

壺屋上焼原料の特性について

窯業室 照 屋 善 義

まえがき

伝統的工芸品である壺屋焼は製造技術の面から上焼と荒焼に分類される。両者の違いは使用する原料粘土の特性と関係があり、上焼が1,200℃前後で焼成されるのに対し荒焼は約1,070℃の低火度の原料を使用していることである。

上焼原料として伝統的に利用している陶土は喜名粘土、山田粘土、石川粘土、前兼久粘土、古我知粘土および喜瀬粘土であって読谷村や恩納村、名護市などに賦存している。

これらの粘土はその粘土の特徴あるいは製品の種類によって単味および配合菜地としてまたは化粧土として使い分けているが、それぞれの粘土を利用するにあたっては各粘土の特性についてあらかじめ把握しておくことが製造技術上重要なことであると考えられる。

これらの粘土については窯業原料としての調査研究報告やその他の報告がある以下では特に壺屋上焼原料としてまとめて示し既報の資料を補完しながら各粘土の特徴や諸性質について検討を加えた。

なお本研究の実施は名古屋工業技術試験所において研修の機会を与えられその間同6部金岡繁人氏に種々ご指導をいただいた、また地質調査所鉱床部藤井紀之氏は従前から今日まで沖縄の陶土賦存調査に多大の関心を示され指導されてこられたことに、併せて深謝の意を表します。

1. 原料の産状と賦存地域の地質概要

図-1-1(1)から図-1-1(3)に原料の柱状図と産状について示した。賦存地域の概要はつぎのとおりである。

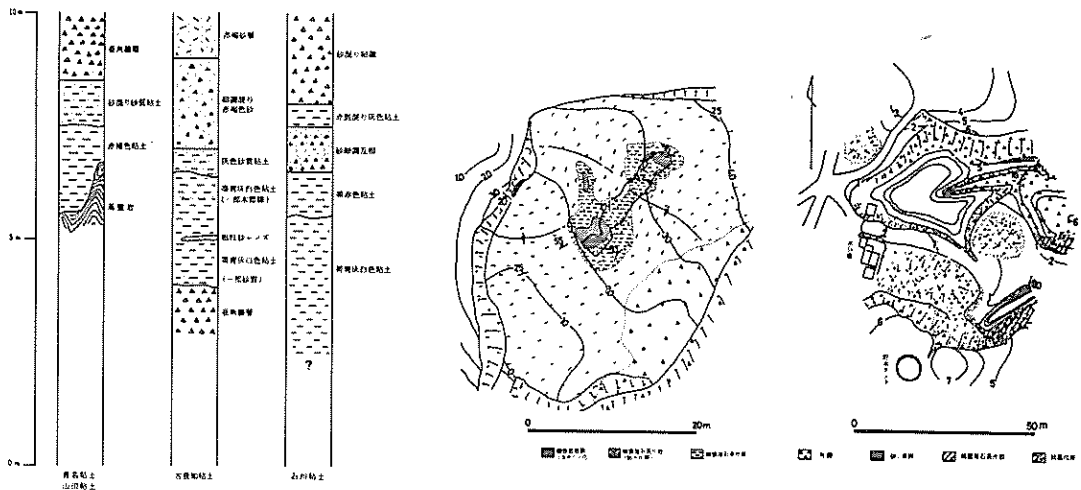


図-1-1 堆積成粘土柱状図

図-1-2 前兼久粘土採掘場鉱床図

図-1-3 喜瀬粘土採掘場鉱床図

註：いずれも藤井原図

(1) 喜名粘土と山田粘土

天願断層付近の読谷村喜名、同山田に賦存する水酸化鉄に富む赤色粘土である。両粘土は紫地原料として重要な粘土であるが、基盤岩の摺曲凹地に小規模に賦存する堆積成粘土である。粘土層は細礫混りであるが山田粘土は水鏡によって微砂質を含むことが多いが、喜名粘土は水鏡によって細い坏土とすることができる。(図-1-1)

(2) 石川粘土

石川市北方仲泊方向の国道沿に現稼行場がある。同粘土は基盤岩直上部に堆積し国頭礫層で覆われ砂質粘土と互層を成す微褐白色粘土である。(図-1-1)

(3) 前兼久粘土

同粘土は沖縄本島に賦存する唯一の耐火粘土で法定鉱物でもある。同タイプの粘土は恩納村富着東方のゴルフ場内(壺屋稼行場)をはじめ仲泊インター割切り場、石川ゴルフ場西方、最近では仲泊部落東方に比較的規模の大きい鉱床が著者らによって発見された。

これら粘土鉱床の産状は酸性岩である岩脈が絹雲母石英片岩(千枚岩)に貫入し、それが熱水変質作用によって粘土化したもので紅、黄、白色のまだら色の粘土層である。鉱床の規模や連続性の面では劣る。(図-1-2)

(4) 古我地粘土

名護市字古我地部落西方に極地的に賦存する帯青灰白色粘土である。赤色または細礫混りの砂層で覆われ砂質粘土をともなう。また層状の鬼板を挟むと同時に一部炭質や粗粒砂レンズを随伴することもある。(図-1-1)

(5) 喜瀬粘土

名護市の喜瀬部落入口にある海中公園施設内において以前からかなり採掘されてきている。同鉱床は亜炭層を挟有する砂層およびその上部に厚く発達する角亜礫層に覆われた絹雲母石英片岩が風化作用によって粘土化して帯留したものでいわゆる風化残留成粘土である。(図-1-3)

2. 原土の成形性と乾燥性状

上焼原料の生性状として原土の可塑性と乾燥性状について検討した。試料は原土をボールミルで24時間粉碎後適当な水分量に調整したのち練土とし試験に供した。

2・1 可塑性

原土の成形性を検討するためペッファーコーン法により可塑性指数、アッターベルグ法により液性限界、またJISの方法により塑性限界をそれぞれ測定した。試験結果を図-2と図-3に示した。

