

## 萬古急須の特性解明の研究

### - 萬古急須素地の物性試験 -

服部正明\* , 稲垣順一\*

#### Research for Characterization of Banko Teapot -Test of Banko Teapot Bodies-

Masaaki HATTORI, Jun-ichi INAGAKI

#### 1. はじめに

萬古焼の急須でお茶を飲むとおいしいと昔から言われている。萬古急須は、鉄分を多く含んだ土を無釉のまま還元焼成することで製造され、焼成後の色が紫色がかっているため紫泥急須とも呼ばれている。

当研究室では、昭和 50 年代まで何度か萬古急須を研究テーマとして取り上げて<sup>1,2)</sup>きた。その後、技術支援的な対応は行っていたが研究としては取り組んでこなかった。しかし最近急須にお湯を入れると割れるという問題が一部にあることから、現在の萬古急須製品の物性を調査することとした。急須の割れは耐熱衝撃抵抗性が劣るため、その主たる原因は急須素地の熱膨張率が大きすぎるためであると考えられる。特に、クリストバライト( $\text{SiO}_2$ )が存在すると、熱膨張率が大きくなる傾向がある。今回、萬古急須メーカー 11 社の協力を得て、熱膨張率、化学組成等の試験を行い、急須はい土を改良したので、その結果を報告する。

#### 2. 実験方法

萬古急須メーカーから、各社の窯のいくつかの場所で焼成した径 5mm、長さ 50mm 程度の棒状試験体の提供を受け、熱膨張率の測定、X線回折装置による鉱物の同定、蛍光 X線分析装置による化学組成の分析を行った。

また陶土メーカーの製造する赤萬古土(萬古急須用はい土)を用い、1100、1150、1200 で還元

\* 窯業研究室

焼成した。焼成は 900 を超えた時点から強還元に入り、約 40 /h の速度で所定の温度まで昇温させた。この焼成体について熱膨張率、吸水率、鉱物組成、曲げ強度を測定した。

熱膨張率は 7 /min の昇温速度で測定、吸水率は 3 時間煮沸法、及び曲げ強度は日本セラミックス協会規格の「食器用強化磁器の曲げ強さ試験方法」(JCRS203-1996)によった。

また急須用原料単味のクリストバライト生成量を評価するため、各原料に水を加えて攪拌解砕し、50 目篩を通した後、赤萬古土試験体と同様に還元焼成して鉱物の同定を行った。なお、クリストバライトは 163~275 の間で $\alpha$ - $\beta$ 型転移が敏速かつ大きな容積変化を伴って起こることが知られており、その存在量が素材の熱膨張率に影響する。

#### 3. 結果と考察

##### 3.1 メーカー製品の試験結果

萬古急須メーカー 11 社の急須はい土は、地元陶土メーカーの赤萬古土を使用しているところが多いが、別種の含鉄はい土を混合して用いる場合もある。また自社で原料から急須はい土を調合しているところもある。

焼成方法は、還元焼成(紫泥急須)が 9 社、酸化焼成(朱泥急須)が 2 社である。

紫泥急須はクリストバライトが生成されることが多いため、朱泥急須に比べ熱膨張率が大きくなる傾向にある。また紫泥急須は、同じメーカーの製品で

も焼成場所の違い（焼成温度の違い）によって、熱膨張率が大きく異なる場合がある。

図1に萬古急須メーカーA社（還元焼成）の焼成場所の違いによる熱膨張率の差を示す。火前、天、中では熱膨張率はほぼ同じであるが、最も焼成温度が低い根では平均熱膨張係数が  $10 \times 10^{-6}/$  を超えており、お湯を入れたときの熱衝撃に耐えることができない可能性がある。

熱膨張率が異なる原因として、通常急須に生成される低膨張の鉄コーディエライト（Sekaninaite： $2\text{FeO} \cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{SiO}_2$ ）が、焼成温度が低いと熱膨張率の高い鉄スピネル（Hercynite： $\text{FeO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$ ）のままであると考えられる（図2）。

次にメーカー11社の急須焼成素地の化学組成を表1に、急須焼成素地中の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  含有量と平均熱膨張係数（室温～600）の相関図を図3に示す。酸化焼成素地（朱泥）は還元焼成素地（紫泥）よりアルカリ分、特に  $\text{Na}_2\text{O}$  が多い。これはソーダ系長石が多いため、前述したクリストバライト量が少ないこととも関連している。

