

## 県産原料による釉薬の開発(1)

窯業室 与 座 範 弘  
花 城 可 英  
宜野座 俊 夫  
照 屋 善 義

### 1. はじめに

県内の陶磁器製造業では、素地、釉薬とも主として地元産する土石や鉱物、その他を原料として活用し、特徴ある製品を製造している。釉薬原料としては具志頭白土、シルグスイのもと(消石灰ともみがらの混焼物)、喜瀬粘土が量的に多く使われている。しかし、もみがらは稲作の減少とともに本島内ではほとんど供給されず、伊是名島などの離島で産出するもみがらを使用している状況にある。また、具志頭白土、喜瀬粘土も量的に制約されていることから、これらに代わる新規の釉原料を開発する必要があると考えられる。

そこで、本研究では釉原料としては殆ど未利用の伊武部白土や琉球石灰岩及び前兼久粘土などに着目し、原料の基礎性状および配合試験、焼成温度や焼成雰囲気の違いによる釉性状について試験したので、その結果について報告する。

### 2. 試料の採取地と特徴

試料の採取地を図1に示す。恩納村には比較的広い範囲にわたって石英斑岩、花崗斑岩などの風化物が賦存しており、風化の度合によって黒雲母結晶が残っているものや粘土化の著しいものまで様々な形態が認められる<sup>1)</sup>。伊武部白土はその風化物の一部で、恩納村伊武部で採取した。試験に供した試料は白色で黒雲母結晶が認められず、比較的硬いために形がくずれにくく、可塑性に乏しい、等の特徴がある。

琉球石灰岩(コーラル)は新生代第4紀の海成堆積物で、本島では中南部に大量に賦存している。試験に供した石灰岩は読谷村楚辺で採取したもので、淡黄色を呈し硬質である。この石灰岩は地質年代的に琉球石灰岩の中の読谷石灰岩に区分され、従来より路盤材や石材として使用されている<sup>2)</sup>。

前兼久粘土は酸性貫入岩が熱水変質を受けてできた淡黄色の粘土で、恩納村谷茶で採取した。従来は素地土や耐火粘土として使用されている。

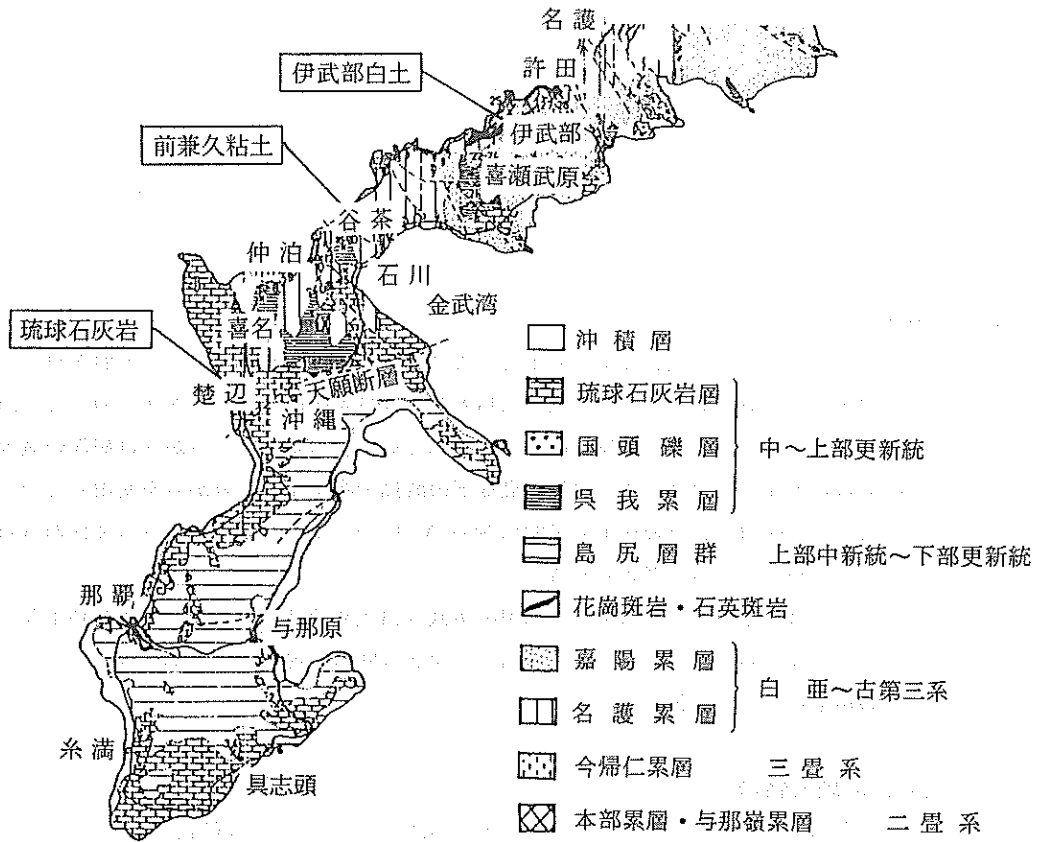
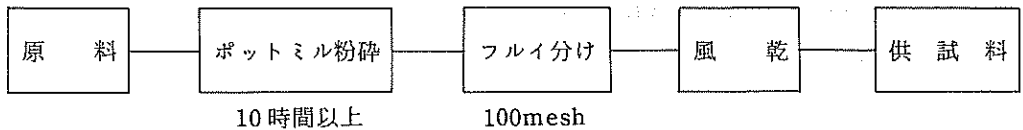


