

石垣島窯業原料を用いた陶磁器製造技術に関する研究

— 川平陶石を用いた鑄込成形に関する研究 —

花城可英、中村英二郎、与座範弘

1. 緒言

石垣島は琉球列島のなかで他の島にはない地質的特徴を持ち、於茂登岳を中心に広い範囲に花崗岩とその親類とも言える石英閃緑岩や流紋岩が賦存している¹⁾。このような地質状況から石垣島は多彩な窯業原料資源を産出する可能性があると言える。

昭和55年、沖縄県工業試験場（現沖縄県工業技術センター）により行われた窯業原料調査により、石垣島に白色粘土が賦存していることがわかり、昭和57年に名古屋工業技術試験所金岡繁氏により磁器土として十分利用可能であることが確認され、試作が行われた。そして昭和58年～60年に石垣磁器原料、磁器素地、磁器釉薬に関して研究が行われている²⁾³⁾⁴⁾。

さらに平成9、10年度に沖縄県八重山支庁によりボーリングを含めた本格的な窯業資源調査が行われ、磁器原料となりうる川平陶石、大嵩陶石、大嵩セリサイトなどの窯業原料が確認されている¹⁾。そして平成10年沖縄県工業技術センターにおいて川平陶石及び富崎粘土を利用した陶磁器素地について研究が行われている⁵⁾。

川平陶石は川平湾から西へ約1kmのなだらかな丘陵地に分布しており、花崗岩質の岩石が熱水変質を受けて脆くなった軟質の珪長質岩である。鉄の含有量はそれほど多くなく、磁器原料として使用可能と見ることができ。ただ通常の陶石と異なりセリサイトを含まないため、可塑性に乏しく成形にあたり粘土分を加える必要がある。窯業原料として利用可能な軟質珪長質岩（この部分を川平陶石と呼ぶ）についてボーリング調査を含む埋蔵量評価により推定鉱量27.4万トン、予想鉱量5.9万トン¹⁾という結果がでており、川平陶石を活用した磁器製造業の振興が可能であると考えられる。

今回石垣磁器の事業化を目的に川平陶石の鑄込成形について技術移転研究を行ったので報告する。なお本研究は財団法人 沖縄県産業振興公社が実施する地域産業総合利用支援事業における受託研究として行ったものである。

2. 実験方法

(1) 川平陶石の前処理

採取した川平陶石はボールミルを用いて粉碎し、ふるい分けを行った。ふるい分けした粉碎物をろ布に広げ水

を切り、乾燥させ、粗砕して試料とした。

試料について蛍光X線分析装置（リガク RIX-3000）を用いて検量線法により化学組成を求めた。またX線回折装置（島津製作所 XD-D1）により鉱物組成を求めた。粉碎試料の粒度分布はレーザ回折式粒度分布測定装置（島津製作所 SALD-3000S）を用いて測定した。

川平陶石の鑄込成形条件の検討にあたり、川平陶石が粘土分を含まないため、これまでの報告⁶⁾を元に市販の蛙目粘土を外割30%添加して、以下の鑄込試験を行った。

(2) 実験計画法による鑄込条件の検討

L18実験計画法により川平陶石（蛙目粘土30%添加）の鑄込成形条件について予備試験を行った。NaOH、水分量、水ガラス量、Na₂CO₃、ポリカルボン酸塩、ヘキサメタリン酸ナトリウム、フミン酸ナトリウムを因子として、3水準とり分散分析を行った。表1に因子と水準を示す。

表1 川平陶石の鑄込み条件に関する因子と水準

因子	水準1	水準2	水準3
A NaOH	0	0.05	—
B 水分量	36	38	40
C 水ガラス	0.3	0.4	0.5
D Na ₂ CO ₃	0	0.03	0.06
E ポリカルボン酸塩	0	0.1	0.2
F e	—	—	—
G ヘキサメタリン酸ナトリウム	0	0.1	0.2
H フミン酸ナトリウム	0	0.1	—

泥しょうは分散性、流動性を測定後、石膏型を使用し、成形体（コップ状、40φ/30φ×50mm）を鑄込んだ。

測定項目と評価方法

- pH・・・泥しょうについてpHメータにより測定した。
- 粘度・・・泥しょうを攪拌後5分間放置し、B型粘度計により測定した。
- 流出時間・・・測定容器に泥しょうを100mlとり、1分間放置後50mlの流出時間を測定。
- 分散性・・・泥しょうを試験管にとり24時間放置し、沈降量を測定。

