石垣磁器の高品質化に関する研究
－川平陶石を利用した釉薬に関する研究－

与座範弘、花城可英

釉薬は、陶磁器製品に装飾性を与えるとともに汚れ防止や機械的強度を向上させる働きがある。また、他産地との区別化を図る上で重要な陶磁器製造技術の一つである。標準的な磁器釉は、長石（陶石）－木灰系または長石（陶石）－石灰石－カオリン－珪石系などにより調配合される。[1] 木灰原料としてはイス灰が代表的であり、溶媒成分として亜鉛分やバリウム分などが補助的に添加される。今回の研究では、石垣磁器の高品質化に資するため石垣島に賦存する川平陶石や大嵩粘土、富崎黒色鉱物を活用した磁器釉について検討を行い、釉調が良好な透明釉や青磁釉、辰砂釉の配合割合や焼成条件について明らかにした。

1　緒言

石垣島の原材料を用いた磁器は、規模が小さいながらも商品化されつつあり、今後、「石垣磁器」産地として形成されていくことが期待されている。
そのため業界では、磁器製造技術や品質の向上に努めているところである。

これまで当センターにおいては川平陶石などの石垣産原料を用いた磁器の成形技術や焼成技術に関していくつかの研究がなされているが、磁器釉をはじめ、地域の原料を活用した釉薬の系統的な研究は少ない。釉薬は陶磁器製品を汚れにくくし機械的強度を向上させるほか、加飾技術として製品に装飾性を与えるなど、重要な役目を果たしている。また、製品の多様化や他産地との区別化を図る上で重要な技術であり、石垣磁器を特徴づける要素の一つと思われる。

そこで、本研究では磁器製造技術の向上に資するため川平陶石を主に透明釉、青磁釉、辰砂釉について配合割合や焼成条件の違いによる釉性状の変化について試験したので、その結果について報告する。

2　実験方法

2－1　原材料

使用した原料の種類と特徴を以下に示す。

2－1－1　川平陶石

川平区西方に賦存する準陶石質の原料で、白色～淡黄色を呈する。花崗岩質の岩石が熱水変質を受けてもろくなった珪長質岩で、主として石英やカリ長石からなり、少量の斜長石、カオリナイトを含んでいる。[2]

2－1－2　大嵩粘土

大嵩区南東に賦存する白色～淡黄色の粘土で、石英、ハロイサイト、長石から構成されている。

2－1－3　本部石灰石

本部半島の名護市部間に賦存する黒色～灰色の結晶質石灰岩でカルサイト、石英から構成されている。

2－1－4　富崎黒色鉱物

富崎地区の海岸付近で見られ黒色鉱物で砂礫等に付着したような状態で賦存し、マンガン鉱物(todorokite、birnessite 等）を含んでいる。[3]

2－1－5　イス灰、他

イス灰は市販の天然イス灰をそのまま使用した。
また、炭酸バリウムや亜鉛華その他については市販品をそのまま使用した。

2－2　試料の調製方法及び化学組成

原料の処理方法を図１、処理した試料の化学組成、耐火度を表１に示す。

川平陶石、大嵩粘土及び本部石灰石についてはポットミル粉砕し、115 mesh 篩通過物を供試料とした。富崎黒色鉱物の砂礫層が混入しないように採取した生試料のマンガン含有量は 60 %以上になるが、人手による分離・採取は困難である。そこで、図１に示すようにポットミルを用いて砂礫表面から分離する方法を試みた。その結果、マンガンの含有量や収

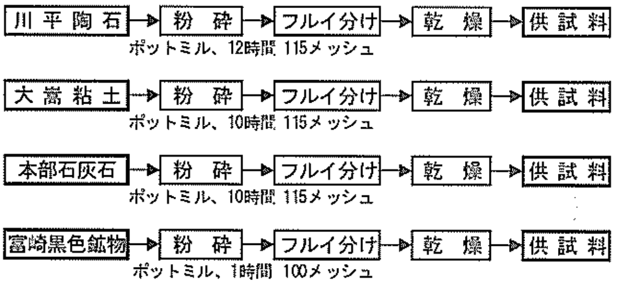

図１　原料の処理方法

量や収率などからポットミルの運転時間は１時間とし、その 100mesh 篩通過物を供試料とした。

表１　試料の化学組成と耐火度　　　　　　　　　　　　(単位：%)

