最も適当と思われる。もっとも測定場所と他の場所とはおのずと違うので最も濃度の低いところでのことである。一般に釉中の気泡は還元雰囲気焼成したものが小さく、酸化雰囲気焼成したものは大きい傾向がある。このようなことから古陶磁の焼成方法や燃料等の推定資料⁽³⁾として利用されている。還元雰囲気濃度が高いと温度が上らないばかりか、燃料の無駄と時間の浪費、更に炭素の沈着で黄ばみなどの欠点も出やすい。このように磁器は原料もさることながら、適切な

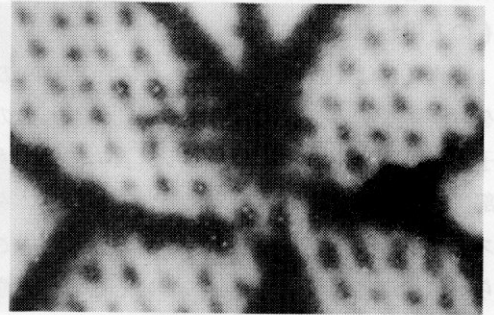


写真14 中性(O₂=0% CO=0%)焼成 20倍

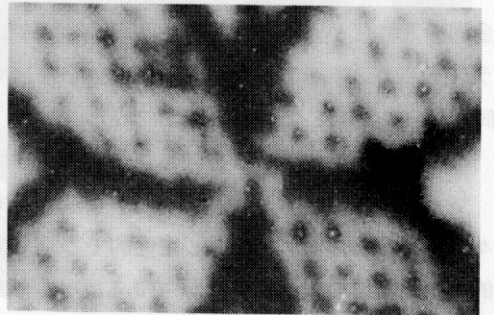


写真15 還元(900℃でCO=3%)焼成 20倍

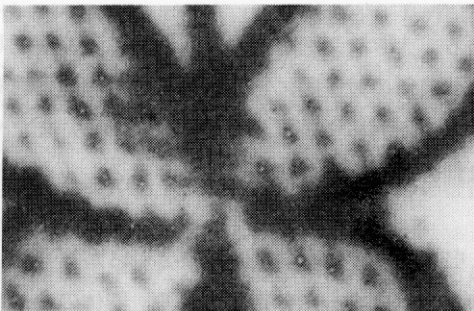


写真16 還元(1000℃でCO=3%)焼成 20倍

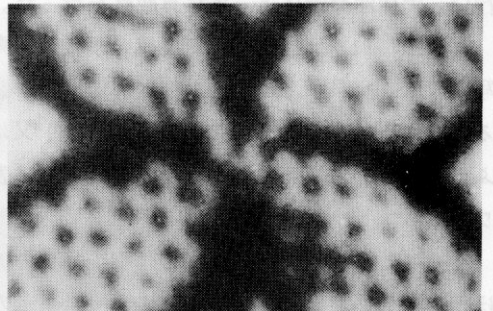


写真17 還元(1100℃でCO=3%)焼成 20倍

焼成スケジュール（還元雰囲気開始温度及びその濃度など）で行わないと良品は得られない。

3-4 焼成雰囲気と素地の気孔変化

焼成品の欠点は面積の2乗、容積の3乗の割合で出現すると思われる。飯茶碗の素地は薄くて気孔の変化などの観察が困難であるため、比較的大きくて肉厚の碍子を想定して直径7cm、厚さ6cmの円柱状の試料を作り表2の方法で焼成した。

写真18, 19は酸化雰囲気焼成の顕微鏡写真である。特に写真18は電気炉のため酸素21%中で焼成するので大きな気孔が多く、複雑な形状をしている。また気孔はやや丸味を持ち鋭角を持たない。外観はやや丸味を持ち、柚の膚のような凹凸があり、自重にやっと耐えたようである。また焼成体自体もやや膨脹したようで、色はやや黄味がかかった白色である。