図1 試料の採取地

### 3. 実験方法

#### 3.1 原料の処理と基礎性状

原料の処理と基礎性状試験の方法を以下に示す。



○化学組成……………蛍光X線定量法により測定した。

○耐火度……………耐火度測定用酸素プロパン炉（東工試式）により JIS M 8512 に準じて測定した。

○X線回折……………Cu 管球を用い、20 mA、30 kV の条件で測定した。

### 3.2 配合試験と試験体の作成

配合試験では伊武部白土、琉球石灰岩、前兼久粘土をそれぞれ伝統的釉原料である具志頭白土、シルグスイのもと、喜瀬粘土に代わる原料として位置づけた。各原料は、図2の三角座標を用いて伊武部白土30%~90%、琉球石灰岩10%~70%、前兼久粘土0%~60%の範囲で配合割合を求め、調配合を行った。

試験体は壺屋製土工場の陶土（赤土素地）および石垣産原料による磁器素地を使用し、35mm×45mm×8mmの平板を押型成形した。赤土素地の場合は、試験体の半分を喜瀬粘土で化粧した後に素焼して用いた。

調配合した各試料は攪拌擂潰機で20分間混合攪拌し、水を加えて適当な濃度に調整し、試験体に施釉した。

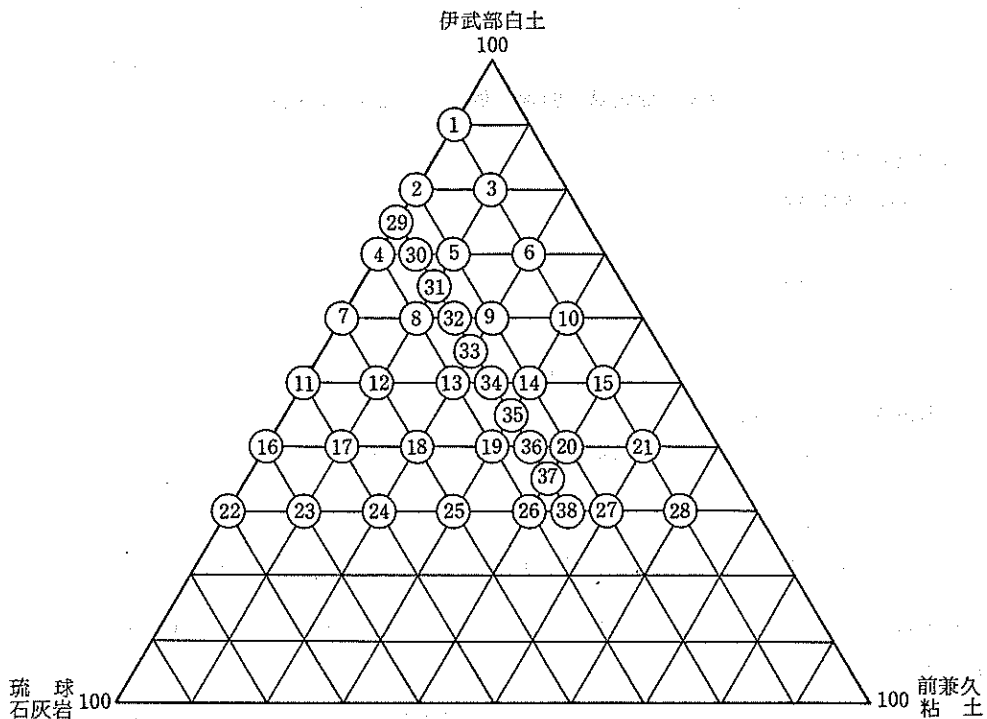


図2 釉薬原料の配合割合番号と割合

### 3.3 焼成

施釉後の試験体はL. P. G窯(0.2 m<sup>2</sup>)を使用し、1,200℃、1,230℃、および1,250℃の各温度で焼成した。赤土素地は酸化焼成および還元焼成、磁器素地については還元焼成のみを行い、還元を開始温度は900℃であった。焼成曲線の例(1,230℃)を図3に示す。

