

壺屋荒焼原料の諸性状

窯業室 照屋善義・仲村三雄
宜野座俊夫・照屋輝一

1. 緒言

沖縄の伝統的工芸品である壺屋焼には、「上焼」と「荒焼」がある。一般に上焼は、施釉して焼締められたもののことであり、他方施釉しないで低火度で焼成したものを荒焼または甕蛮という。

荒焼の原料となる粘土は、終戦直後までは産地壺屋周辺の田畑の粘土（二次粘土）を利用していたが、都市化が進むなかで全くその採掘が不可能になった。

現在ではその代替原料として、沖縄本島南部に多量に賦存する泥塊岩と琉球石灰岩の風化物とみられる土壤粘土を適当に配合して使用している。

これらの素地坯土は、往年のそれと比較して成形性が悪く焼成上いくつかの問題があるようである。そこでこれらの原料の基礎性状ならびに窯業的性質について検討し、2、3の知見を得たのでその結果について報告する。

2. 試料および地質

現在使用している荒焼原料は、中新統から鮮新統にかけての純海成の堆積物で、島尻層群と呼ばれ本島中部の天願断層以南に広く分布し琉球石灰岩と不整合に堆積している。

島尻層群の露頭は、上部から新里層、与那原層、小禄層に分類されるが、これらの各層は砂岩、シルト、粘土または砂岩層に鬼板をはさむ互層からなる。荒焼原料は与那原層中の緑灰色シルト質粘土岩および鮮新時代に堆積した琉球石灰岩の風化土壤粘土である。後者は団粒化した赤褐色の、石灰分がほとんど溶脱した鉄分の多い風化残留性粘土である。