それぞれの原土について

図-1より H_0/H_1 が3.3のときの含水率=可塑性指数

図-2の流動曲線より25回における含水率=液性限界

JISの方法による塑性領域における含水率=塑性限界

液性限界-塑性限界=塑性指数

としてそれぞれの値を算出した。表・1にその結果を示した。

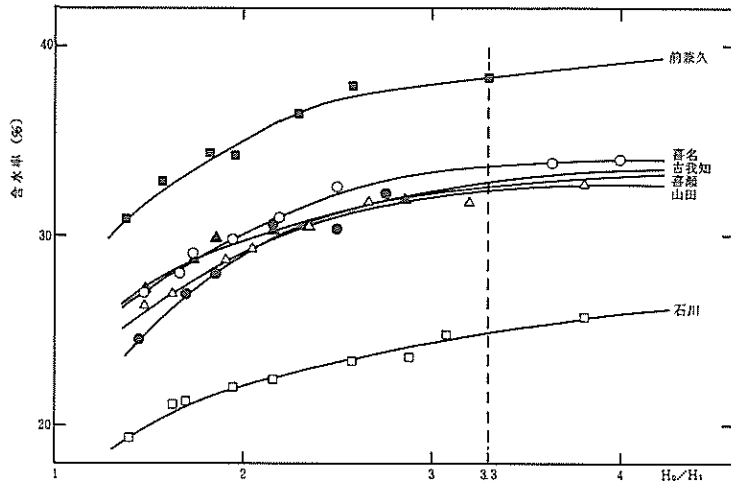


図-2 粘土のペッファーコーン値と含水率の関係

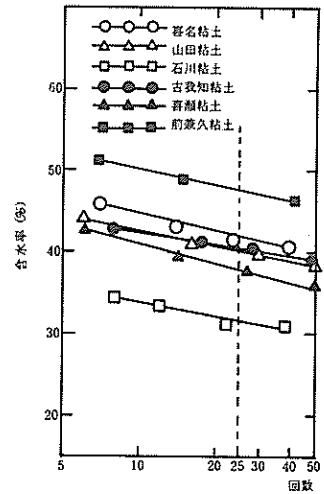


図-3 粘土の流動曲線

表-1. 原土の性質に関する特性値

試料名	可塑性指数(%)	液性限界(%)	塑性限界(%)	塑性指数(%)
喜名粘土	33.7	42.5	25.8	16.7
山田粘土	32.4	40.5	26.3	14.2
石川粘土	25.0	21.8	19.1	12.7
前兼久粘土	38.4	48.5	29.7	18.8
古我知粘土	32.8	38.8	26.1	12.7
喜瀬粘土	32.6	50.3	32.7	27.6

ペッファーコーン法による成形性の範囲は H_0/H_1 の値が2.5~4.0の範囲であるとされているが、可塑性指数においては前兼久粘土が大きく、石川粘土は最も小さい、また両粘土は他の粘土と比較して特性値に差が見られるのが特徴的である。

図-3の流動曲線はペッファーコーン値と同じ傾向を示している。また粘土の塑性性状を示す含水量の範囲すなわち塑性指数は喜瀬粘土が最も大きく、石川粘土と古我知粘土においてはその値が小さく含水率の低い範囲においても塑性を示す傾向がある。

2・2 乾燥性状

練土で $5 \times 20 \times 120$ mmの粘土板を作り室内で乾燥し経時変化に伴う含水減量と収縮率の変化を求めた。その結果を図-4に示した。

練土の収縮率と含水減量の関係はある値までは直線的に変化するが、その後は収縮率は一定となり水分だけが時間とともに減少していくことを示している。

含水率の異なる練土において収縮率が一定となるときに含水減量率(変曲点)とその点における含水率を半乾燥含水率(?)として表-2に示した。

沖縄では化粧掛や施釉工程において生掛けする。そのときの乾燥を半乾燥と言われているが、図-4の変曲点は半乾燥の状態を示しているものと考えられる。

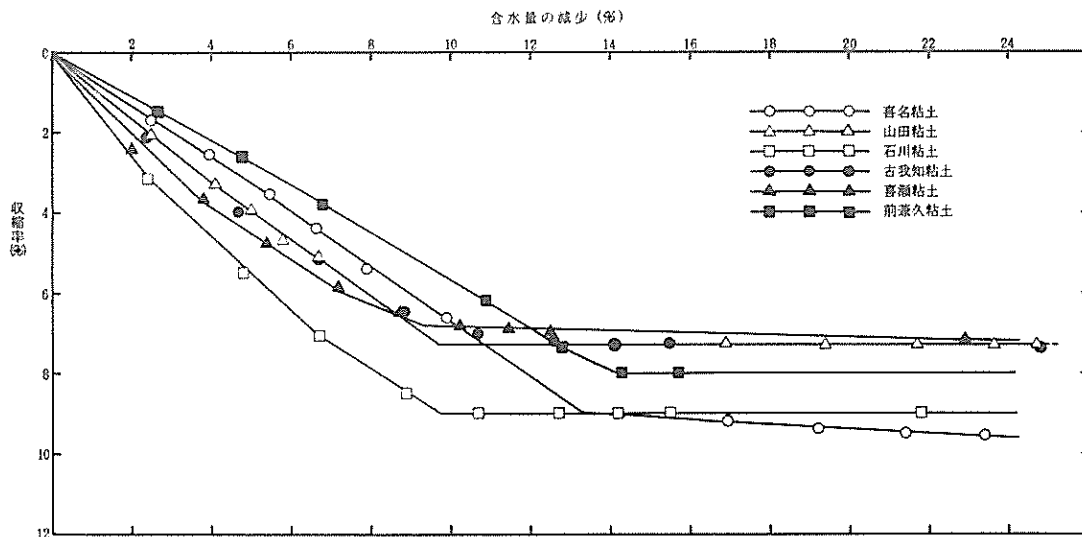


図-4 練土の含水量の減少と収縮との関係

表-2. 原土の乾燥収縮と含水減量

試料名	練土の含水率(%)	乾燥収縮率(%)	含水減量(%)	半乾燥含水率(%)
喜名粘土	28.3	9.0	13.3	15.0
山田粘土	26.0	7.3	9.7	16.3
石川粘土	21.5	9.0	14.3	7.2
前兼久粘土	30.7	8.0	14.3	16.4
古我知粘土	25.9	7.3	9.7	16.2
喜瀬粘土	27.1	6.8	9.4	17.7