- 排泥性・・・泥しょうを石膏型に注ぎ、その後排泥具合を評価した。
- 離型性・・・成形体が石膏型から外しやすいかどうかを五段階で評価した。
- 着肉厚さ・・・泥しょうを石膏型に注ぎ、10分後に排泥し、成形体の厚みを測定。
- 着肉量・・・着肉厚さを測定後の成形体を105℃で乾燥し、重量を測定。

(3) 水ガラスと併用するポリカルボン酸塩の検討

予備試験の結果を参考に川平陶石（蛙目粘土30%添加）の鑄込成形において、水ガラスと併用する分散剤をポリカルボン酸塩とし、4種類のポリカルボン酸塩等について水ガラスと併用した鑄込試験を行い、使用するポリカルボン酸塩を検討した。

なお水分量は40%、水ガラス量は0.5%と一定にして、ポリカルボン酸塩を0.1%、0.2%添加して、鑄込試験を行い、予備試験と同様に泥しょうの評価を行った。

(4) 水ガラスとセラランCAを併用した鑄込条件の検討

川平陶石（蛙目粘土30%添加）の鑄込成形において、水ガラスと併用するポリカルボン酸塩のうち50ml流出時間の最も短くなったセラランCAを水ガラスと併用する分散剤に選定した。そしてセラランCA添加量を0.1%として、最適水分量及び水ガラス量を検討した。

3. 実験結果および考察

(1) 川平陶石の化学組成、鉱物組成と前処理

①粉砕試料の粒度分布

ボールミルにより、15時間粉砕した川平陶石の粒度分布を図1に示す。

15時間粉砕し、120メッシュのふるいを通した川平陶石試料のメディアン径は10.6μmとなった。このため粉砕効率と蛙目粘土を添加することを考慮し、この15時間粉砕試料を鑄込試験に供した。

ボールミルにより15時間粉砕し、ふるい分けを行った川平陶石は濾布に広げ、風乾し、粗砕して試料とした。

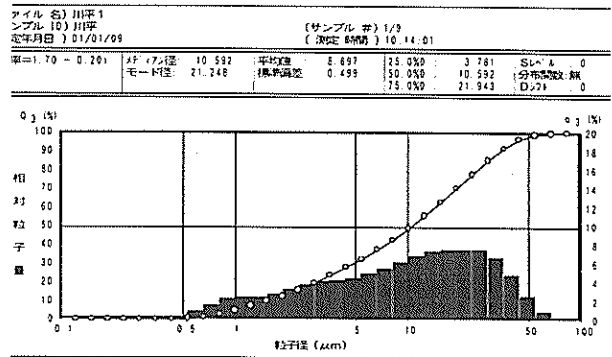


図1 15時間粉砕物の粒度分布

②化学組成

今回使用した川平陶石と日本の代表的陶石の化学組成²⁾を表2に示す。またX線回折結果を図2に示す。

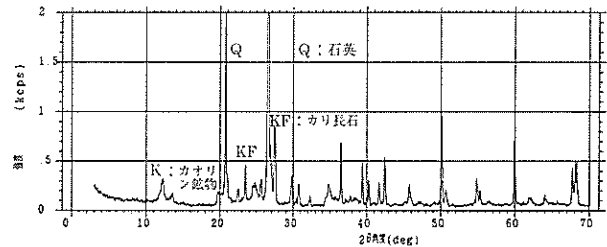


図2 川平陶石のX線回折図

川平陶石は軟質の珪長質岩である。大部分石英とカリ長石からなり、少量のカオリン鉱物を含んでいる。可塑性は無く、準陶石にあたる。天草や有田の代表的陶石と比較して、Na₂O、K₂Oが多い。鉄の含有量は0.7%とそれほど高くなく、磁器原料として充分使用できると思われる。

(2) 実験計画法による川平陶石の鑄込条件の検討

実験計画法による分散分析の結果、川平陶石（蛙目粘土30%添加）の鑄込成形において、水分量の効果が大きすぎ、またエラー幅が大きいなどにより、明確な鑄込条件は明らかにできなかった。一例として50ml流出時間の分散分析結果を表3に示す。また要因効果図を図3に示す。