第1図に沖縄本島天願層以南の地質および試料採取地を、第1表に試料粘土名およびその特徴等を示す。

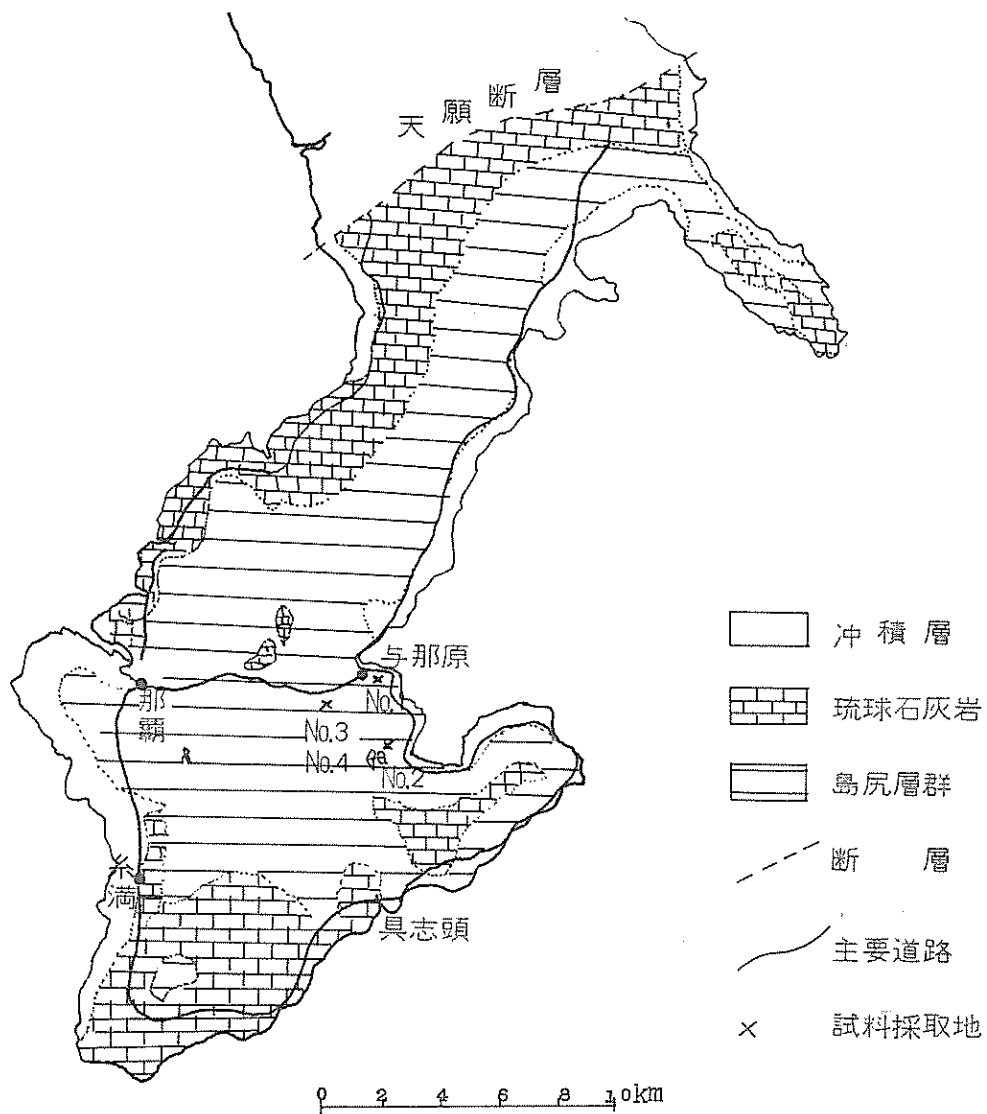


図1 沖縄本島南部の地質図

第1表 試料名および特徴

試料番号	試料名	採取地	分類	特徴
№1	馬天粘土	佐敷村馬天	堆積成	島尻層群、与那原層を構成する暗灰色泥質岩、量的に安定、希HClにより発泡する。
№2	新里粘土	〃 新里	〃	琉球石灰岩風化土壌粘土、褐色、希HClにより発泡しない。
№3	大里粘土A	大里村古堅	〃	馬天粘土と類似するが、少々シルト質
№4	大里粘土B	〃	〃	同上、Aは上層、B下層

3. 生性状

各原土はあらかじめ風乾したのち、4760 μ フィルを全通させ、ポリエチレン製の袋に保存し生性状試験の供試料とした。

3・1 粒度分布

風乾試料約10gをビーガーに秤取し、分散媒として0.2%ヘキサメタリン酸ソーダ水溶液400mlを加え、自動攪拌機で15分攪拌したのち一昼夜放置する。その後十分に振とう攪拌し自動粒度分布測定装置で測定した。その結果を第2表に示す。

第2表 試料の粒度分布

試料番号	試料名	> 44 (μ)	44~17 (μ)	17~13 (μ)	13~9 (μ)	9~5 (μ)	5 > (μ)
№1	馬天粘土	0.2	1.0	5.2	9.1	25.5	59.0
№2	新里粘土	0.0	0.5	2.4	2.6	7.3	87.2
№3	大里粘土A	0.1	5.9	7.1	10.1	17.8	59.0
№4	大里粘土B	0.2	1.8	7.1	10.2	19.5	61.2

3・2 可塑性

粘土の成形能を知るため、ペーファーコルン (Pferkorn) 法により可塑性値を求めた。すなわち、含量1.192gの鉄棒および皿を186mmの高さから直径33mm、高さ40mmの練土試験体の上に落とし、最初の試験体の高さに対する試験後の高さの比 (α) とそのときの含水率との関係をプロットして $\alpha = 3.3$ にあたる含水率、すなわち可塑性値を求めた。

第2図に可塑性試験機を、第3図に測定結果を示す。

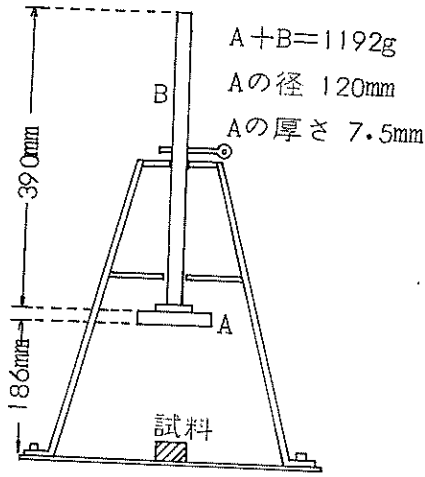
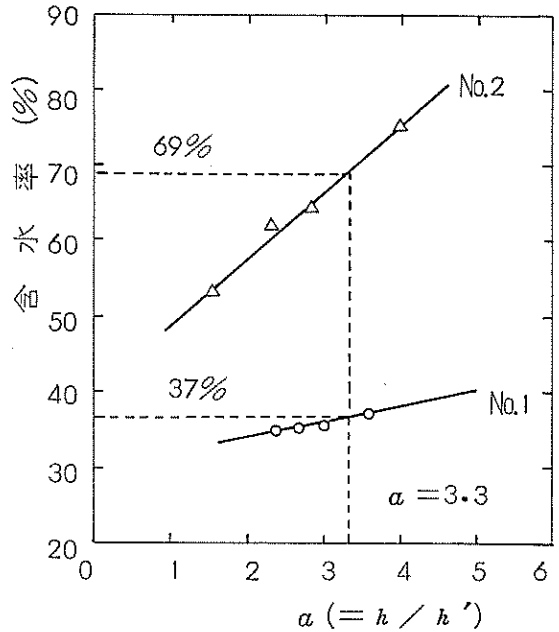