乾燥収縮の大きい喜名や石川粘土は含水減量が大きく、喜瀬粘土は収縮率が最も小さい。半乾燥含水率は石川粘土が7.2%と極端に低い値を示すのに対し、他の粘土は15~16%程度である。

3. 化学組成と耐火度

表-3に原料粘土の化学組成と耐火度を示した。

表-3. 原土の化学組成と耐火度

原料名	Si O ₂	Ti O ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	MnO	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅	IGLoss	耐火度 SK	溶倒温度 (°C)
粘土 喜名	61.66	0.52	19.75	6.11	0.02	tr.	0.71	0.08	2.59	0.01	8.52	17	1,479
山田	69.11	—	16.32	5.98	—	tr.	0.78	0.29	0.27	—	7.73	15	1,436
石川	71.89	1.01	16.12	1.89	0.00	0.17	0.41	0.13	1.69	—	5.77	26~	1,580
前兼久	61.49	1.10	24.99	1.12	0.00	0.02	0.31	0.23	1.46	—	8.57	33	1,730
古我知	62.16	0.97	19.34	6.14	0.01	0.08	0.77	0.43	2.90	—	6.65	14	1,414
喜瀬	58.48	0.01	26.26	1.76	tr.	tr.	0.68	0.19	4.94	—	7.14	28 ⁺	1,630

石川粘土、前兼久粘土および喜瀬粘土は鉄分が低い、前兼久粘土と喜瀬粘土はアルミナ分が高い。他の粘土は鉄分やアルカリ金属分も高く耐火度にも影響を与えていると考えられる。前兼久粘土はSK

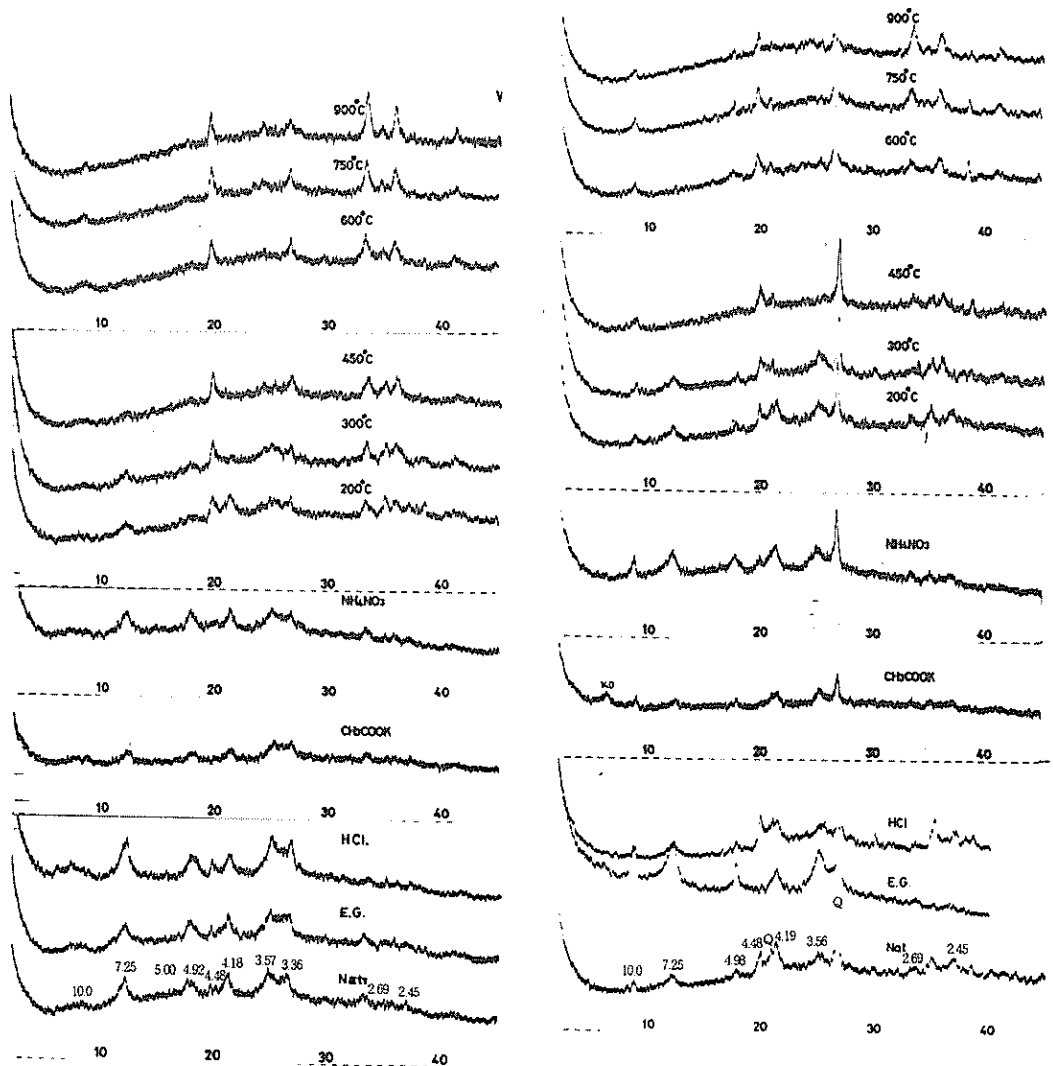
33# の耐火粘土であるが他県地方の耐火粘土と比較して Al_2O_3 分が 24.98% と低い値を示している。

