

## 窯業原料調査（その 3）

### （石垣島、竹富島地域）

中村英二郎、赤嶺公一、宮城雄二、花城可英、與座範弘

沖縄県内では沖縄本島北部、離島などにおいて窯業資源の未調査地域がある。これらの地域から新規陶磁器原料探索のため試料採取及び評価を行い、安定的な陶磁器原料供給の可能性を探る窯業資源調査を平成 18 年度から実施している。今年度は石垣島、竹富島地域について未調査及び既に窯業原料として利用されている地点の試料採取と分析を行い、窯業資源としての基礎特性（化学組成、鉱物組成、呈色、耐火度）の測定を行った。その結果、窯業原料としての可能性について報告する。

#### 1 はじめに

石垣島を含む八重山地域は古くよりパナリ焼(新城島)、八重山焼等陶器の生産が行われており、良質な窯業資源の賦存が期待されている地域である。窯業資源の調査としては、沖縄県工業技術センター（前身の沖縄県工業試験場を含む）において昭和 52 年より実施され、数多くの報告がある<sup>1~6)</sup>。これらの報告を大別すると、まず石垣島、西表島地域の基礎的な窯業原料の分析を行い、その次に川平陶石を用いた磁器製品に関する研究が行なわれている。

石垣島の地層は 4 群に大別され、ほかに貫入岩類があるとされている<sup>7)</sup>。

|               |        |
|---------------|--------|
| 海浜および低地堆積物    | (完新統)  |
| 琉球層群 大浜層      | (更新統)  |
| 宮良層群 宮良川層・野底層 | (始新統)  |
| 石垣層群 トムル層・富崎層 | (年代未詳) |

石垣層群は、石垣島、竹富島、嘉弥真島、小浜島、西表島の基盤を構成する層であり、堆積層と変成度の異なるトムル層と富崎層からなる。過去の文献において富崎層からは、良質な黄色粘土の存在が報告されている<sup>2)</sup>。

また、中新世に貫入した花崗岩類は於茂登山を中心とする石垣島の中央北西部に高い山地を形成しており、この変質風化物が窯業原料として有用であるとの報告がある<sup>8)</sup>。花崗岩質岩石が熱水変質を受けて生成したものが川平陶石（準陶石）であり、流紋岩が熱水変質を受け生成したものが、大嵩セリサイトおよび大嵩陶石であるとされている。これらの原料については、平成 9,10 年度に「石垣島の窯業資源調査」としてボーリング調査を行い、推定鉱量を算出している<sup>8)</sup>。これらの陶石やセリサイトは、県内他地域には賦存しない磁器原料として、貴重な窯業資源である。

このように貴重な窯業資源が数多く賦存する地域であるので、新たな原料の探索および既存原料の再確認のた

め窯業資源調査を行った。なお、竹富島では窯業資源調査を行った報告が見当たらないので初めての調査となると思われる。

試料採取に当たっては、以前の報告、地質図<sup>9)</sup>を参考にするとともに、地元で窯業原料に関する聞き取りを行い、実際に現地で採取を行った。

採取試料は、窯業資源としての基礎特性である化学組成、鉱物組成、呈色、耐火度の測定を行った。これらの基礎特性を測定することで窯業資源としての可能性を探った。

#### 2 実験方法

##### 2-1 原土の採取方法

原土は手ぐわ、ハンマー、スコップ等を用いて採取した。採取の際は、その箇所平均となるように表層を除いて、できるだけ草木の混入していない平均的な原土をビニール袋に採取し、供試料とした。

##### 2-2 採取地点

###### 1) 石垣島

石垣島の地質は前出の通り、石垣層群、宮良層群、琉球層群、完新世堆積物、貫入岩類に大別することができる。この中で良質な窯業原料を賦存しているとの報告があるのは、主に貫入岩類と石垣層群富崎層である<sup>2)</sup>。今回の調査においては既に報告のある地点と、新たに可能性のある地点についても調査を行った。現在カーラ岳南側に新石垣空港を建設中で、造成中の土木現場のり面を観察することが可能であった。また、野底層についての報告がないため No.21 大野、No.25,26 玉取崎において試料採取を行った。