図2 可塑性試験機



h : 試験前の試験体の長さ
 h' : 試験後の試験体の長さ

図3 可塑性値

3・3 乾燥収縮率

可塑性試験の結果から得られた含水率で粘土試料を練土とし、木型により $70 \times 30 \times 10 \text{ mm}$ の試験体を手おこし成形して、その面上に 50 mm の間隔の標線をつけ約1週間風乾する。その後 65°C の熱風乾燥器中で1昼夜乾燥し、引き続き 110°C の空気浴中で4時間乾燥した後の収縮を測長し線収縮とした。第3表にその結果を示す。

第3表 焼成試験体の諸性状

試料名	乾燥率	850℃ (OP)					950℃ (OP)					1050℃ (OP)							
		色	収縮率	吸水率	気乾率	比小面積	比小重量	色	収縮率	吸水率	気乾率	比小面積	比小重量	色	収縮率	吸水率	気乾率	比小面積	比小重量
※1 馬尾粘土	7.7	灰褐色	7.7	22.7	36.3	2.5	1.6	灰褐色	7.9	22.8	36.9	2.6	1.6	灰褐色	10.3	20.7	34.7	2.6	1.7
※3 大里粘土	6.6	灰褐色	7.4	20.0	33.4	2.5	1.7	灰褐色	7.5	18.9	32.5	2.5	1.6	灰褐色	9.2	14.3	26.5	2.6	1.9
※4 大里粘土B	7.4	灰褐色	7.6	20.5	34.1	2.5	1.7	灰褐色	8.2	19.7	33.3	2.5	1.6	灰褐色	10.2	16.5	29.7	2.6	1.8
		SR6 (OP)					SR7 (OP)					SR8 (OP)							
※2 新里粘土	14.2	赤褐色	2.48	0.6	1.7	2.7	2.7	赤褐色	26.0	0.6	1.5	2.7	2.6	赤褐色	27.2	0.5	1.2	2.6	2.6

注) ※1、※3、※4は原土、※2は水ひ物

以上の粘土生性状についての諸試験の結果は、馬天粘土および大里粘土の両者と新里粘土とは、成因的な相違に因ずく特徴が顕著にあらわれていることを示している。すなわち、馬天粘土と大里粘土の両者は、粒度分布、可塑性値、収縮率においてほとんど同じ傾向を示し同質のものとみなせるがこれに対して新里粘土では5 μ 以下の粘土が約90%を占め、可塑性値および収縮率にも著しい違いがみられる。このことは、同粘土の団粒化または水壊性などの現象をとおして経験的にも理解されるところである。

4 焼成性状

上記3・3で用いた乾燥収縮率の試験体を3個あて3組に分けて、下記の条件により電気炉で焼成し外観、焼成色、焼成収縮率、吸水率、見掛気孔率、見掛比重、嵩比重などを測定した。

4・1 焼成条件

a) 試料No.1、No.2、No.4 について

- | | | | | |
|---|--------|--------------|--------------|--------------|
| ① | 850℃ | 酸化、焼成時間 8 時間 | 昇温速度 200℃/hr | 所定温度で 30 分保持 |
| ② | 950℃ | 酸化、焼成時間 // | 昇温速度 // | 所定温度で // 分保持 |
| ③ | 1,050℃ | 酸化、焼成時間 // | 昇温速度 // | 所定温度で // 分保持 |

b) 試料No.2 について

- | | | | | |
|---|------|------------|---------|--------------|
| ① | SK 6 | 酸化、焼成時間 // | 昇温速度 // | 所定温度で // 分保持 |
| ② | SK 7 | 酸化、焼成時間 // | 昇温速度 // | 所定温度で // 分保持 |
| ③ | SK 8 | 酸化、焼成時間 // | 昇温速度 // | 所定温度で // 分保持 |