4. 鉱物組成

原土中の粘土鉱物を同定するため 2μ 以下の粒度分を集め X 線回折、熱分析、赤外吸収反射スペクトルの測定を行なった。

4・1 X 線回折

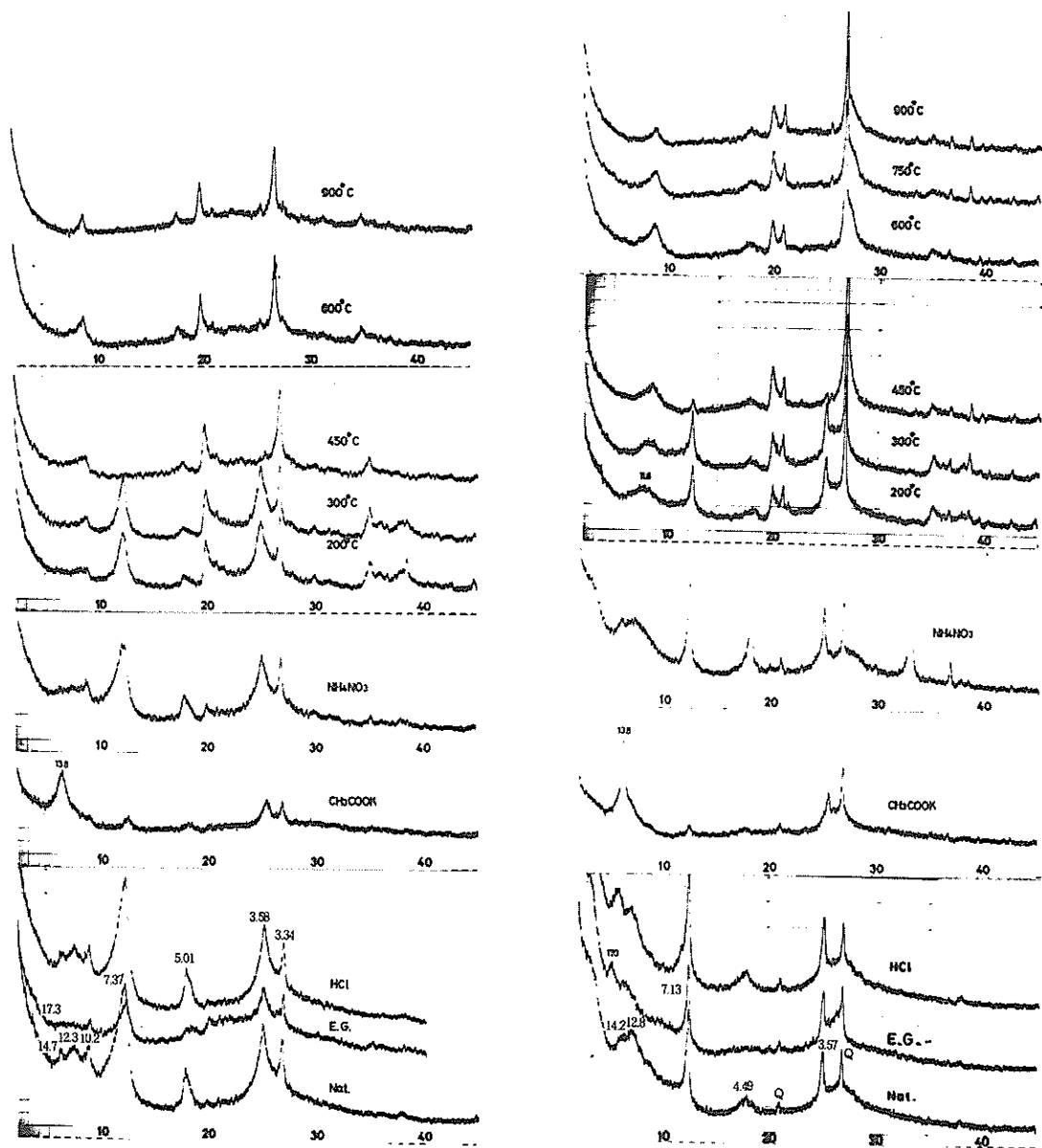
各粘土試料について定方位反射、薬品および熱処理を行ない X 線回折を行なった、その結果を図-5-(1)~図-5-(6)に示した。