###### 2) 竹富島

竹富島は石垣島から南西方向に 4km 離れた、南北 3km、東西 2km、平均標高 10~15m の平坦な島である。

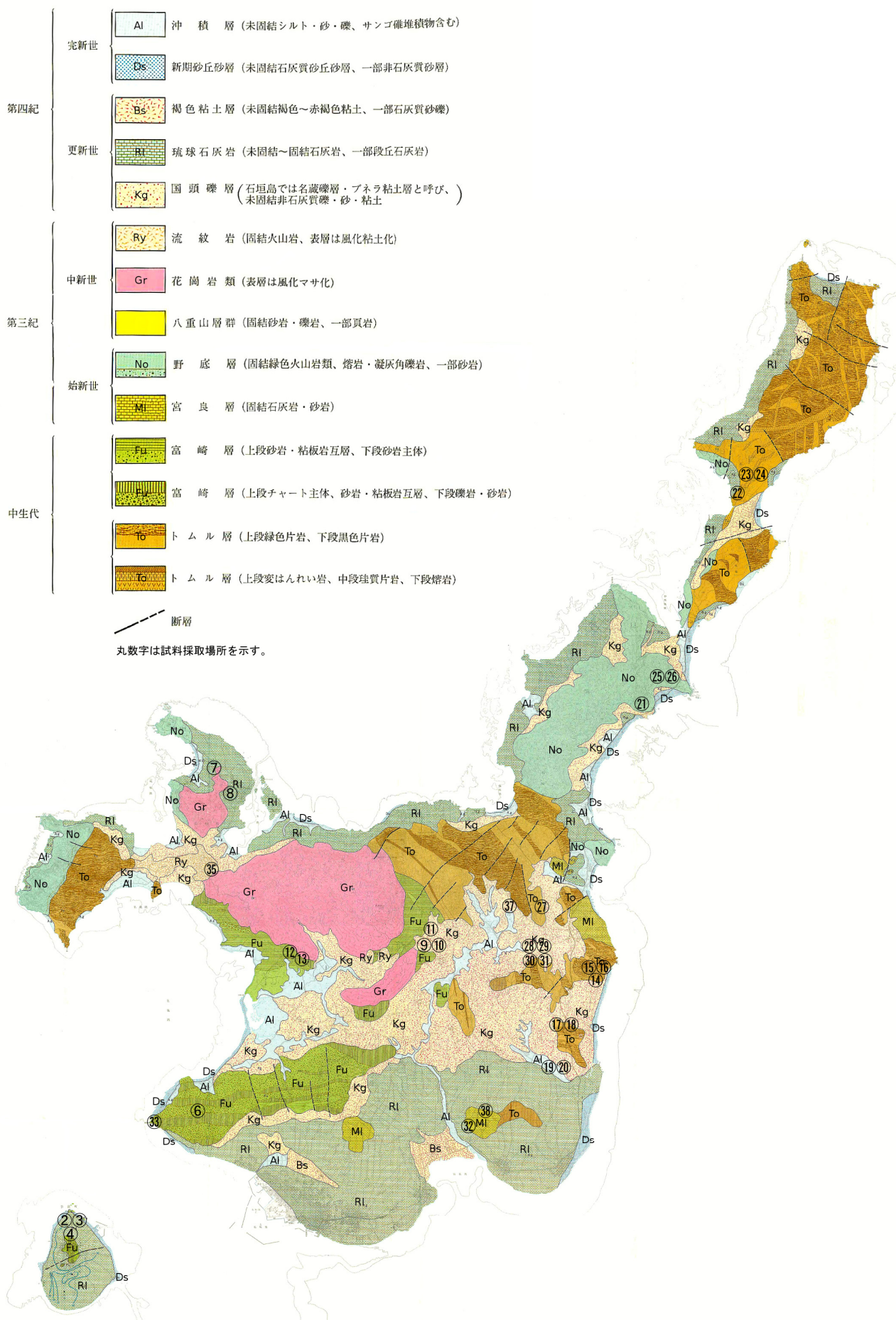


図1 石垣島、竹富島 表層地質図および試料採取場所 出典：土地分類基本調査図（表層地質図）石垣<sup>9)</sup>

竹富島の地質は、ほぼ全域が琉球層群で覆われているが、島中心の一部で古期岩類が露出している<sup>10)</sup>。島内で陶器製造を営んでいる業者は 2 社あるが、島内の原料は、ほとんど使用していない。竹富島では以前島内の原料を用いて瓦を焼く工場設立を検討した業者があった。そこで、竹富島の試料採取に関しては、瓦用として予定していた原土と陶器製造業者がストックしている島内原料の採取を行った。

### 2-3 化学組成及び強熱減量

化学組成、強熱減量に用いた試料の前処理は、採取した試料をアルミカップに適量取り 105℃で十分に乾燥した後、めのう乳鉢を用いて粉碎した。処理後チャック付きビニール袋に入れ測定までデシケーター中で保管した。

強熱減量は前処理を行った測定用試料を磁製するつばに約 1g 量り取り、電気炉を用いて 1050℃で 3 時間強熱した。デシケーター中で放冷後重量を量り、その減量から強熱減量(%)を計算して求めた。

化学組成は、測定用試料をルーズパウダー法専用容器に詰め、エネルギー分散型蛍光 X 線分析装置 (SPECTRO xepos) を用いて、FP 法による半定量分析で測定した<sup>11)</sup>。測定成分は主要な 9 成分 (SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>、CaO、MgO、Na<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>O、MnO) と SO<sub>3</sub> の合計 10 項目を行った。

### 2-4 鉱物組成測定

鉱物組成は、島津製作所 X 線回折装置 XD-D1 を用いて粉末法で測定を行った。測定条件は、Cu 管球、30kV、20mA、スキャン速度は 2° /min、2θ が 2～70° で測定を行った。鉱物組成は X 線回折の測定結果および化学組成から推定を行った。