4・2 焼成収縮率

生試験体(110℃乾燥)の面に50mmの間隔で標線をつけ、各焼成条件による焼成前後の寸法を測長し次式により焼成収縮率を求めた。

$$\frac{(\text{乾燥寸法} - \text{焼成寸法})}{\text{乾燥寸法}} \times 100\% (\%)$$

4・3 吸水率、見掛気孔率、見掛比重、嵩比重

JISR-2205に準拠し、乾燥重量(W₁)、水中重量(W₂)および飽水重量(W₃)を測定してそれぞれ次式により算出した。

$$\text{吸水率} = \frac{W_3 - W_1}{W_1} \times 100 (\%)$$

$$\text{見掛気孔率} = \frac{W_3 - W_1}{W_3 - W_2} \times 100 (\%)$$

$$\text{見掛比重} = \frac{W_1}{W_1 - W_2} \times 100 (\%)$$

$$\text{嵩比重} = \frac{W_1}{W_3 - W_2} \times 100 (\%)$$

第3表にこれらの測定結果を示す。

馬天粘土および大里粘土は、1,050℃ (0 F) までほとんど焼き縮まらないが、SK6 (1,200℃) で焼成するとブローチング (発泡性) 現象をおこすこと、また荒焼の焼成温度が1,070℃前後とみられることと考え合わせると両粘土はかなり焼成巾の小さな粘土であることがわかる。

新里粘土は生性状と同様に収縮が著しく、SK6 (1,200℃) で16%収縮する。一方ほとんど焼き縮まる傾向を示している。

5. 化学組成および耐火度

四分法により分割した試料を珽瑠乳鉢で粉碎し149μのフルイを全通させた後110℃で乾燥した。化学組成はJIS M 8854「耐火粘土分析法」に準拠して分析した。耐火度は金型で三角錐を作成し、電気炉でのその熔倒温度として測定した。なお新里粘土については酸素-プロパン炉を用いて測定した。化学分析、耐火度の試験結果は第4表のとおりである。

第4表 化学組成および耐火度

試料名	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	MnO	Ig. loss	Total	耐火度
	%	%	%	%	%	%	%	%	%	%	%	
No. 1 馬天粘土	54.02	16.47	7.86	0.80	3.95	2.93	1.22	3.30	0.09	9.28	99.92	1,200℃ (SK6 a+)
No. 2 新里粘土	43.59	27.50	12.43	1.21	0.08	1.01	0.17	2.50	0.04	12.02	100.54	(1,520℃) SK19
No. 3 大里粘土A	55.75	17.08	8.06	0.86	2.61	2.71	1.30	3.23	0.11	8.19	99.90	1,190℃ (SK5 a+)
No. 4 大里粘土B	55.88	16.94	7.81	0.85	2.67	2.80	1.30	3.25	0.11	8.12	99.73	1,180℃ (SK5 a)

化学分析の結果は馬天粘土と新里粘土が化学組成においても同質のものとなしてよいことを示している。一般に鉄分、アルカリ金属、アルカリ土類金属が多く、耐火度も低い。これは比較的低温度（1200℃）での焼成でフローティング現象をひきおこす要因になっており、焼成諸性状の結果ともよく一致している。

一方、新里粘土は化学組成においても馬天粘土等と比較して大きな違いがみられる。石英分が少なくアルミナ分が多い。鉄分が多いにもかかわらず耐火度が高いのはアルミナが多いためと考えられる。鉄分のほとんどは非晶質の状態が存在するものと考えられる。

6. 鋳物組成

6・1 X線回折

風乾試料50gを300mlのビーカーにとり、0.2%ヘキサメチリン酸ソーダ200mlを加え、マグネチックスターラーで約30分攪拌し1昼夜放置する。その後1ℓのメスシリンダーに移し標線まで分散媒を加えはげしく攪拌して静置する。ストークスの式により室温における時間と高さを求め、粒径約2μ以下の粘土試料をホールピペットで静かに吸い上げ採取し、遠心分離後風乾してX線回折用の粉末試料とした。