$\text{Al}_2\text{O}_3$  の平均値は19%弱であるが、各メーカーの含有量は16.41～20.80%とばらつきがある。図3から  $\text{Al}_2\text{O}_3$  が多いほど熱膨張率が低下する傾向にあることがわかるが、同一  $\text{Al}_2\text{O}_3$  量でも焼成温度の差により熱膨張率には大きな違いがある。

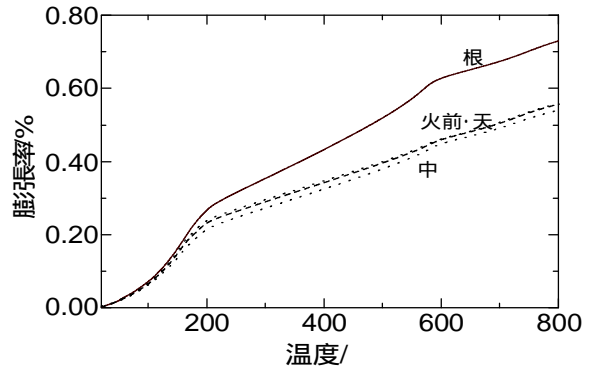


図1 A社急須の熱膨張率の違い

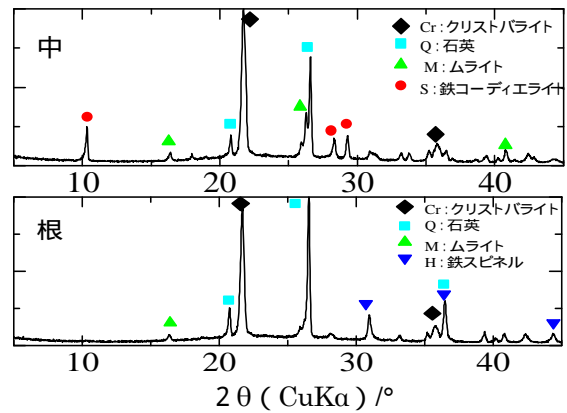


図2 A社急須，中と根における生成鉱物

表1 萬古急須焼成素地の化学分析

	還元焼成平均 (9社)	酸化焼成平均 (2社)	全平均 (11社)	データ範囲
$\text{SiO}_2$	71.98%	72.36%	72.04%	70.25～75.40%
$\text{Al}_2\text{O}_3$	18.80%	19.16%	18.86%	16.41～20.80%
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	4.75%	4.13%	4.64%	4.12～5.07%
$\text{TiO}_2$	0.84%	0.61%	0.80%	0.59～0.89%
$\text{MnO}$	0.05%	0.03%	0.05%	0.02～0.06%
$\text{CaO}$	0.27%	0.20%	0.26%	0.18～0.36%
$\text{MgO}$	0.78%	0.30%	0.69%	0.23～0.85%
$\text{Na}_2\text{O}$	0.40%	0.90%	0.49%	0.29～0.92%
$\text{K}_2\text{O}$	2.30%	2.43%	2.32%	2.22～2.44%
$\text{P}_2\text{O}_5$	0.04%	0.03%	0.04%	0.03～0.05%
合計	100.20%	100.13%	100.19%	

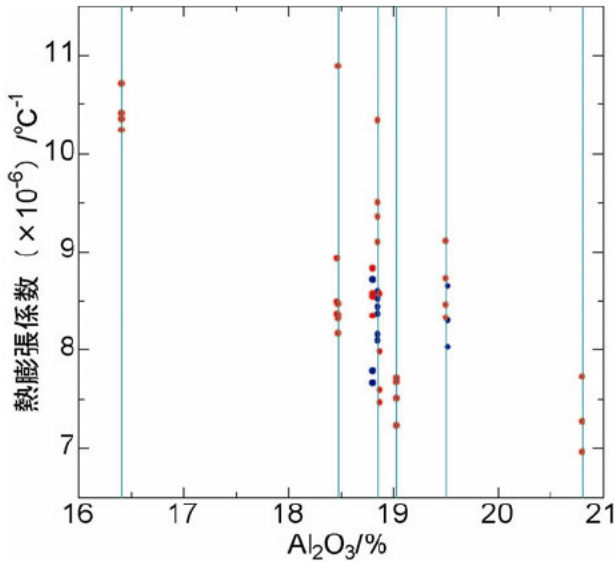


図3 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>含有率と熱膨張係数

### 3. 2 焼成温度の違いによる急須素地物性変化

窯業研究室にて還元焼成した急須素地の試験結果を表2に、1100℃、1150℃、1200℃焼成体のX線回折図を図4に示す。図2とも関連するが、1100℃焼成で鉄成分は鉄スピネルとして存在するが、1150℃焼成では鉄スピネルと鉄コーディエライトが共存し、1200℃焼成では鉄コーディエライトのみとなる。クリストバライトは1100℃では少量の生成にとどまるが、1150℃、1200℃焼成では耐熱衝撃性にやや問題となるほど生成している。