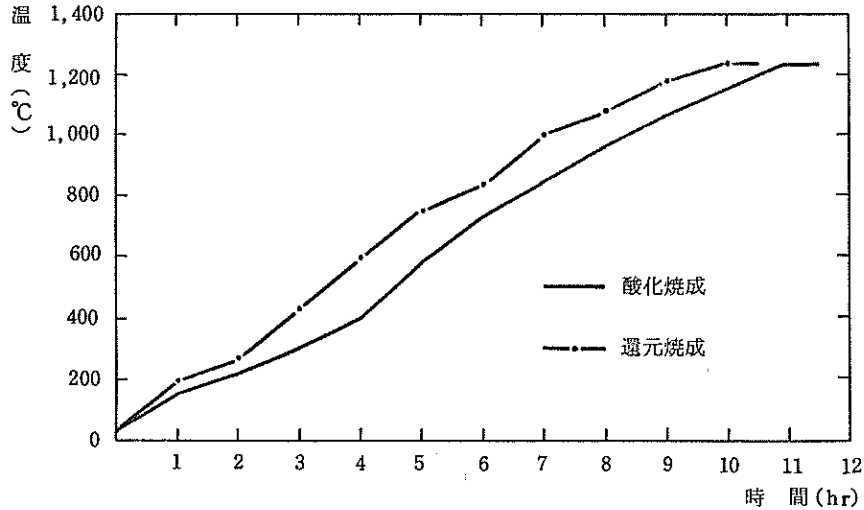


図3 焼成温度曲線(例 1,230℃焼成)

## 4. 結果及び考察

### 4.1 試料の基礎性状

試料と伝統的釉原料(具志頭白土、シルグスイのもと、喜瀬粘土)の化学組成と耐火度を表1<sup>3)</sup>、試料のX線回折図を図4に示す。

伊武部白土は、ナトリウム分やカリウム分などのアルカリ成分が各々2.74%、1.81%と低く、シリカ分が72.5%と高いため、耐火度はSK15と市販の長石質原料と比較して高い値を示している。鉱物組成は石英の他、ソーダ長石、正長石およびカオリン鉱物からなっている。また、そのノルム式は以下のようになり、長石分38.0%、珪石分37.0%、粘土分22.6%である。

ソーダ長石 23.2%、 カリ長石 10.7%、 灰長石 4.1%  
珪石 37.0%、 粘土分 22.6%、 その他 2.4%

琉球石灰岩は、ほとんどがカルサイトからなっており、炭酸カルシウム(CaCO<sub>3</sub>)に換算すると96.4%である。また、わずかながら石英を含んでいる。

前兼久粘土はカオリン鉱物、雲母粘土鉱物の他、石英からなり、アルミナ分が24.8%と多く、耐火度はSK31と高い。また、有色成分の鉄分は1.45%と、使用した原料のうち、最も高い値を示している。