第4図に試料No.1（馬天粘土）およびNo.2（新里粘土）のX線回折図（底面反射）を示す。

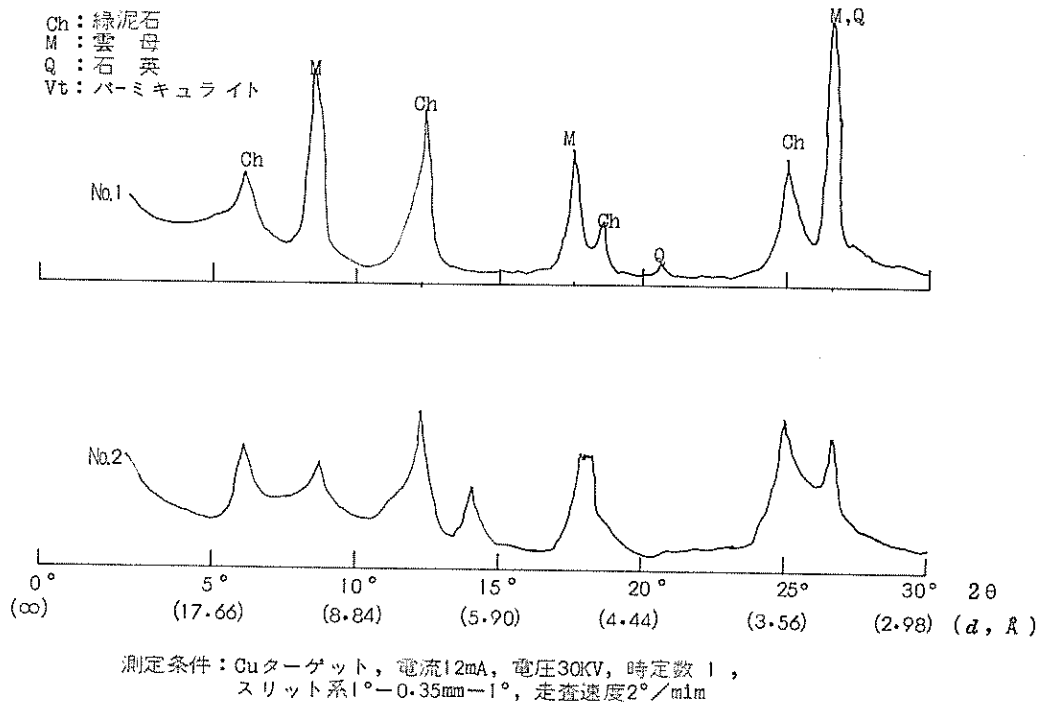


図4 X線回折パターン（底面反射）

馬天粘土の 14.2 \AA (中)、 7.2 \AA (強)、 4.7 \AA (中)、 3.5 \AA (強) の一連の反射ピークは緑泥石の存在を示している。 14.2 \AA の反射は 6 N-HCl 処理により完全に消失し、またエチレン グリコール処理により 18.4 \AA に膨脹することと、 650°C における加熱により 13.8 \AA に収縮することから膨潤性緑泥石と考えられる。また 10.2 \AA の反射ピークはエチレングリコール処理によっても残存することから雲母粘土鉱物の反射ピークと考えられる。

大里粘土は馬天粘土と全く同様な X 線パターンを示す。その他両粘土に共通していることは石英、長石、方解石等の非粘土鉱物の存在を粉末 X 線回折により確認できることである。同生粘土は稀塩酸により発泡し、方解石の存在を裏づけている。

新里粘土の 14.2 \AA の反射ピークはエチレングリコール処理によって変化せず、 650°C における加熱により 9.8 \AA に収縮し低角側へ巾広くなるやかに移行することから A1 (層間) パーミキュライトと考えられる。なおこの土壤粘土には A1 (層間) パーミキュライトのほか少量のモンモリナイト、カオリンまたはメタハロイサイトなどの鉱物の存在が報告されている。1)