表2 川平陶石と代表的陶石の化学組成

(単位: %)

試料名	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	Ig. Loss
川平陶石	79.4	15.1	0.70	0.11	0.05	0.04	0.23	4.71	3.54
泉山陶石(一等石)	79.70	13.66	0.30	—	0.16	0.03	0.08	3.06	2.74
天草陶石(鳳山脈特等)	78.90	14.09	0.27	—	tr.	0.16	0.09	2.90	3.58

表3 50ml流出時間の分散分析結果

Source	f	S	V	F0	S'	ρ (%)
水分量	2	2690	1340	16.6	2530	67.7
e	15	1210	80	-	1380	35.3
T	17	3900			3900	100

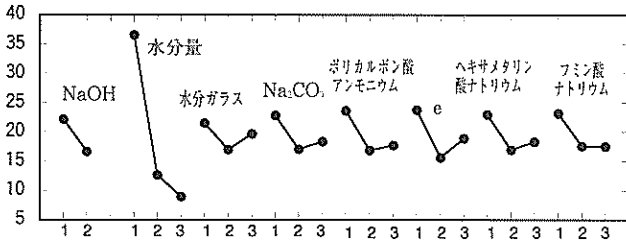


図3 50ml流出時間の要因効果図

流出時間において分散剤の効果は水準2が極小となっており、適切な添加量があることが示唆される。

分散剤のうちヘキサメタリン酸ナトリウムは離型性が悪くなるため除くことにした。またNaOH、Na₂CO₃は泥しょうの改善効果が少なく、またpHが高くなりすぎるため、石膏型を痛めることが懸念された。

分散分析の結果を参考に水ガラスと併用する分散剤をポリカルボン酸塩として市販されている4種類について追加試験を行った。

(3) 川平陶石の鑄込みにおける水ガラスと併用するポリカルボン酸塩の検討

川平陶石(蛙目粘土30%添加)の鑄込成形において、水ガラスと併用するポリカルボン酸塩としてアロンA-6114(東亜合成)、セララン-CA(ユケン工業)、セ

ルナD-735、セルナD-305(中京油脂)の他、エチレン・酢酸ビニル共重合系のデンカEVAテックス(電気化学工業)を検討した。表4に鑄込試験結果を示す。

川平陶石(蛙目粘土30%添加)の水ガラスと各種ポリカルボン酸塩との併用による泥しょう及び鑄込試験結果において、離型性、排泥性などについてポリカルボン酸塩間に差がほとんど無かった。このため、50ml流出時間の最も短くなったセララン-CAを水ガラスと併用する分散剤に選定した。そして次にセララン-CA添加量を0.1%として、水分量、水ガラス量を検討した。