試料名	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	TiO_2	CaO	MgO	K_2O	Na_2O	MnO_2	Ig.Loss	耐火度
川平陶石	76.0	13.8	0.63	0.03	0.19	—	4.27	0.27	—	3.50	SK.17
大嵩粘土	76.1	17.9	0.60	0.03	0.14	—	0.79	0.30	—	5.82	SK.20
本部石灰石	3.12	0.08	0.10	—	53.2	1.30	—	—	—	42.9	—
天然イス灰	25.8	2.44	0.13	—	42.2	1.08	0.68	0.07	—	30.6	—
富崎黒色鉱物(処理物)	54.8	8.60	2.02	—	0.61	0.72	2.50	1.71	21.8	5.92	—
〃　(生試料)	13.8	3.99	0.64	—	1.24	1.09	2.53	1.77	60.0	2.53	—

２－３　釉薬の調配合及び試験体の作成方法

２－３－１　透明釉の配合範囲

透明釉は、以下に示す基本配合系Ａ１、Ｂ１についてそれぞれ図２、図３の三角座標を用いて配合した。

Ａ１・・川平陶石－本部石灰石－大嵩粘土配合系

Ｂ１・・川平陶石－イス灰－大嵩粘土配合系

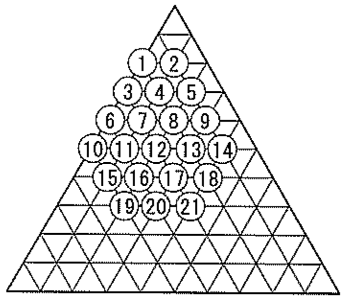

図２　川平陶石－本部石灰石－大嵩粘土配合系

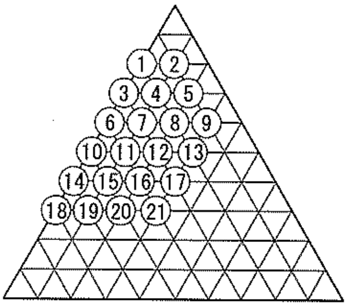

図３　川平陶石－イス灰－大嵩粘土配合系

２－３－２　青磁釉の配合

青磁釉試験では、透明釉の配合を基本に本部石灰石またはイス灰の一部を炭酸バリウムで置換した。

また、これらに着色材として酸化第二鉄を外割添加した配合をそれぞれＡ２、Ｂ２、富崎黒色鉱物を外割添加した配合をＡ３、Ｂ３として試験した。

Ａ２、Ａ３・・川平陶石－本部石灰石(1)：炭酸バリウム(2)－大嵩粘土配合系
着色材；酸化第二鉄２％（Ａ２）
または富崎黒色鉱物 ５％（Ａ３）

Ｂ２、Ｂ３・・川平陶石－イス灰(2.7)：炭酸バリウム(1.0)－大嵩粘土配合系
着色材：酸化第二鉄２％（Ｂ２）
または富崎黒色鉱物 ５％（Ｂ３）

２－３－３　辰砂釉の配合

辰砂釉試験でも本部石灰石またはイス灰の一部を炭酸バリウムと亜鉛華（酸化亜鉛）で置換した。

また、着色材として炭酸銅、補助材として酸化スズと骨灰をそれぞれ外割添加した。試験の概要を以下に示す。

Ａ４・・川平陶石－本部石灰石(2)：炭酸バリウム(2)：亜鉛華(1)－大嵩粘土配合系