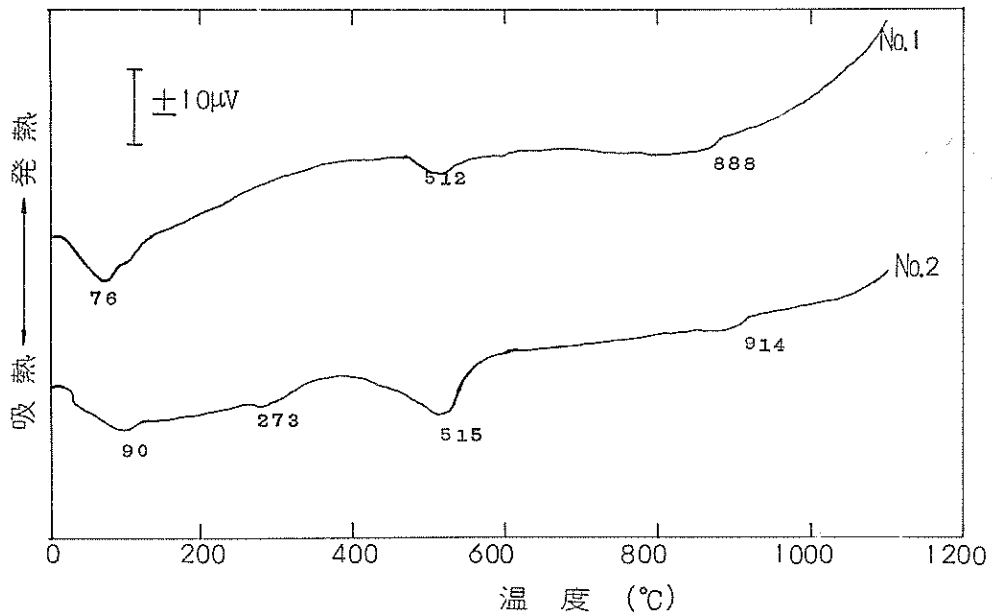
6・2 示差熱分析 (DTA) および熱重量分析 (TG)

X 線回折に用いた 2μ 以下の粘土試料について、マイクロ型示差熱天秤装置を用いて DTA および TG をつぎの条件により同時測定した。

測定条件：昇温速度 $20^\circ\text{C}/\text{min}$ 、試料量 20 mg 、DTA 感度 $\pm 100 \mu\text{V}$ 、TG 感度 20 mg

標準試料 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 、記録速度 $5 \text{ mm}/\text{min}$

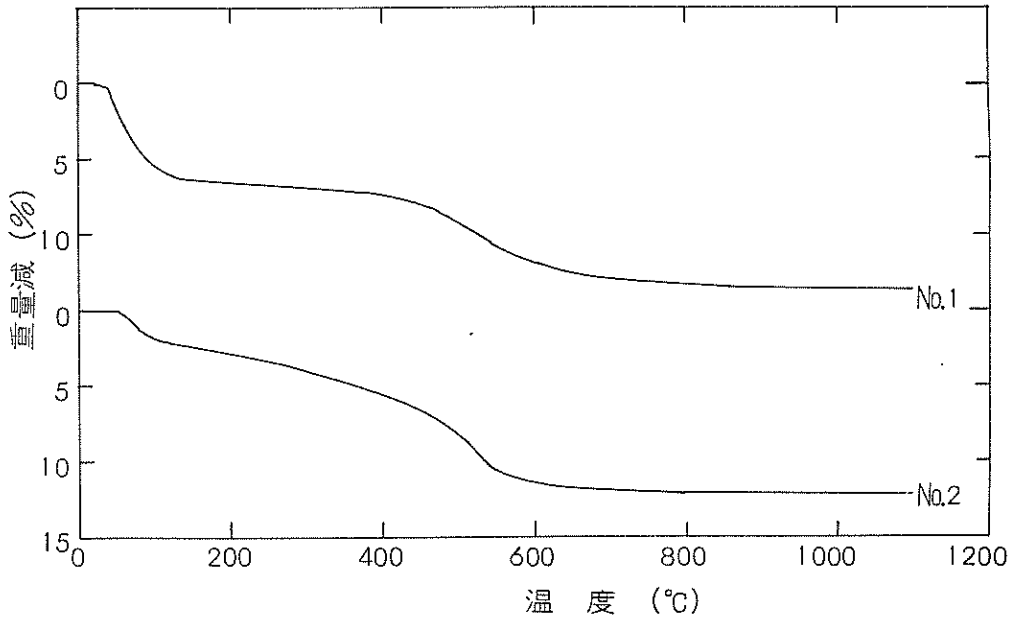
その結果を第 5 図および第 6 図に示す。



測定条件：昇温速度 $20^\circ\text{C}/\text{min}$ 、試料量 20 mg

標準試料 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$

図 5 示差熱分析曲線



測定条件：昇温速度20°C/min, 試料量20mg
標準試料 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$

図6 熱重量曲線

6・3 熱膨張率

2 μ 以下の粘土試量に適量の水を加え練土としたのち20mm×5mm ϕ の丸棒を200kg/cm²の条件で加圧成形し、約1週間風乾して次の条件でマイクロ型熱膨張計でその熱膨張率を測定した。