### 2-5 呈色測定

呈色測定用試料は、採取した試料を 105℃で乾燥、粉碎した物を乾燥後呈色として、また、強熱減量測定後に粉碎したものを強熱減量後呈色に用いた。

呈色測定は、標準土色帖<sup>12)</sup>を用いて標準色に近い色を判定した。標準土色帖は、マンセル表色系より、土壤に近い色を抜き出した色見本であり、測定では試料の色と目視で比べて評価した。

### 2-6 耐火度試験

耐火度は、JIS R 2204:1999 耐火物及び耐火物原料の耐火度試験方法<sup>13)</sup>に準じて測定を行った。電気炉を用いたため、JIS で規定されている昇温速度とは異なる昇温条件で行った。

## 3 実験結果及び考察

### 3-1 試料採取

試料採取にあたっては、過去の研究報告や地質図を調べると共に、地元の陶芸家の情報、公民館への聞き取り、土木工事を行っている行政担当部局や業者への聞き取りを行い、粘土が賦存していると予測できる場所の情報収集を予め行った。試料採取した地点を図 1 丸数字に、一覧を表 1 に示す。試料一覧の中には、地元の方から提供された採取地点が明確でない試料も含む。

### 3-2 化学組成

採取した試料のエネルギー分散型蛍光 X 線分析装置での半定量測定結果を表 1 に示す。

ほとんどの試料は SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を主成分とするものであったが、No.28 白保青粘土は SiO<sub>2</sub> と CaO を、No.27 大里、No.30 白保オオハタバルは SiO<sub>2</sub> と Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を主体とする試料であった。

SiO<sub>2</sub> については、37～96%の範囲内であった。鉄分が多い試料 (No.27,30) では相対的に SiO<sub>2</sub> が低くなる傾向が見られた。SiO<sub>2</sub> の含有量が多いサンプルは富崎層母岩や宮良の畑の中の石であり、ケイ岩に近いものであると考える。