着色材；炭酸銅 1.5％
補助材；酸化スズ（3％）、骨灰（2％）

Ｂ４・・川平陶石－イス灰(9.5)：炭酸バリウム(2.0)：亜鉛華(1.0)－大嵩粘土配合系
着色材；炭酸銅（1.5％）
補助材；酸化スズ（3％）、骨灰（2％）

２－４　試験体の作成方法

乾燥試料を重量法で配合し、撹拌らいかい機で混合撹拌した後に水分調製し、素焼きした磁器素地製（川平陶石 70％、蛙目粘土 30％）のテストピースに施釉した。

２－５　焼成方法

施釉した試験体は、小型ガス窯（0.15 m^3 L.P.G 窯、大和工業㈱製）を用いて 1,280 ℃（SK.9）で還元焼成した。その焼成曲線を図４に示す。

焼成時間はほぼ 16 時間、900 ℃から還元雰囲気状態にし、還元雰囲気（(H_2+CO) 濃度）が異なる３条件（強還元、中還元、弱還元）で焼成した。

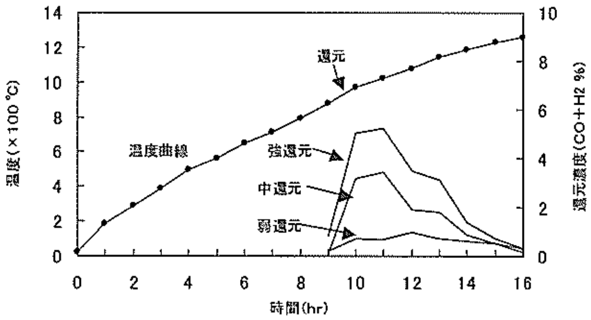

図４　焼成曲線

３　実験結果と考察

３－１　透明釉試験

川平陶石－本部石灰石－大嵩粘土配合系を中還元で焼成したときの釉性状の変化を図５に示す。

この配合系における透明釉の領域は、川平陶石の割合が 30 %～ 80 %、本部石灰石が 20 %～ 30 %、大嵩粘土が０%～ 40 %で示される範囲にあり、全体的に淡青色を帯びており、青磁釉に近い釉調を呈している。しかし、川平陶石の割合が 70 %以上の配合では釉ちぢれを生じる傾向がある。また、本部石灰石の割合が 10 %以下では半溶性、40 %以上ではマット調を呈する。

この釉性状の変化は、還元条件が変わっても大きな変化は認められなかった。透明釉としては、いずれの還元条件においても No.17、No.18、No.21 の配合が良好と思われる。

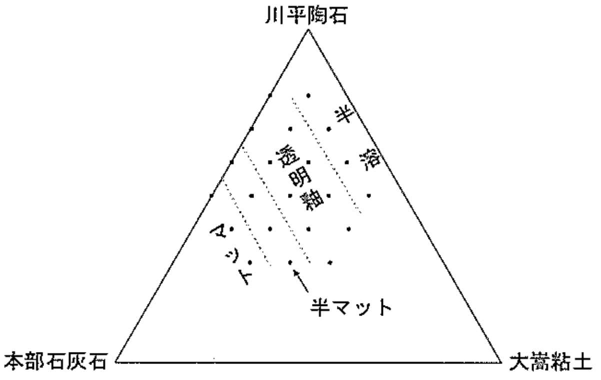

図５　基礎釉試験（Ａ１）

図６に中還元で焼成したときの川平陶石－イス灰－大嵩粘土配合系の釉性状の変化を示す。

透明釉の領域は、川平陶石の配合割合が 30 %～ 80 %、イス灰が 20 %～ 40 %、大嵩粘土が０%～ 30 %で示される範囲にあり、全体的に淡青色を帯びた青磁釉に近い釉調を呈している。また、イス灰の割合が 10 %以下では不溶または半溶性を示し、50 %以上でマット調になる傾向がある。

還元条件の違いで見ると、弱還元よりも強還元の場合に青磁釉の青色の発色が濃くなる傾向が認められた。透明釉としてはいずれの還元条件でも No.3、No.4、No. 7 、No.8 の配合が良好と思われる。