測定条件：昇温速度5°C/min、荷重10g、TMA感度2500 μ

標準試料 アルミナ、記録速度2.5mm/min

その結果を第7図に示す。

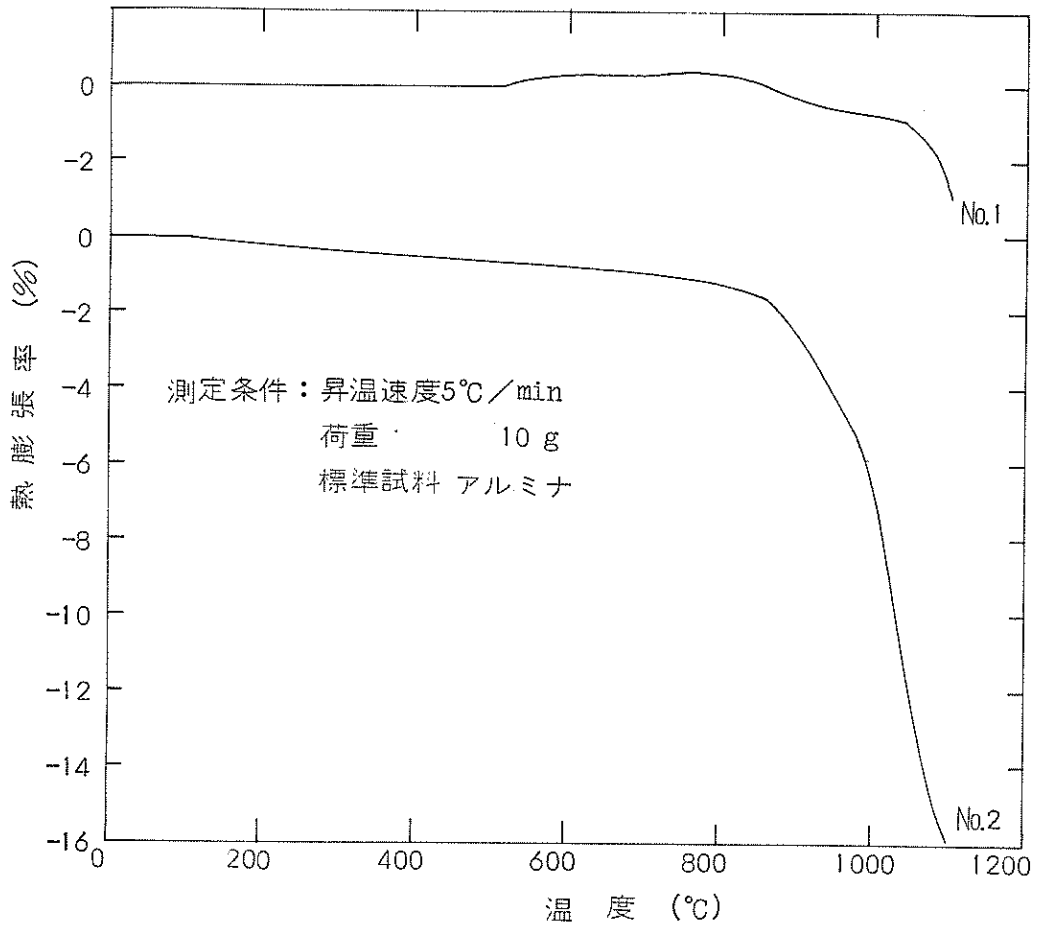


図7 熱膨張曲線

馬天粘土 (No.1) および新里粘土 (No.2) には、両粘土とも80°C~100°C 附近に巾広い吸熱ピークが、また900°C 附近に明瞭ではないがS字形の熱ピークが観測される。初期の吸熱ピークは粘土粒子の附着水の離脱によるものであり、520°C 附近の吸熱ピークは、X線回折の結果と併せ考えて、雲母および緑泥石の結晶水(OH) の離脱によるものと考えられる。900°C 附近におけるS字形の熱ピークは、雲母粘土鉱物、緑泥石あるいはパーキュライトの存在に起因していると考えられるが、この熱ピークはかなり不明瞭なものであってその帰属にはさらに詳細な検討が必要である。

馬天粘土の膨張収縮は500°C まで観測されず、520°C 前後で緑泥石の膨張に起因すると考えられるわずかな膨張があつて、850°C 前後からゆるやかな収縮過程がはじまる。新里粘土は200°C 附近から850°C 附近までのゆるやかな収縮過程を経て900°C 以上になると急激に収縮していくという特徴がある。