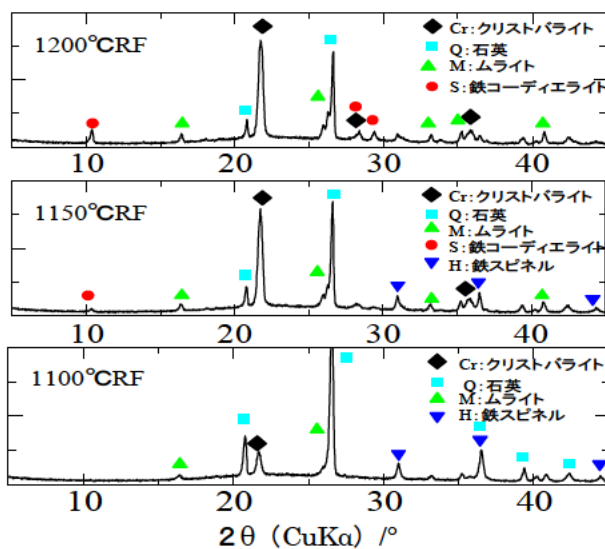


図4 還元焼成急須素地のX線回折図

表2から、焼成温度が高くなるに伴い熱膨張率が低下することがわかる。ただし、100℃までの熱膨張率は、1100℃焼成素地が最も小さい。これはクリストバライト生成量が少ないためである。

吸水率は1100℃焼成素地からほぼ0であり、低温から焼結する素地であることがわかる。

曲げ強度も約100MPaと、一般の磁器素地の60～80MPaに比べ高い値を示す。

表2 焼成温度の違いによる急須素地物性変化

焼成温度	平均熱膨張係数(×10 <sup>-6</sup> /°C)			吸水率 (%)	曲げ強度 MPa
	～100℃	～600℃	～700℃		
1200℃	8.16	8.14	7.71	0.0	96.6
1150℃	8.43	8.93	8.40	0.0	104.3
1100℃	7.42	10.20	9.31	0.1	103.8

### 3. 3 急須原料の物性

急須原料及びその候補7点について、還元焼成によるクリストバライト量の変化をみた。

原料の化学分析値を表3に、クリストバライト量の変化を図5に示す。

急須の主原料である黄土や青岩のクリストバライト生成量はそれほど多くないが、粘土原料は、その種類によってクリストバライト生成量が大きく異なる、粘土原料Dに全くクリストバライトがみられないのは、アルカリ含有量が多いためと考えられる。また原料の粒径や結晶状態等もクリストバライト生成量に影響すると考えられる。

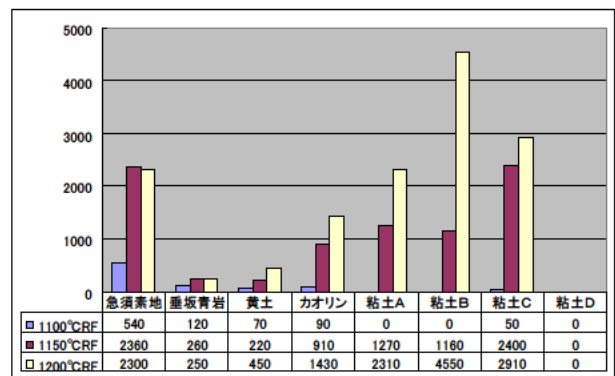


図5 萬古急須原料焼成体のクリストバライト量 (X線回折によるピーク高さ)