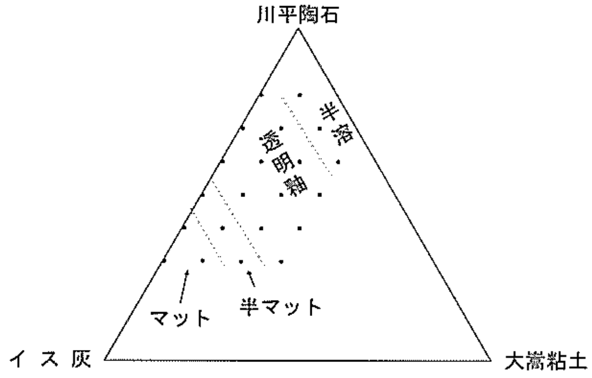

図６　基礎釉試験（Ｂ１）

３－２　酸化第二鉄添加による青磁釉試験

川平陶石－本部石灰石（1）：炭酸バリウム（2）－大嵩粘土配合系に酸化第二鉄を２%添加し、中還元で焼成したときの釉性状の変化を図７に示す。

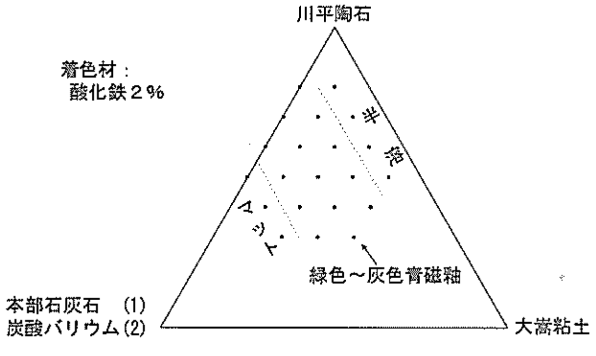

図７　酸化第二鉄添加によ青磁釉試験（Ａ２）

この配合系では灰色～緑色の青磁釉が得られ、その領域は川平陶石の割合が 30 %～ 80 %、溶媒成分（本部石灰石＋炭酸バリウム）が 20 %～ 40 %、大嵩粘土が０%～ 40 %で示される範囲にあり、溶媒成分（本部石灰石＋炭酸バリウム）が多くなるほど灰

色から緑色へと釉調が変化する傾向が認められる。また、溶媒成分（本部石灰石＋炭酸バリウム）の割合が 50 ％の配合では緑色マット釉、10 ％では黄褐色の半溶性の釉調を呈する。

この傾向は、還元条件が変わっても大きな変化は認められなかった。緑色青磁釉としてはいずれの還元条件でも No.16、No.20 の配合が良好と思われる。

図８に川平陶石－イス灰(2.7)：炭酸バリウム(1.0)－大嵩粘土配合系に酸化第二鉄を２％添加し、中還元で焼成した場合の釉性状について示す。

この配合系でも緑色～灰色を呈する青磁釉が得られる。その領域は川平陶石の割合が 30 ％～ 80 ％、溶媒成分（イス灰＋炭酸バリウム）が 20 ％～ 40 ％、大嵩粘土が 0 ％～ 30 ％で示される範囲にある。また、溶媒成分（イス灰＋炭酸バリウム）の割合が 10 ％では黄褐色の半溶釉、60 ％では緑色マット釉を呈する。

他の還元条件では溶媒成分（イス灰＋炭酸バリウム）の割合が 50 ％では緑色半マット釉を呈するほかは、大きな変化は認められなかった。緑色青磁釉としては No.6 の配合が良好と思われる。

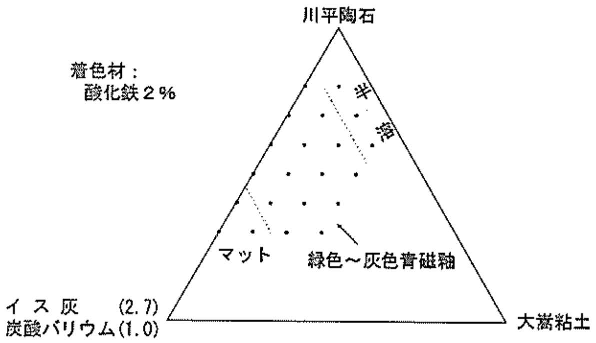

図８　酸化第二鉄による青磁釉試験（Ｂ２）

３－２　富崎黒色鉱物添加による青磁釉試験

図９に川平陶石－本部石灰石（1）：炭酸バリウム(2)－大嵩粘土配合系に富崎黒色鉱物を５％添加し、中還元で焼成した場合の釉性状について示す。

この配合系では淡緑色の青磁釉が得られる。その領域は、川平陶石の配合割合が 30 ％～ 80 ％、溶媒成分（本部石灰石＋炭酸バリウム）が 20 ％～ 40 ％、大嵩粘土が 0 ％～ 40 ％で示されるが、溶媒成分（本部石灰石＋炭酸バリウム）の割合が 30 ％及び 40 ％の配合では貫入が発生している。