7. 荒焼素地坏土の諸性状

現在使用している荒焼素地坏土の調製は、馬天粘土に新里粘土を3割程度配合し、土練機で練土としロクロおよび手ひねり成形用坏土としている。

その荒焼素地坏土について、4・1-a)の焼成条件により焼成し、その焼成諸性状を検討した。その結果を第5表に示す。

第5表 荒焼坏土の焼成性状

乾燥 収縮率	SK6 (OF)						SK7 (OF)						SK8 (OF)					
	色	収縮率	吸水率	気孔率	比み かけ	比か 重さ	色	収縮率	吸水率	気孔率	比み かけ	比か 重さ	色	収縮率	吸水率	気孔率	比み かけ	比か 重さ
%		%	%	%	%	%		%	%	%	%	%		%	%	%	%	%
10.0	黒褐	12.0	14.2	21.8	2.0	1.6	黒褐	12.5	19.3	29.0	2.1	1.5	黒褐	11.3	21.7	31.8	2.1	1.5

荒焼の焼成素地は、SK6 (OF) で黒褐色を呈し、吸水率および気孔率は焼成温度の上昇とともに漸次増加してゆく傾向があり、嵩比重は逆に小さくなってゆく傾向がみられる。これはSK6ですでに発泡現象を起こしていることを示すものであり、またそれは肉眼でも確認できる。

荒焼の成形技法は手ひねりによるロクロ成形である。また焼成は勾配のあるトンネル窯で4日間あぶり3~4時間でたき上げる。ところで荒焼では、製造工程において乾燥亀裂ならびに焼成中または焼成後の亀裂(サメ割れ?)などのトラブルが発生しがちである。これらの原因は、主として馬天粘土と新里粘土間の原料としての諸特性の相違に起因していると考えられる。すなわち、

- ① 新里粘土は粘土分が多く、しかも非晶質の鉄分が多く団粒化する傾向があり、また可塑水量においても馬天粘土とは大きな相違があり混練むらが生じやすい。
- ② 新里粘土の乾燥収縮率は馬天粘土の約2倍もあり、乾燥過程において乾燥ひずみによる亀裂が生じやすい。
- ③ 馬天粘土および新里粘土の焼成性状は、SK6において前者が発泡するのに対し後者はほとんど焼き締まる。荒焼坏土が同温度で発泡する現象は馬天粘土の特性によるものであって、馬天粘土と新里粘土がなじまず個々の特性を助長するにとどまっており、焼成上の欠陥につながっている。これらの欠陥を防止するには、馬天粘土に耐火度の低い多少砂質の粘土を配合することによって解決できると考えられる。なおこの種の粘土には山田粘土、喜名粘土等がある。

8. ま と め

荒焼原料である馬天粘土、大里粘土および新里粘土の諸性状について種々検討の結果つぎのような

知見が得られた。

- ① 馬天粘土と大里粘土とは諸性状の検討の結果から同質のものともみなしうる。
- ② 馬天粘土と新里粘土とは生性状に特性の違いがみられる。とくに新里粘土は粘土分がかなり多く、可塑性値、乾燥収縮率も高い。
- ③ 馬天粘土は鉄分、アルカリおよびアルカリ土類金属が多く耐火度が低い。新里粘土は鉄分、アルミナ分が多く、耐火度が高い。
- ④ 馬天粘土はSK6（1,200℃）で発泡性現象を起こすが、新里粘土は著しく収縮して焼き締まる。
- ⑤ 馬天粘土の鉱物組成は、緑泥石、雲母などの粘土鉱物と石英、長石、方解石などの非粘土鉱物からなり、新里粘土はAl（層間）パーキョライト、雲母などの粘土鉱物が主体となっていると考えられる。
- ⑥ 荒焼粘土は製造上亀裂等の欠陥を生じているが、これらの原因は主として両原料の諸性状の相違に因ずくものと考えられる。

※ 謝辞 該試験研究を実施するために可塑性試験機等の製作に協力していただいた当場機械金属室国吉研究員並に比嘉（真）研究員に謝意を表します。

文 献

- 1) 渡嘉敷義浩ほか：ジャーガルとその母材に関する研究、琉球大学農学部学術報告第22号別刷

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

T E L (098)929-0111

F A X (098)929-0115

U R L <https://www.pref.okinawa.lg.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。