また、特異的なものとして、MnO が多いサンプルが認められた。No.30 白保オオハタバルのマンガンノジュール様のサンプルは、MnO 5.34%、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 23.9%含むことから顔料として利用可能であると考えられる。

焼物の不良原因として SO<sub>3</sub> による白華現象がある。今回の測定では轟でボーリングされていた 18m 下の青粘土 (No.19) が SO<sub>3</sub> 4.36%を含んであることから、窯業原料として使用する場合には注意を要する。

### 3-3 鉱物組成

試料の X 線回折分析結果から、鉱物組成の推定を行った。今回の測定では粉末法のみでの測定のため、確定できない粘土鉱物があるが、推定される鉱物組成を表 1 に示す。

### 3-4 呈色測定結果

呈色測定結果を表 1 に示す。八重山地域の窯業原料は、鉄分を豊富に含む有色原料と鉄分が比較的少ない白色系原料に大別できる。県内では貴重な白色系原料は、川平陶石、大嵩粘土、明石石等貫入岩が風化したものが該当する。しかしながら、鉄分を約 1%含むことから還元焼成した場合、これまでの研究により灰白になることが知られており、磁器原料として使用するには注意が必要である。



有色原料では、鉄分の量が彩度に影響を与えている。鉄分が多ければ濃い褐色となる<sup>14)</sup>。また、今回マンガンも多く含む試料(No.30)があったが、これを焼成すると黒色になった。鉄分、マンガンを多量に含む試料は顔料として利用が可能であると考えられる。

### 3-5 耐火度測定結果

耐火度は、それぞれの地域を代表する特徴的な試料の測定を行った。過去の報告においては、水ひをした原料で耐火度試験が行われていたが、今回の測定では JIS に準拠して原土のまま粗い粒子もすべて粉碎して試験を行った。その結果、過去に水ひ物を用いた測定で耐火度 SK31 以上あった富崎粘土、川平陶石、大嵩粘土は、それぞれ SK20,SK26,SK17 という結果になった。

今回耐火度試験を行った 14 試料では、SK31 を超す試料は確認できず、鉱業法で規定される耐火粘土は認められなかった。

### 3-6 採取試料の窯業資源としての可能性

#### ・石垣島富崎層試料

富崎層は石垣層群に属し、石垣島の中ではトムル層に次いで古い地層とされている。バナナ岳一観音崎に至る地域を模式地として、崎枝から名蔵、於茂登周辺等に分布している。

富崎層には石垣島で代表的な可塑性粘土が賦存しており、石垣市が市内の陶磁器製造業者へ原土を販売している。平成 10 年の調査において淡黄灰色粘土として 推定 鈹量 7500 トン、淡褐色粘土 推定鈹量 2900 トンの埋蔵が報告されている<sup>8)</sup>。(No.6)

バナナ岳八重山焼窯跡近くの試料(No.5)を陶磁器製造業者より提供されたが、耐火度が SK14+であり、市が販売している粘土より耐火度が低かった。鉄分も豊富に含んでおり、焼き締め用の原料として利用できる可能性がある。

富崎層は良質な窯業原料が賦存しており、重要な地層であると判断する。

#### ・石垣島野底層試料

今回の試料では No.21,25,26 が野底層に相当する。主として凝灰岩、凝灰角礫岩、溶岩からなるとされている。No.21 の試料は緑色凝灰岩であると考えられ、 $Fe_2O_3$  を 15%含むことに特徴がある。この岩石の表層は赤土で覆われているので、風化により赤土になるものと考えられる。No.25,26 の玉取崎周辺では火山弾様の真っ赤な風化物が認められた。化学組成をみると  $Fe_2O_3$  が約 15%含まれていることから、顔料としての利用可能性がある。野底層は窯業資源的にあまり使用実績がなく、今後の調査が望