また、伊武部白土と具志頭白土、琉球石灰岩とシルグスイのもと、前兼久粘土と喜瀬粘土というように試料と伝統的な釉原料を比較すると、化学組成等が類似しており、それぞれ長石質原料、石灰質原料、粘土質原料と見做すことができる。

表1 試料及び伝統的釉原料の化学組成と耐火度

成分 試料名	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 (%)	Ig. Loss (%)	耐火度
伊武部白土	72.5	16.9	0.39	0.31	0.83	0.22	2.74	1.81	3.96	SK 15
琉球石灰岩	1.60	0.27	0.11	...	54.0	0.37	0.03	0.02	42.8	...
前兼久粘土	61.2	24.8	1.45	0.63	0.10	0.02	0.70	0.57	9.36	SK 31
具志頭白土	71.3	11.8	1.43	0.20	1.32	0.67	1.81	3.59	5.56	SK 4a
シルグスイのもと	9.52	0.28	0.13	...	50.6	0.41	0.11	0.13	39.5	...
喜瀬粘土	72.0	19.3	1.10	0.58	0.04	...	...	1.46	6.02	SK 19

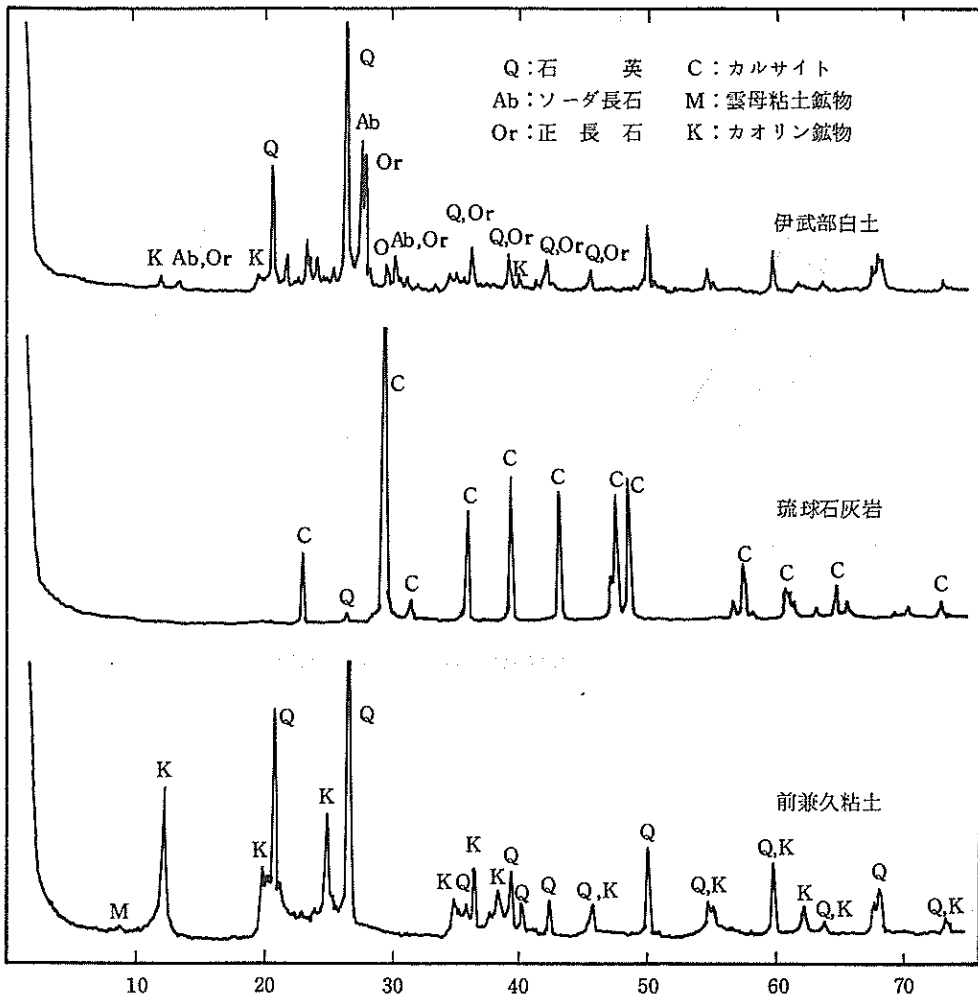


図4 試料のX線回折図