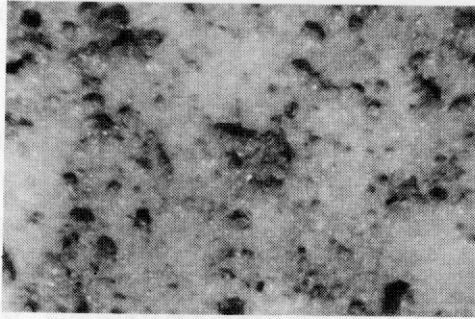


写真18 酸化 ($O_2=21\%$) 焼成 20倍

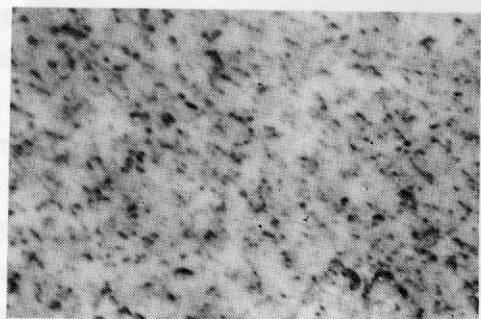


写真19 酸化 ($O_2=2\sim 3\%$) 焼成 20倍

写真20, 21, 22, 23, 24, 25, 26は中性及び還元雰囲気焼成の顕微鏡写真である。いずれも気孔は小さくて少ない、形状は丸味を持っている。外観は成形時のままで相似的に収縮していた、更に乳白色で磁器そのものであった。

酸化雰囲気焼成（俗にあぶりと言う）から還元雰囲気焼成（俗にせめと言う）への切り変えが不適切な場合は写真27のように気孔の多い部分とち密な部分が同居している。これは有機物、炭酸塩、鉄化合物等を十分反応させてから適切な温度と適度な還元雰囲気焼成しないとブク（大きなふくらみの部分）が発生しやすいことを示している。これは外部が早く焼き締り、内部で発生したガスが外部への出口を失ない、破裂したものである。