(4) 川平陶石の水ガラスとセララン-CAを併用した鑄込条件の検討

表5に川平陶石(蛙目粘土30%添加)の水ガラスとセララン-CAを併用した鑄込み試験結果を示す。また図4に泥しょうの50ml流出時間を示す。

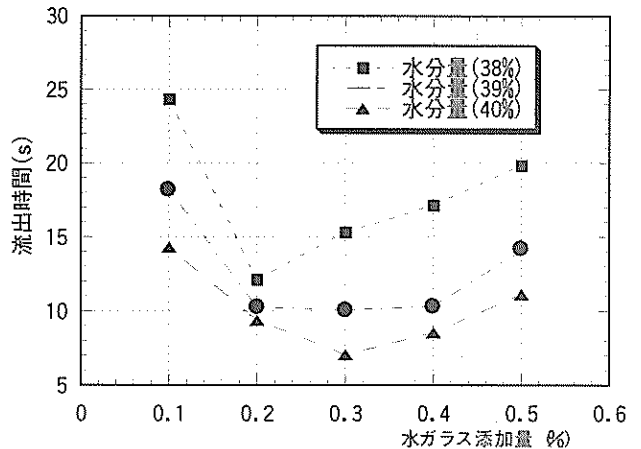


図4 セララン-CAと水ガラスを併用した泥しょうの流出時間

表4 各種ポリカルボン酸塩の併用による泥しょうの物性と鑄込試験結果

分散剤	24時間後の分散性	50ml流出時間(s)	曳糸性	離型性	排泥性	着肉量厚mm
水ガラスのみ	△	12.9	○	3.7	○	3.8
セルナD305 0.1%	△	13.2	○	4.5	○	4.1
〃 0.2%	△	14.7	○	3.3	○	3.7
セルナD735 0.1%	△	12.1	○	4.7	○	3.6
〃 0.2%	△	12.2	○	3.0	○	3.8
アロンA6114 0.1%	△	12.5	○	4.3	○	3.4
〃 0.2%	△	10.0	○	3.0	○	3.0
セララン-CA 0.1%	△	8.9	○	3.7	○	3.1
〃 0.2%	△	11.2	○	3.3	○	3.3
デンカEVAテックス 0.1%	△	11.4	○	3.0	○	3.8
〃 0.2%	△	12.7	○	3.0	○	4.1

表5 水ガラスとセランダーCAを併用した泥しょうの物性と鑄込試験結果

水分量	水ガラス 添加量	24時間後 の分散性	50ml流出 時間(s)	曳糸性	離型性	排泥性	着肉量 厚mm
38%	0.1	-	24.2	-	-	-	-
	0.2	△	12.2	○	-	-	-
	0.3	△	15.4	○	4.0	○	4.0
	0.4	△	17.2	○	4.3	○	3.7
	0.5	△	19.9	○	4.3	○	3.6
39%	0.1	△	18.2	○	-	-	-
	0.2	△	10.3	○	-	-	-
	0.3	△	10.1	○	4.7	○	3.4
	0.4	△	10.4	○	4.3	○	3.3
	0.5	△	14.1	○	4.0	○	3.4
40%	0.1	△	14.3	○	-	-	-
	0.2	△	9.4	○	-	-	-
	0.3	△	7.1	○	4.3	○	3.1
	0.4	△	8.6	○	4.0	○	3.3
	0.5	△	11.1	○	4.3	○	3.7

川平陶石（蛙目粘土30%添加）の鑄込成形において図4に示すように、セランダー0.1%、水ガラス量0.3%のとき最も流出時間が短く、良好な泥しょうとなった。

水分量が多いほど流出時間は短くなるが、水分量が多くなると着肉量がやや少なくなり、離型性もやや悪くなるため、試作用鑄込泥しょうは川平陶石（蛙目粘土30%添加）に対し、水分量39%、水ガラス0.3%、セランダーCA0.1%とした。この割合で鑄込み泥しょうを作成し、試作を行った。川平陶石を用いて試作した鑄込成形磁器製品を図5に示す。



図5 川平陶石を用いて試作した鑄込成形磁器製品

4. まとめ

川平陶石に蛙目粘土を30%加え、水分量39%、水ガラス量0.3%、セランダーCA（ポリカルボン酸アンモニウム）0.1%により良好な鑄込泥しょうとなった。

この泥しょうを用いて、壺、酒器、人形、シーサーなどを鑄込成形し、釉薬を施釉後、1,260℃で還元焼成することにより、鑄込成形磁器製品が製造可能となった。

石垣島には磁器原料となる川平陶石が賦存し、若手の陶磁器製造業者も多い。新たな磁器製造技術を移転することにより、地元の資源を生かした石垣磁器の産地形成が可能であり、地域振興につながるものと考えられる。

謝辞

本研究を進めるにあたり、多大なご協力をいただきました石垣市役所商工観光課 仲盛長秀氏、仲本英克氏に深く感謝の意を表します。

参考文献

1. 平成10年度石垣島窯業資源調査報告書、沖縄県八重山支庁、玉野総合コンサルタント株式会社（1999）
2. 与座範弘、宜野座俊夫、花城可英、照屋善義、沖縄県工業試験場業務報告第11号 101-119（1983）
3. 与座範弘、宜野座俊夫、花城可英、照屋善義、沖縄県工業試験場業務報告第12号 85-100（1984）
4. 与座範弘、宜野座俊夫、花城可英、照屋善義、沖縄県工業試験場業務報告第13号 55-77（1985）
5. 与座範弘、宮良断、沖縄県工業技術センター研究報告第1号 67-78（1998）
6. 沖縄県工業技術センター技術情報誌 Vol.3 No.3（2001）
7. 工業技術連絡会議窯業連合部会編 日本の窯業原料株式会社 ティー・アイ・シー 1992

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。