4.2 伊武部白土-琉球石灰岩-前兼久粘土配合系の釉性状

図5から図7に各焼成温度での伊武部白土-琉球石灰岩-前兼久粘土配合系の釉性状の変化を示す。

図5に1,200℃焼成における釉性状の変化を示す。

酸化焼成では、釉調は不溶-半溶-透明と変化する。琉球石灰岩の配合割合が20%~30%の範囲では、配合番号14#、20#および27#の釉は前兼久粘土の配合割合が増えるために半溶の釉調を呈し、その他の釉は透明釉である。

透明釉の領域は全体的にやや溶けが甘く、伊武部白土、琉球石灰岩の配合割合が多くなるほど光沢や透明感が増し、貫入が多くなる傾向がある。また、前兼久粘土の配合割合が増えると、その鉄分の影響により化粧部の釉がやや黄色味を呈するようになる。琉球石灰岩の配合割合が10%以下と40%以上の範囲では、ほとんど不溶である。

還元焼成では、不溶-半溶-青磁と釉調が変化する。酸化焼成で透明釉領域の配合は淡緑色の青磁釉を呈し、ほとんどの配合で貫入が認められる。

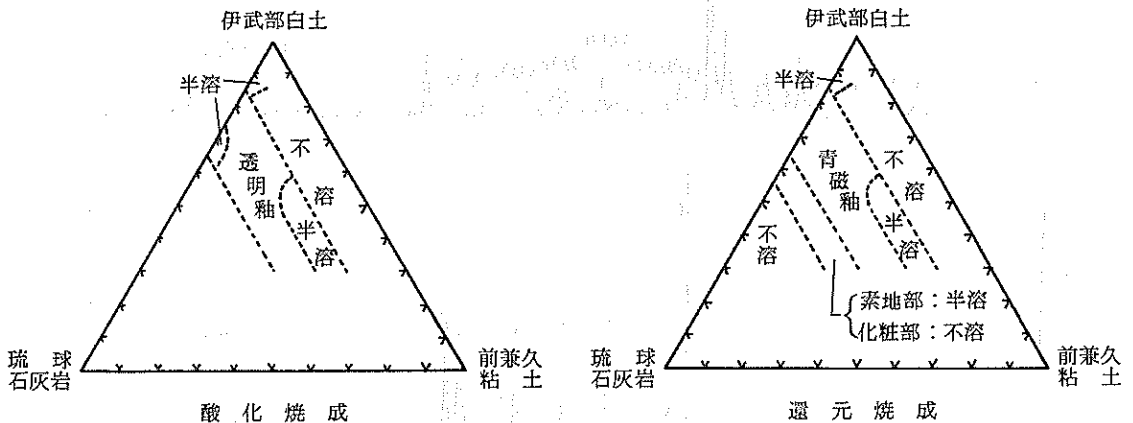


図5 1,200℃焼成における釉性状の変化

図6に1,230℃焼成での釉性状の変化を示す。酸化焼成では不溶-半溶-透明と釉調が変化し、1,200℃焼成と同様に、琉球石灰岩の配合割合が20%から30%の範囲内に透明釉の領域があり、溶けは良好である。