(1) 喜名粘土

(2) 山田粘土

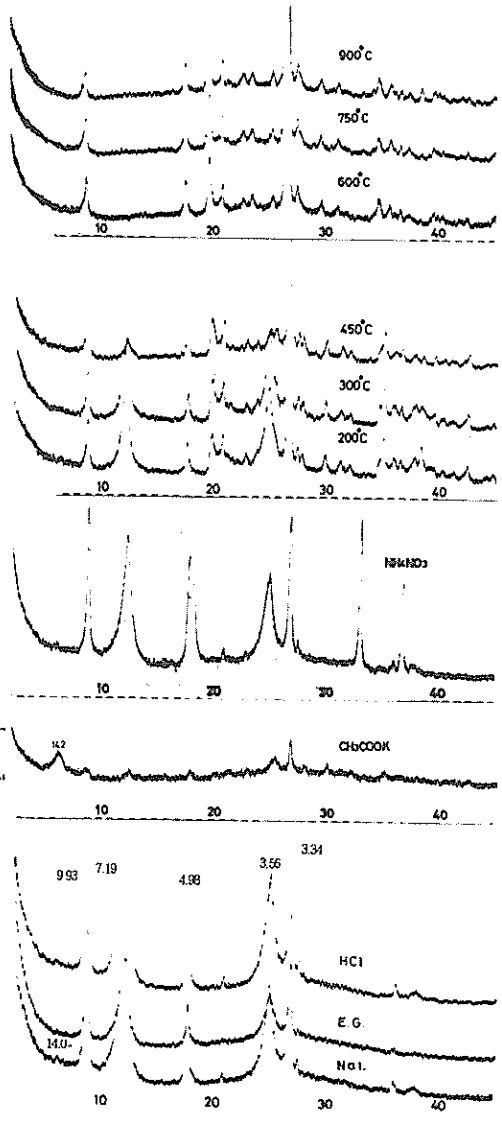
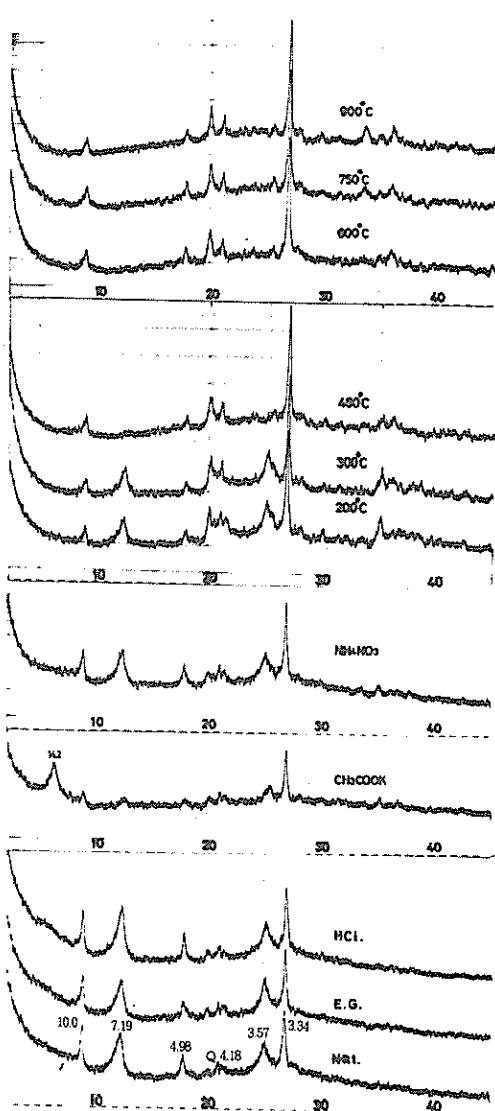
図-5 X 線回折パターン



(3) 石川粘土

(4) 前兼久粘土

図-5 X線回折パターン



(5) 古我知粘土

(6) 喜瀬粘土

図-5 X線回折パターン

図よりそれぞれの粘土の回折ピークと薬品および熱処理後のピークの変化などを表-4にまとめて示した。

表-4. 原料粘土の薬品および熱処理によるX線回折ピークの変化

	Nat.	E.G.	HCl	CH ₃ - COOK	NH ₄ NO ₃	200 °C	300 °C	450 °C	600 °C	750 °C	900 °C
喜名粘土	10.0 $\overset{X}{\text{Å}}$	—	—	—	—	—	—	—	S	S	S
	7.25	—	—	—	—	W	W	X	X	X	X
	4.18	—	—	—	—	—	W	X	X	X	X
山田粘土	10.0	—	—	—	—	—	—	—	S	S	S
	7.25	—	—	14.0	—	—	—	X	X	X	X
	4.19	—	—	—	—	W	X	X	X	X	X
前兼久粘土	14.2	17.0	—	X	—	X	X	X	X	X	X
	12.8	—	—	—	—	11.6	10.5	10.4	10.2	10.0	10.0
	7.13	—	—	13.8	—	W	W	VW	X	X	X
石川粘土	14.7	17.3	—	—	—	X	X	X	X	X	X
	12.3	X	—	—	—	X	X	X	X	X	X
	10.2	—	—	—	—	—	—	—	S	S	S
	7.37	—	—	13.8	—	W	W	X	X	X	X
古我知粘土	10.0	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	7.19	—	—	14.2	—	W	W	X	X	X	X
	4.18	—	—	—	—	—	W	X	X	X	X
喜瀬粘土	14.0	—	—	—	—	X	X	X	X	X	X
	9.93	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	7.19	—	—	1.42	—	W	W	VW	X	X	X

— 変化なし X:消失 W: weak VW: very weak S: strong

以上の結果から各粘土試料の10 $\overset{\text{Å}}{\text{Å}}$ 鉱物は薬品処理によって変化を示さず加熱処理によって次第にピークが強くなることから雲母粘土鉱物と考えられる。7 $\overset{\text{Å}}{\text{Å}}$ の一連の鉱物は酢酸カリによって14 $\overset{\text{Å}}{\text{Å}}$ 付近に膨張し、また450 $\overset{\text{°C}}{\text{°C}}$ 加熱またはそれ以上の温度によってピークが弱まるかもしくは消失するところからハロサイトか結晶度の小さいカオリン鉱物の存在が推定される。

前兼久粘土の14 $\overset{\text{Å}}{\text{Å}}$ 鉱物はエチレングリコール処理によって膨張し、HCl処理によって消失せず200 $\overset{\text{°C}}{\text{°C}}$ の熱処理によって消失するなど複雑な変化を示す。また同粘土の低角側のX線回折パターンから判断して長周期粘土の存在の可能性がある。12 $\overset{\text{Å}}{\text{Å}}$ 鉱物は加熱処理によって高温側へ縮少していくことからAl(層間)パーミキュライトの存在が推定される。

石川粘土の14 $\overset{\text{Å}}{\text{Å}}$ 鉱物はHCl処理によって消失せずモンモリロナイトかパーミキュライトの可能性があり、また12 $\overset{\text{Å}}{\text{Å}}$ 鉱物は結晶度の低いモンモリロナイトの存在が推定されるが、これらのことについてはさらに検討する必要がある。

喜名、山田および古我知粘土の4.18 $\overset{\text{Å}}{\text{Å}}$ のピークはゲータイトの存在を示唆していると考えられる。

4・2 試料の示差熱分析および加熱重量変化

試料の示差熱分析と熱重量変化の測定結果を図-6と図-7に示した。

両曲線から試料の主な吸熱および発熱ピーク温度ならびに1,050 $\overset{\text{°C}}{\text{°C}}$ における重量減量を求め表-5に示した。