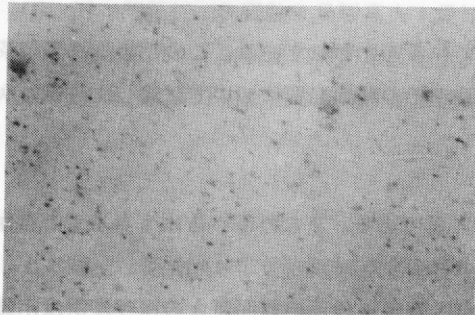


写真20 中性 ($O_2=0\%, CO=0\%$) 焼成 20倍



写真21 還元 (900°Cで $CO=3\%$) 焼成 20倍

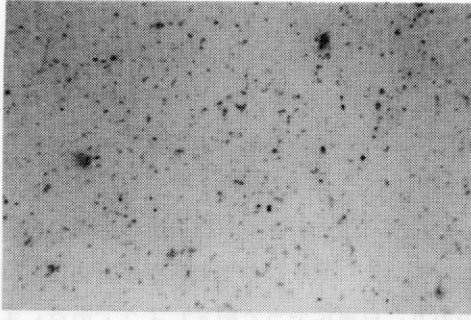


写真 22 還元 (1000°CでCO=3%) 焼成 20倍

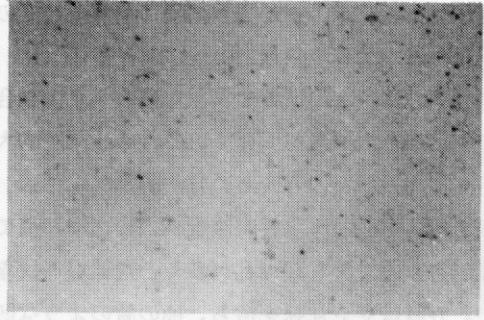


写真 23 還元 (1100°CでCO=3%) 焼成 20倍

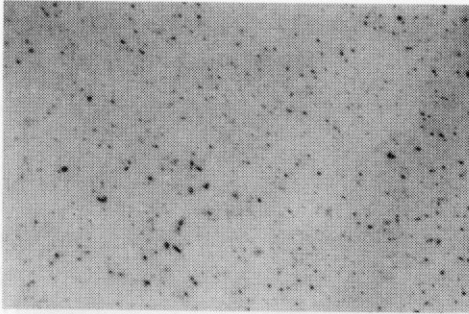


写真 24 還元 (900°CでCO=7%) 焼成 20倍

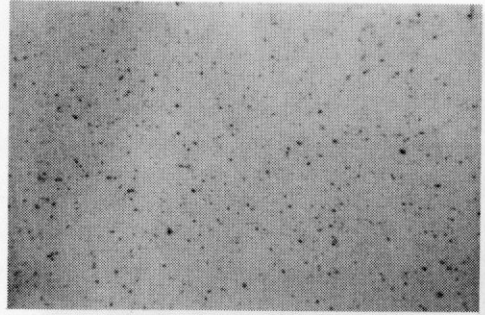


写真 25 還元 (1000°CでCO=7%) 焼成 20倍

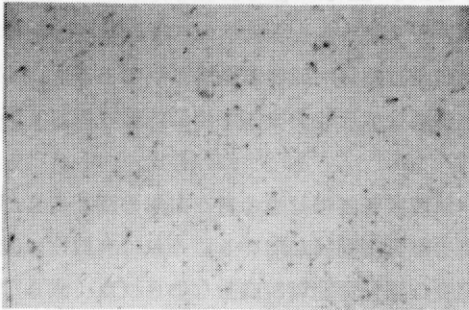


写真 26 還元 (1100°CでCO=7%) 焼成 20倍

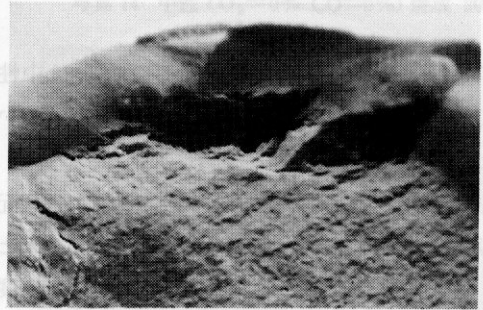


写真 27 焼成不良の例

4. まとめ

磁器の気孔は焼成温度と焼成雰囲気が大きく影響しているといわれている。このため染付呉須茶碗などを対象として種々の焼成温度、焼成雰囲気濃度及びその開始温度について試験した結果、次の事が判明した。

4-1 焼成温度と釉薬の気孔

- (1) 釉薬の気孔は焼結時にとじこめられた空気がほとんどである。また外部へ放出されることは釉薬の粘性、顕微鏡観察からいって困難である。
- (2) 釉薬の明確な熔融点はなく、約 1160°C で開孔はなくなり、外部の雰囲気との相互作用は困難である。

- (3) 呉須上の気孔は顔料の粒子間に存在していた空気が気泡として取り残されたものである。
- (4) 呉須と釉薬の共融は約 1250℃ から始まる。

4-2 焼成温度と素地の気孔

- (1) 800℃ ではすべての気孔は開孔である。
- (2) 1200℃ で気孔は開孔と閉孔が混在していて、破面は貝殻状を呈している。
- (3) 1300℃ で素地は一見磁硝化している。気孔の形状は球状、棒状、円盤状といろいろである。
- (4) フッ化水素酸で処理した内部構造はガラス組織、未焼結の石英、ムライト、クリストバライト、閉気孔などが複雑に絡み合っている。このため磁器の強度が大きいと思われる。

4-3 焼成雰囲気と釉薬中の気孔

- (1) 酸化雰囲気焼成は特に呉須上に大きな気泡が多く存在し、釉面はみかんの肌のように凹凸が多数認められた。中性、還元雰囲気焼成もやはり呉須上に小さな気泡がわずかながら認められるが、釉面はなめらかでミルクホワイトであった。
- (2) 中性雰囲気焼成でも実験的に磁器焼成が可能である。気泡の発生状況からみても一般に 900～950℃ で CO 濃度 3% 位が適切と思われる。
- (3) 還元雰囲気開始温度 1100℃ で焼成すると一部の場所で「酔」が発生した。釉薬の開孔のなくなる温度とほぼ一致する。還元雰囲気開始温度の限界と思われる。
- (4) 磁器焼成は還元雰囲気焼成が基本であるが、還元濃度はかならずしも高くする必要はなさそうである。

4-4 焼成雰囲気と素地の気孔

- (1) 酸化雰囲気焼成は大きな気孔が多く、断面は複雑な形状をしているがやや丸味を持っている。外観はみかん（柚）の肌のような凹凸があり、自重にやっと耐えたようであった。色はやや黄味がかかった白色を呈した。
- (2) 中性・還元雰囲気焼成は小さい気孔がわずかに存在し、外観は成形体の形を保ち、色は白色であった。
- (3) 素地中の気孔からも還元雰囲気開始温度 900～950℃ で CO 濃度 3% 位が適切と思われる。

文 献

- (1) 不二門義仁、矢野強、鳥居高夫：愛知県瀬戸窯業技術センター報告 No. 9, 10 (1980)
- (2) 加藤悦三：「陶磁器欠点防止技術」3P～9P 総合通信社 (1971)
- (3) 内藤 匡：「古陶磁の科学」雄山閣 (1977)

付記

この報告は昭和 53 年愛知県瀬戸窯業技術センター勤務中に試験したものを別の角度からとらえたものである。また電子顕微鏡写真は名古屋工業技術試験所の高嶋技官から借用した。