還元焼成では、不溶-半溶-マット-青磁と釉調が変化し、酸化焼成よりもさらに溶けが良くなっている。青磁釉は淡緑色で、貫入のある配合が増えている。

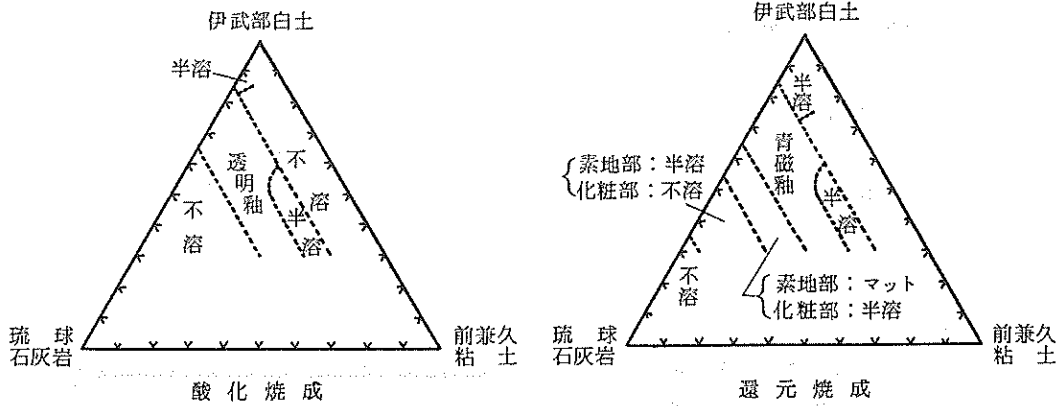


図6 1,230℃焼成における釉性状の変化

図7に1,250℃焼成での釉性状を示す。酸化焼成では不溶-半溶-マット-ややマット-透明と釉調が変化し、溶ける範囲が広がっている。この焼成温度における釉性状の特徴は、琉球石灰岩の配合割合が40%~50%の範囲でマット調の釉が得られることである。

還元焼成では不溶-半溶-マット-ややマット-青磁と釉調が変化しており、青磁釉は淡緑色である。青磁釉及びマット釉の範囲ではほとんどの釉に貫入が認められ、その傾向は伊武部白土、琉球石灰岩の配合割合が多い釉ほど著しい。

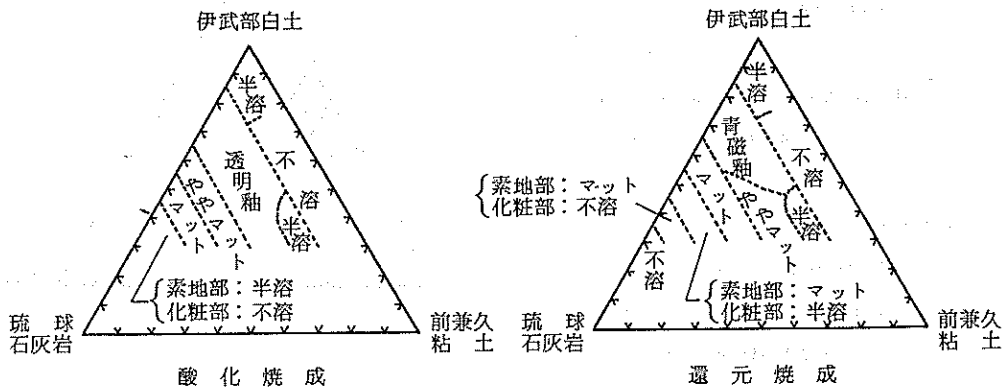


図7 1,250℃焼成における釉性状の変化

また、磁器素地の試験体について還元焼成した時の釉性状の変化を図8に示す。

各焼成温度とも不溶-半溶-青磁と釉調が変化するが、焼成温度が高くなると溶ける範囲が広がっている。赤土素地と異なるのは、青磁釉において殆ど貫入が認められないことである。

### 5. まとめ

伊武部白土、琉球石灰岩、前兼久粘土の基礎性状及びこれら3原料による釉配合の基礎試験を行い、次のような結果を得ることができた。

- 1) 伊武部白土は、具志頭白土と比較してナトリウム分、カリウム分などの融剤成分が少なく、長石質原料としては耐火度がSK15と高い。
- 2) 焼成温度が1,200℃以上において酸化焼成で透明釉、還元焼成では青磁釉が得られる。
- 3) 透明釉の領域は、琉球石灰岩の配合割合が20%~30%の範囲内にある。この領域の透明釉は、伊武部白土、琉球石灰岩の配合割合が多くなると、光沢や透明感が増すが、貫入も多くなる傾向がある。また、前兼久粘土の配合割合が増えると、その鉄分によって化粧部の透明釉がやや黄色味を帯びてくる。
- 4) 試験体を磁器素地にすると、還元焼成で無貫入の青磁釉が得られる。
- 5) 焼成温度が1,250℃になると、琉球石灰岩の配合割合が40%~50%の範囲でマット調の釉が得られる。