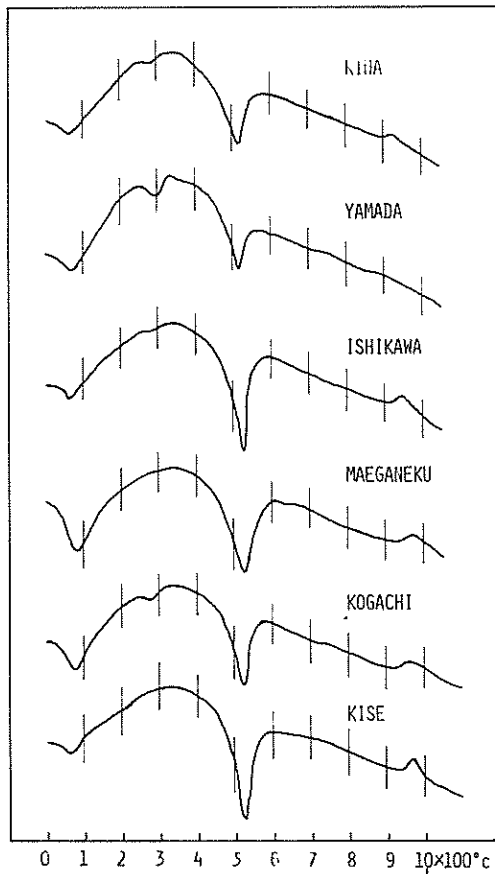


図-6 試料の示差熱分析曲線

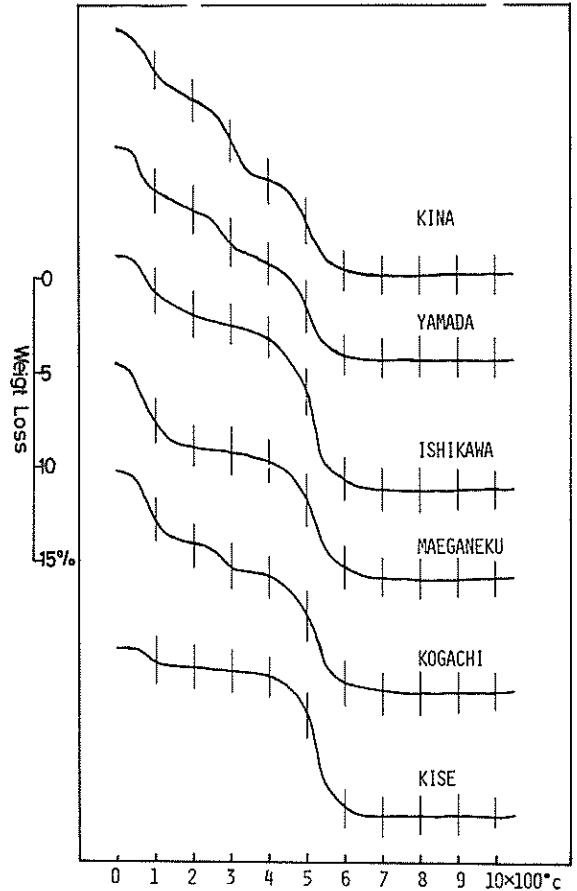


図-7 試料の加熱重量変化曲線

表-5. 試料のDTAおよびTG測定結果

	50℃～100℃ 吸熱ピーク	200℃～300℃ 吸熱ピーク	500℃～600℃ 吸熱ピーク	900℃～1000℃ 発熱ピーク	1,050℃における 減量%
喜名粘土	66℃ 小	288℃ 小	516℃ 中	915℃ 小	13.03
山田粘土	69 小	300 小	516 中	912 小	11.33
前兼久粘土	81 中	— —	528 大	960 小	11.54
石川粘土	60 小	270 小	522 大	936 小	12.27
古我地粘土	75 中	285 小	525 中	930 小	11.79
喜瀬粘土	63 小	— —	528 大	969 小	8.92

いずれの粘土も 50℃～100℃ 間に粘土表面の付着水または層間水の離脱によると思われる吸熱ピークが現われる。喜名、山田、古我地の各粘土は 300℃付近にゲータイトの脱水によるものと思われる小さな吸熱ピークが存在する。520℃付近の主な吸熱ピークは粘土鉱物の結晶水の離脱によるものと考えられるが、900℃から1000℃にかけて粘土の違いによって910℃台（喜名、山田粘土）930℃台（石川、古我知粘土）、960℃台（前兼久、喜瀬粘土）に小さな発熱ピークを示す。また1050℃における熱重量減重は11%から13%の範囲にあるが、喜瀬粘土は他の粘土と比較して