まれる。

#### ・石垣島トムル層試料

トムル層は伊原間半島、平久保半島、屋良部半島等に分布する、藍閃石片岩、緑色片岩、石英、雲母片岩、石墨片岩等で構成する層である。トムル層と富崎層を合わせて石垣層群と呼び、石垣島で一番古い地層である<sup>15)</sup>。

従来の報告では、明石(No.22)に陶石質原料とカオリン系粘土が賦存すると記述がある<sup>7)</sup>。この報文においてはトムル層母岩(石墨片岩)に由来されていると考えられていた。しかしながら、その後の文献において明石付近には始新世流紋岩が貫入していることが報告<sup>15)</sup>されていることから、この貫入岩の風化物であると推定した。実際の試料(No.22,23,24)は、海から放牧地であるパラグライダー基地まで脈状に広がった貫入岩とその風化物を採取した。石垣島で窯業原料として利用されている川平陶石や大嵩粘土は貫入岩の熱水変質により生成していると考えられているが、明石石、明石粘土も同様に風化していることが示唆される。平久保半島には他にも貫入岩が報告されているので、これらは窯業的に有用資源である可能性がある。

また、新石垣空港の造成が行われているカーラ岳南側トムル層で藍閃石片岩の風化物であると推定する濃紺粘土の採取を行った。この風化物は粘りがあるので、窯業的に利用できる考えた。しかしながら、耐火度が SK9 で若干弱いため単味での使用は困難であると判断する。

#### ・石垣島貫入岩類

石垣島は沖縄他地域より、貫入岩類を豊富に産出している。石垣島北西部に花崗岩、その周囲に石英安山岩、流紋岩が付随する。於茂登岳を中心に東西・南北とも約 8km にわたって貫入岩が分布し、花崗岩類は岩相変化に富んでいるとされている<sup>10)</sup>。既知の有用窯業原料である川平陶石や大嵩粘土はこれらの岩石の熱水変質で生じたものと考えられている。岩石類は広範囲にわたって分布をしているので、これらの範囲の中に同様な有用窯業資源が賦存している可能性は十分にある。

#### ・竹富島試料

竹富島の地質的基層は富崎層であり、この上層に琉球層群が覆っているとされている。今回聞き取りを行って試料採取した場所は、地質図的には琉球石灰岩層であったが、基層である富崎層と同等の粘土の産出を期待した。この場所は以前瓦用粘土の採取を計画していた箇所であり、ある程度粘りのあるれき混じり粘土(No.2,3)であった。鈹物組成は、石英、カオリン鈹物、長石であり、マグネタイトの小さなピークも認められた。竹富島の試料は鉄分を多く含み、平均で 8~10% 程度含んでいた。また、火山弾様の軽石が層中に認められ、X 線回折測定



結果からガラス質のハロー、石英、長石の第1ピークが認められた。ガラス質であることから火山弾の可能性が高いと考える。

今回採取した竹富島試料は、概してれきを多く含み粘りが弱いため低質な窯業建材（レンガ）への利用に限られると判断する。

今回の耐火度試験において耐火度は川平陶石のSK26が最高であった。鉍業法ではSK31以上を耐火粘土と規定しており、今回試料採取をした範囲では耐火粘土は見受けられなかった。

石垣島には、熱水性粘土として川平陶石、大嵩粘土、明石石、明石粘土があり、磁器原料として利用可能な貴重な資源である。母岩の貫入岩類はこれらの地域以外にも存在しており、今後も新たな窯業資源が見つかる可能性は高いものとする。

堆積性粘土は富崎層富崎粘土やスクバル粘土、宮良粘土等多く賦存する。堆積性粘土は耐火度に大きな違いがあり、窯業的に利用する場合には注意が必要である。堆積性粘土のうち富崎粘土は、ボーリング調査の結果<sup>8)</sup>推定鉍量約10,000t賦存しているので、当面の使用は問題のない量があるものとする。ただし、石垣市も都市化が進み従来よりも粘土が採取できない状況になりつつあるので注意が必要である。

