

唐津焼の自然科学的研究多くは、これまで胎土や釉薬に関する研究が独立して行われてきた。胎土では構成元素を調べることが中心で、釉薬は、材料と発色に関する研究である。しかし、胎土と釉薬との関係性の研究はほとんどおこなわれていない。そこで、本研究の目的は、唐津焼陶片を研究資料とし、胎土と釉薬との関係を調べ、またそれをもとに焼成実験を行い資料の結果と比較し、色彩的な特徴を明らかにすることである。

第1章では従来の研究をまとめ、本研究の目的と位置づけを明らかにする。

第2章の唐津焼の構造と特徴について調べた。15点の唐津陶片を研究資料とし、胎土と釉薬の関係性について検討したところ、資料の一部(8点)に50~100 $\mu\text{m}$ の不均一な厚さの界面層(ここでは中間層とよぶ)が観察される。中間層は焼成過程に生成したと考えられ、その構造や生成条件、中間層の色彩に及ぼす影響を検討した。光学顕微鏡観察から、中間層はガラス化しており、胎土層と釉薬層が混合したような色味を呈している。胎土の結晶構造を解析した結果、中間層のある資料の大半(8点中6点)から、クリストバライトが検出される。これに対し、中間層が生成していない資料でクリストバライトが検出されたのは7点中3点で、焼成温度と中間層の生成との関係が考えられる。しかし、例外の資料もあり、焼成温度が中間層の生成の唯一の要因ではなく、焼成時間や焼成雰囲気など焼成条件も関与している可能性がある。中間層のFeの配位構造をX線吸収分光法(XAFS)により調べた。XAFSからFe配位構造をみると、全体の傾向として、胎土層から釉層にかけて、 $L_3$ 吸収端の相対強度比に違いが見られる。胎土層から釉層にむかうと、2価のFeが弱くなり、3価Feのピークが強くなっていく。さらに、各層における $L_3$ 吸収端のピークの相対強度比をとると、中間層を有する資料には、胎土層から釉層にかけ、3価Feの割合が増加し、中間層は両者の中間に位置している。これに対し、胎土層には2価Feの割合が多く、釉層には3価Feの割合が多い。中間層を有する資料の連続的な変化とは違って、各層にほぼ一定な割合になっている。これは、Feイオンへの $\text{SiO}_2$ の酸素の配位などに起因していると考えられる。しかし、結晶構造の結果から、焼成温度以外、当時の焼成条件を知ることができず、中間層の生成に関与する要素を知ることができなかった。以上のことを踏まえ、胎土と釉薬との関係性を明らかにするため、中間層の生成に関与する焼成条件や中間層の特徴を明らかにする必要がある。そこで、中間層の生成条件および特徴を中間層の再現する焼成実験から明らかにすることとした。

第3章では文化財資料の検討結果を受け、焼成実験により中間層の生成原因や役割を検討した。実験は焼締めと本焼き実験に分けて行った。胎土は、唐津焼に近い組成の赤土5号と平津長石の30と60メッシュ(以下、#30と#60とする)を原料とし、釉薬はかまど長石と木炭灰からなる灰釉を用いた。焼成温度、昇温速度およびねらし時間などの焼成条件を変化させた。焼締め実験では、800 $^{\circ}\text{C}$ 、1180 $^{\circ}\text{C}$ 、1280 $^{\circ}\text{C}$ とした。中間層の生成には長石が関与していることから、長石の溶融具合を中心に考察する。800 $^{\circ}\text{C}$ では、長石が残り、融液化していない。1180 $^{\circ}\text{C}$ では保持時間が5minと20minを比較すると、長石の一部が残り、曹長石とカリ長石の融け方に違いが見られる。これに対し、焼成温度が1280 $^{\circ}\text{C}$ になると、長石が融け、検出されなくなる。焼締め焼成実験の結果をうけ、本焼き実験を2回行った。本焼き焼成ではねらし時間や昇温速度と中間層の生成との関係を中心に考察した。焼成条件について、2回とも焼成温度を1280 $^{\circ}\text{C}$ とし、昇温速度を変更し、ねらし時間は5minと1hとした。すべての試料に胎土層と釉薬層との界面付近に長石と思われる白い層が観察される。これは胎土中の長石が溶融し、界面付近に拡散したと考えられる。相違点として、2回目の本焼き試料では胎土のみの箇所表面付近にも白い結晶が観察される。これはねらし時間を長く(1h)したからと思われる。FE-SEM/EDSによる胎土組成分析より、すべての試料の胎土にNa、Al、Si、K、Fe、Ca、Mgが検出される。長石の添加量が増える一方、各試料の組成に大きな違いがみられないが、原料組成と比較すると、アルミナ濃度に違いがみられる。この原因については第4章で詳しく検討する。X線回折より、石英、ムライト、クリストバライトが検出される。EDSから長石の成分となる元素が検出され

るものの、結晶構造解析では長石の結晶が検出されない。焼成による構造変化を参考にし、これは、焼成時長石が熔融し、融液化し、冷却過程に固化し非晶質あるいは微細結晶となった、またはほかの成分と反応したことが原因と考えられる。

第4章では文化財資料の分析結果と第3章での焼成実験の結果とを比較し、中間層生成のメカニズムおよび中間層の色彩への影響について総合的に検討した。FE-SEM/EDSを用いて文化財資料と焼成実験で作製した試料の釉薬層、中間層および胎土層のK、Ca、Al濃度分布を調べた。その結果、中間層と思われる部分にアルミナが多く観測される。KとCaも同様な傾向を示している。これは焼成中における融剤の組成であるKとCaはAlの融点より低い温度で融解し、結果として中間層を生成したと考えられる。中間層が色彩への影響を検討するため、分光反射率を測定した。ねらし時間を1時間にした焼成実験の試料について、断面から各層の分光反射率は、釉薬を一層の部分では胎土層、釉薬層及び中間層のスペクトルが同様な傾向を示している。また、これらの試料の表面から測定した結果、釉薬を薄く掛けた部分の釉薬層の分光反射率は胎土層と同様な傾向を示す。この結果から、ねらし時間を長く（1時間）したことで、釉薬層が胎土層に拡散あるいは反応したと考えられる。表面と側面から釉薬層の分光反射率を測定すると、釉薬の一層の部分は中間層や胎土層と同じ傾向を示す。このことから、表面からみる際に、釉薬層の厚みが色彩に影響を与えることがわかる。以上のことから、分光分析より、中間層と色彩との関係が認められるが、これは釉薬層の厚みや焼成条件などの総合作用である。

第5章では以上の結果を総括する。

本研究では胎土と釉薬との関係性に着目し、釉薬の発色に影響する要因に新たな視点を提供し、釉薬開発に新たな知見を与え、新規の陶磁器制作に寄与すると考えている。