低く10%以下であるのが特徴的である。

4・3 赤外吸収、反射スペクトル

試料の作成方法はガラススライド法に準拠して作成した。各粘土のOH領域における赤外吸収スペクトルおよび反射スペクトルを図-8に示した。

図の左方は赤外吸収スペクトル、右方が反射スペクトルを示している。

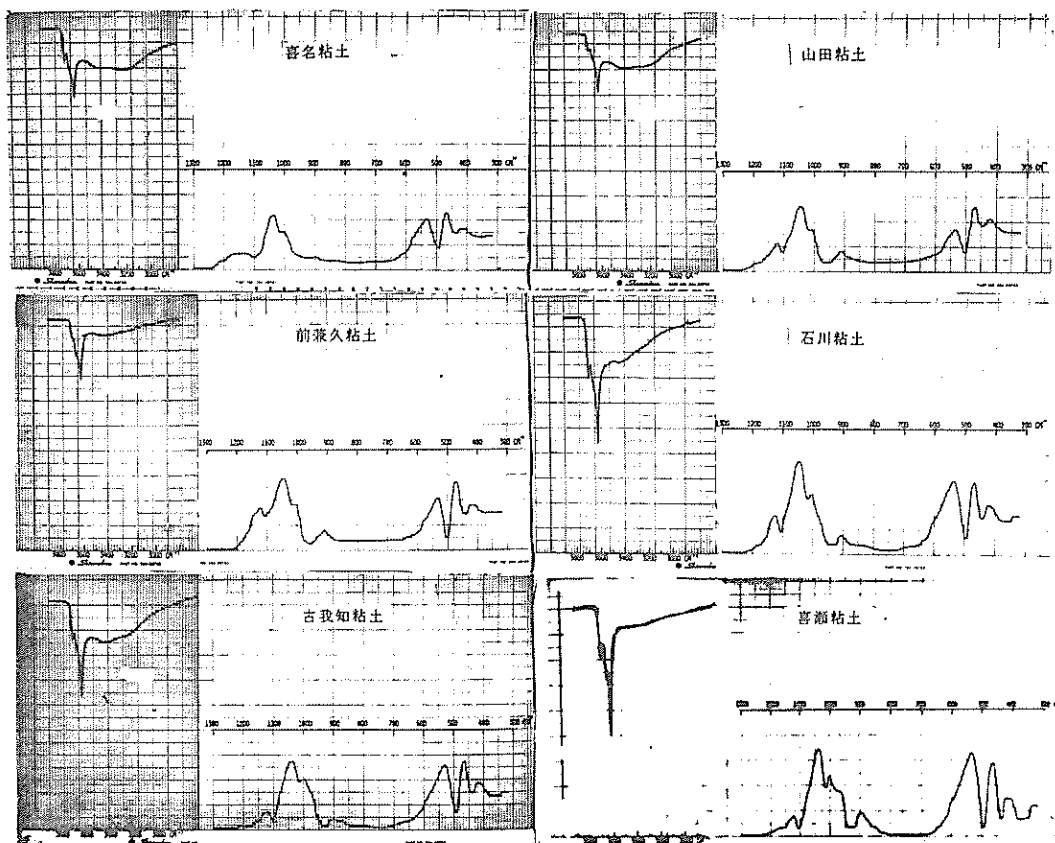


図-8 試料の赤外吸収と反射スペクトル

図から各試料の赤外吸収および反射スペクトルの特徴線を表-6にまとめて示した。

表-6. 試料の赤外吸収および反射スペクトルの特徴線

	赤外吸収スペクトル				赤外反射スペクトル						
	L	M ₁	M ₂	R	領域 I			領域 II			
喜名粘土	3,700 ^{CH-1}	3,660 ^{CH-1}		3,620 ^{CH-1}		1,040 ^{CH-1}	1,000 ^{CH-1}		530 ^{CH-1}	465 ^{CH-1}	
山田粘土	3,700			3,620	1,125	1,045	1,005	910	535	470	420
前兼久粘土	3,700			3,625	1,120	1,040	1,000	910	530	475	415
石川粘土	3,700			3,625	1,125	1,050	1,005	910	535	470	420
古我地粘土	3,700			3,620	1,120	1,040	1,000	910	530	465	415
喜瀬粘土	3,690		3,640	3,612	1,120	1,040	1,000	900	535	465	415

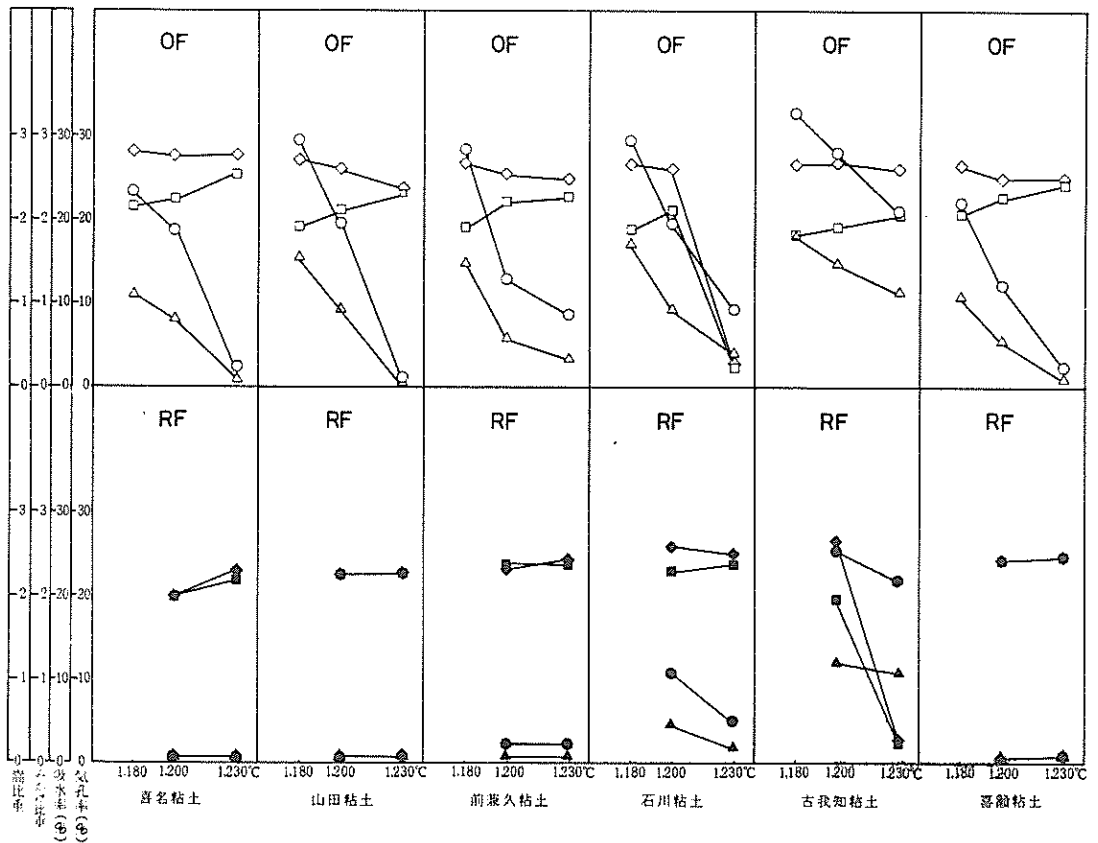
カオリン鉱物のOH領域の赤外吸収は $3,700\text{ cm}^{-1}$ 、 $3,670\text{ cm}^{-1}$ 、 $3,650\text{ cm}^{-1}$ 、 $3,625\text{ cm}^{-1}$ 付近に現われカオリナイトは $3,700\text{ cm}^{-1}$ (左側) と $3,625\text{ cm}^{-1}$ (右側) の吸収がシャープとなり、その中間に $3,670\text{ cm}^{-1}$ と $3,650\text{ cm}^{-1}$ の二つの弱い吸収スペクトルを持つのが特徴的である。結晶度の低いハロイサイトなどは、左右の吸収スペクトルは明瞭に現われるが中間の吸収ピークは弱いかまたは殆んど現われないとされている。