千枚岩等が風化した風化残留性粘土は、富崎層、トムル層、野底層共に産出していた。れき混じり粘土が多く風化の度合いによっては可塑性が不足する場合がある。於茂登岳南側より産出する於茂登粘土は、現時点では有効利用がなされていないが、比較的粘りが強いので今後有用な資源となる可能性がある。

#### 4 まとめ

石垣島・竹富島地域の窯業原料を調査するため、試料採取と分析を行い、窯業資源としての基礎特性（化学組成、鉍物組成、呈色、一部耐火度）を評価した。

その結果、熱水性粘土については、川平陶石、大嵩粘土、明石石、明石粘土の試料を採取し窯業資源として有用であることが再確認された。

堆積性粘土は富崎粘土やスクバル粘土、宮良粘土、竹富島竹富粘土を採取できた。これらの試料の多くは、れきを含んでおり、前処理を工夫することで粘土質の多い可塑性の富む窯業原料になるものとする。富崎層からは、従来より優良な窯業資源が見つかっている。

風化残留性粘土は、富崎層、トムル層、野底層共に産出し、採掘することができた。於茂登岳南側から産出する於茂登粘土の窯業原料としての利用はあまり進んでい

ないが粘りが比較的に強いので、今後の利用が期待される。

鉄やマンガンを多く含む原料もあり、釉薬原料等への利用が見込まれる。

#### 5 謝辞

今回の石垣島および竹富島について調査を行うにあたり、地元自治体、地元陶芸家、土壤に関する有識者の方々より貴重な情報を頂きありがとうございました。また、分析用原料を提供して頂いた皆様、ありがとうございました。

#### 6 参考文献

- 1) 照屋善義, 仲村三雄, 与座範弘, 宜野座俊夫, 朝武士靖雄, 工業試験場昭和55年度業務報告, 55-69 (1980)
- 2) 与座範弘, 宜野座俊夫, 花城可英, 照屋善義 工業試験場昭和59年度業務報告, 101-119 (1984)
- 3) 与座範弘, 宮良断, 沖縄県工業技術センター研究報告, 1, 67-78 (1998)
- 4) 花城可英, 中村英二郎, 与座範弘, 沖縄県工業技術センター研究報告, 3, 67-70 (2001)
- 5) 与座範弘, 花城可英, 沖縄県工業技術センター研究報告, 4, 93-96 (2002)
- 6) 与座範弘, 花城可英, 沖縄県工業技術センター研究報告, 5, 61-66 (2003)
- 7) 中川久夫, 土井宣夫, 白尾元理, 荒木裕, 東北大地質古生物研報, 84, 1-22 (1982)
- 8) 沖縄県八重山支庁, 「石垣島の窯業資源調査（要約版）」 (1999)
- 9) 沖縄県, 土地分類基本調査図(表層地質図), 石垣 (1985)
- 10) 木崎甲子郎編著, 「琉球弧の地質誌」, 沖縄タイムス (1985)
- 11) 花城可英, 新里美須々, 中村英二郎, 沖縄県工業技術センター研究報告, 9, 107-110 (2007)
- 12) 小山正忠, 竹原秀雄編著, 「新版標準土色帖」, 日本色研事業 (2006)
- 13) JIS R 2204 耐火物及び耐火物原料の耐火度試験方法 (1999)
- 14) 中村英二郎, 赤嶺公一, 宮城雄二, 花城可英, 与座範弘, 沖縄県工業技術センター研究報告, 10, 43-54 (2008)
- 15) 金子慶之, 川野良信, 兼子尚知, 地質ニュース, 598, 68-71 (2004)

編 集 沖縄県工業技術センター

発 行 沖縄県工業技術センター

〒904-2234 沖縄県うるま市字州崎 12 番 2

TEL (098)929-0111

FAX (098)929-0115

URL : <http://www.pref.okinawa.jp/site/shoko/kogyo/>

著作物の一部および全部を転載・翻訳される場合は、当センターにご連絡ください。