表 3 急須原料の化学分析値

	垂坂青岩	黄土	カオリン	粘土 A	粘土 B	粘土 C	粘土 D
SiO <sub>2</sub>	63.98%	67.74%	47.65%	60.95%	79.35%	61.99%	66.77%
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	18.32%	17.10%	34.14%	24.57%	12.94%	22.86%	19.93%
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5.27%	4.68%	1.06%	0.94%	0.61%	2.46%	1.57%
TiO <sub>2</sub>	0.84%	0.82%	0.11%	0.94%	0.94%	1.11%	0.24%
MnO	0.04%	0.05%	0.01%	0.01%	0.01%	0.02%	0.02%
CaO	0.72%	0.11%	4.16%	0.16%	0.16%	0.29%	0.69%
MgO	1.45%	0.58%	0.37%	0.21%	0.28%	0.76%	0.17%
Na <sub>2</sub> O	1.06%	0.16%	1.05%	tr.	tr.	tr.	2.14%
K <sub>2</sub> O	2.24%	2.68%	0.44%	0.70%	0.76%	1.73%	3.76%
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.03%	0.03%	0.01%	0.02%	0.02%	0.04%	0.02%
Ig.loss	6.09%	6.22%	10.53%	11.08%	5.15%	8.60%	4.96%
合計	100.04%	100.17%	99.53%	99.58%	100.22%	99.86%	100.27%

### 3.4 新急須はい土の作製

これまでの試験結果を基に、赤萬古土の調査を見直した。その考え方は、はい土中の Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 分を増加させる、クリストバライトの生成しやすい原料を減らし、生成しにくい原料を増やす、の 2 点である。

その結果、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 含有量は 18.85% から 21.65% に増加（表 4）し、表 5 に示すように熱膨張率を適性範囲にすることができた。また焼成素地の風合いも従来と変わらず、良好であった。

また、窯業研究室が 1967 年及び 1970 年に行った

急須素地の分析結果<sup>1,2)</sup> (Ig.loss を除いて再計算) を表 4 に示した。表 4 中の「上土」はトロンメルで 3 昼夜湿式細摩し 150 目篩を通して作製、「並土」は原料に水を加えて攪拌解砕した後に 150 目篩を通し、砂利分や木片等を除いて作製したものである。並土は、砂利中の SiO<sub>2</sub> 分が除かれるため上土より Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 分が多くなっている。

今回作製した新急須はい土は、かつての素地に比べ Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と Na<sub>2</sub>O 分が少ないが、この点をどうするかについては、今後急須メーカーの方々と協議しながら検討していきたい。

表 4 新急須はい土の作製：焼成素地の化学分析値

	赤萬古土 現	赤萬古土 新	1967 年		1970 年	
			上土	並土	上土	並土
SiO <sub>2</sub>	71.75%	69.07%	68.96%	65.22%	66.70%	63.79%
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	18.85%	21.65%	19.48%	22.80%	20.10%	22.45%
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4.69%	4.82%	6.06%	6.59%	7.49%	7.64%
TiO <sub>2</sub>	0.89%	0.85%			0.60%	0.51%
MnO	0.04%	0.06%	0.10%	0.07%	0.11%	0.09%
CaO	0.24%	0.27%	0.54%	0.51%	0.43%	0.35%
MgO	0.82%	0.76%	0.88%	0.99%	1.05%	1.23%
Na <sub>2</sub> O	0.38%	0.42%	0.78%	0.78%	1.07%	1.28%
K <sub>2</sub> O	2.28%	2.43%	2.60%	2.65%	2.49%	2.43%
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.04%	0.04%				
合計	99.98%	100.37%	99.40%	99.61%	100.04%	99.77%

表5 新急須はい土の作製  
焼成素地の熱膨張率

	平均熱膨張係数( $\times 10^{-6}/$ )		
	~100	~600	~700
赤萬古土 現	8.88	9.08	8.47
赤萬古土 新	8.02	7.70	7.33

#### 4 まとめ

萬古急須メーカー11社の製品について熱膨張率，化学分析等の試験を行った．そして，急須はい土を若干調合変更して新急須はい土を作製した．このはい土は現在急須メーカーで使用されている．

今後は，お茶をおいしくするという観点から急須はい土の調合を更に検討していく予定である．

#### 参考文献

- 1) 後藤繁策ほか：“赤萬古原料土および素地土の物性について”．三重県窯業試験場研究報告，No3，p35-51 (1967)
- 2) 熊野義雄ほか：“三重県内、未利用鉱物資源の活用研究(1-3)赤萬古素地への利用”．三重県窯業試験場研究報告，Vol4，p43-56 (1970)

(本研究は法人県民税の超過課税を財源としています)