上焼原料の赤外吸収スペクトルは $3,700\text{ cm}^{-1}$ と $3,620\text{ cm}^{-1}$ 付近に明瞭なピークが現われ $3,700\text{ cm}^{-1}$ の吸収は弱く $3,620\text{ cm}^{-1}$ に強い吸収を示している。石川と古我知粘土には $3,450\text{ cm}^{-1}$ 付近にブロードな弱い吸収スペクトルが見られる。これらの赤外吸収スペクトルはいずれの粘土もハロイサイトの存在を示さしていると考えられる。また、赤外反射スペシャルと粘土鉱物との帰属については明確な情報を与えていない。

5. 焼成性状

原料の粉末試料を 径20mmのペレット状に金型成形し酸化焼成は電気炉で還元焼成は重油炉により所定の温度で焼成した。焼成物は煮沸法により気孔率、吸水率嵩比重、みかけ比重を測定し算出した。それぞれの測定結果を図-9に示した。

図-9 原料の焼成性状



喜名、山田、および喜瀬粘土は、1,200℃ の酸化雰囲気では焼結せず、1,230℃ ではじめて焼き締まる傾向を示す、またこれらの粘土は還元雰囲気では酸化雰囲気より低い1,200℃ で焼結する。

前兼久および古我知粘土は酸化雰囲気では1,230℃においても焼結せず、同温度で還元雰囲気においてはじめて焼き締まる傾向を示す。

6. まとめ

伝統的工芸品である壺屋上焼原料について検討した結果つぎのことがわかった。

- (1) 上焼原料を成因的に分類すると喜名、山田、石川および古我知粘土は堆積成粘土、前兼久粘土は熱水成粘土、喜瀬粘土は風化残留成粘土である。
- (2) ペツファーコーン法、アッターベルグ法等による各原料の塑性に関する特性値は、前兼久粘土が最も可塑性がよく石川粘土は可塑性が小さい。その他の粘土は同程度の可塑性を示す。
- (3) 練土の乾燥過程における特性から半乾燥時の含水率を推定することができた。石川粘土の半乾燥含水率は7.2%と低い値を示すがその他の粘土では15～16%程度である。
- (4) 原料の可塑性試験や乾燥特性の結果から喜名、山田、喜瀬、および古我知粘土は前兼久粘土や石川粘土とはなじみにくい粘土であることを示している。
- (5) 石川、前兼久および喜瀬粘土は鉄分が低く焼成色においても白色系の素地となる。その他の粘土は鉄分に富み有色素地である。
- (6) 前兼久粘土は唯一の耐火粘土であるが、その他の粘土は概して耐火度が低い。
- (7) 原料の鉱物組成はカオリン鉱物、雲母粘土鉱物を主成分に石英や長石などの非粘土鉱物を含む、褐色粘土中にはゲータイトなどの存在が認められる。
- (8) 原料の焼成性状においては酸化雰囲気では喜名、山田および喜瀬粘土が焼結しやすいのに対し石川、前兼久および古我知粘土は焼結性が悪い。還元雰囲気では酸化雰囲気より低い温度で焼結するが石川、前兼久および古我知粘土は酸化雰囲気と同様焼結性は良くない。

あとがき

壺屋上焼原料の特性として生性状、化学組成、鉱物組成、焼成性状等についてまとめて述べたがこれらは壺屋のみならず沖縄の陶器業界全般の原料特性とみなすことができる。

沖縄の焼き物の特徴は原料の特性をうまく生かし、使いこなしているところにある。坯木調整、化粧土の使い方、化粧掛のタイミング等原料の特性とかわる問題は多い。

今後はこれらの原料特性を生かし製造技術の向上が図られるよう引き続き検討を重ねたい。

参考文献

林宏、松本秀夫、高木弘義、西山五郎（1964）窯業原料としての沖縄産粘土とけい石、名工試報告、Vol. 13、No. 9、P 359～365、P 34～49

照屋善義、仲村三雄、宜野座俊夫（1974）

陶器窯業実態調査報告書、沖縄県工業試験場

照屋善義、仲村三雄、宜野座俊夫（1974）

沖縄本島の窯業原料とその性状について（第1報）、沖縄県工業試験場業務報告、
P 66 ~ 78

藤井紀之、（1975）、沖縄の陶土を訪ねて、地質ニュース 250、 P 34 ~ 49

照屋善義、仲村三雄、宜野座俊夫（1975）

沖縄本島の窯業原料とその性状について（第2報）、沖縄県工業試験場業務報告、
P 62 ~ 76

宜野座俊夫、（1975） 石川粘土、喜瀬武原粘土の利用と諸性状、沖縄県工業試験場業務報
告、 P 77 ~ 87

渡嘉敷義浩、（1976） 壺屋焼陶器の原料中の粘土鉱物について、琉球大学農学部学術報告
Vol. 23 P 154 ~ 164

照屋善義、仲村三雄、宜野座俊夫、照屋輝一（1977）

窯業原料の利用開発に関する研究、昭和51年度中小企業庁技術開発費補助事業成果普及
講習会用テキスト P 91 ~ 120

藤井紀之、照屋善義、仲村三雄、宜野座俊夫（1978）

沖縄島の粘土資源（未発表）

加藤悦三、金岡繁人、稲垣貞子（1977）

名工試報告、Vol. 6、 Na 6

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。