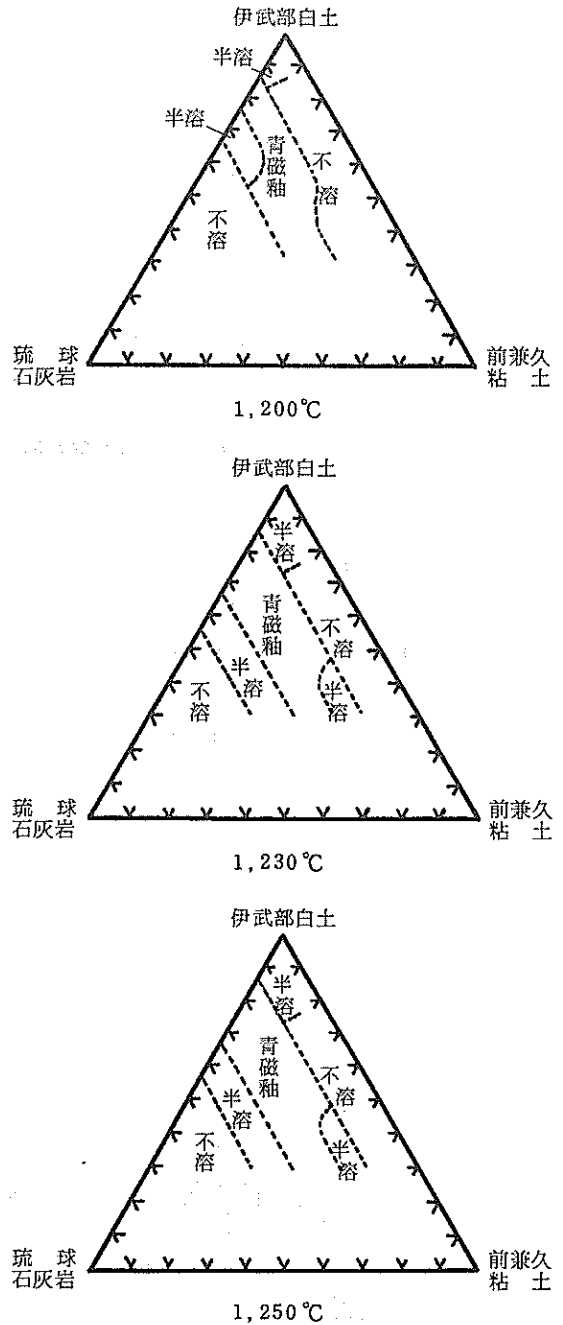


図8 磁器素地の試験体について還元焼成した時の釉性状の変化



6) 各焼成条件での良好な釉の配合割合を表2に示す。

表2 伊武部白土-琉球石灰岩-前兼久粘土配合系における良好な釉の配合割合

焼成温度 (°C)	焼成雰囲気	配合番号	配 合 割 合 (%)			釉の性状
			伊武部白土	琉球石灰岩	前兼久粘土	
1,200	酸化焼成	32 #	60	25	15	透明釉
	還元焼成	30 #	70	25	5	青磁釉
1,230	酸化焼成	19 #	40	30	30	透明釉
	還元焼成	8 #	60	30	10	青磁釉
1,250	酸化焼成	13 #	50	30	20	透明釉
		34 #	50	25	25	〃
	還元焼成	4 #	70	30	0	青磁釉
		30 #	70	25	5	〃

以上のことから、伊武部白土、琉球石灰岩、前兼久粘土などの新規原料による釉薬の開発が可能と考えられる。今後の課題としては貫入の解消、着色剤の添加による色釉の展開、その他、応用面について試験を行う必要がある。

#### 文 献

- 1) 藤井紀之、照屋善義、仲村三雄、宜野座俊夫、沖縄島の粘土資源、地調月報、vol. 30、p. 4-5、(1979)
- 2) 花城可英、照屋善義、県産石灰資源の特性、沖縄県工業試験場業務報告、vol. 14、p. 125-127、(1986)
- 3) 宜野座俊夫、与座範弘、照屋善義、壺屋灰立釉の開発に関する研究、沖縄県工業試験場業務報告、vol. 10、p. 91、(1982)

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。