還元条件の違いによる変化を見ると、強還元で焼成した場合、淡緑色青磁釉がやや茶色味を帯びる傾向が認められた。また、無貫入の淡緑色青磁釉としては、いずれの還元条件でも No.18 の配合が良好と思われる。

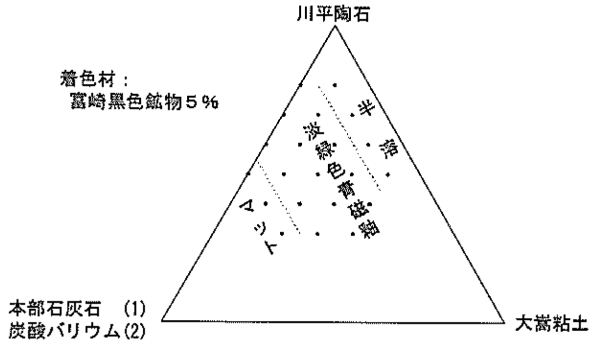

図９　富崎黒色鉱物添加による青磁釉試験（Ａ３）

図 10 に川平陶石－イス灰（2.7）：炭酸バリウム（1.0）－大嵩粘土配合系に富崎黒色鉱物を５％添加し、中還元で焼成した場合の釉性状について示す。この配合系でも淡緑色の青磁釉が得られる。その領域は、川平陶石の割合が 30 ％～ 80 ％、溶媒成分（イス灰＋炭酸バリウム）が 20 ％～ 40 ％、大嵩粘土が 0 ％～ 30 ％の範囲にあり、溶媒成分（本部石灰石＋炭酸バリウム）の割合が 40 ％の配合では貫入を生じている。

還元条件の違いによる変化を見ると、強還元では淡緑色青磁釉がやや茶色味を帯びる傾向が認められた。また、無貫入の淡緑色青磁釉としては、いずれの還元条件でも No.17 の配合が良好と思われる。

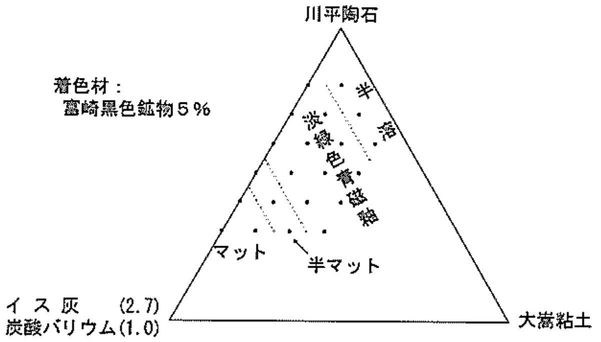

図10　富崎黒色鉱物添加による青磁釉試験（Ｂ３）

３－３　炭酸銅添加による辰砂釉試験

川平陶石－本部石灰石（2）：炭酸バリウム（2）：亜鉛華(1)－大嵩粘土配合系に炭酸銅 1.5 ％、添加材として酸化スズ３％と骨灰２％添加し、強還元で焼成したときの釉性状の変化を図 11 に示す。この配合系では全体的に半溶－淡赤色釉－マット釉と釉調が変化しており、溶媒成分（石灰石＋炭酸バリウム＋亜鉛華）の割合が 20 ％の配合で比較的濃い赤色の発

色は認められるが、辰砂釉特有の発色は得られなかった。還元条件の違いによる変化では、還元雰囲気が強い方が赤色の発色が濃くなることが認められた。

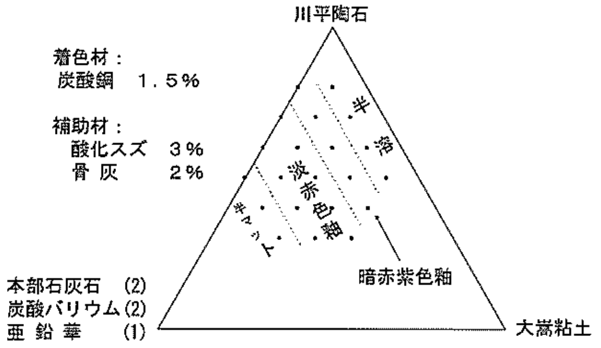

図11　炭酸銅添加による辰砂釉試験（Ａ４）

図 12 に川平陶石－イス灰（9.5）：炭酸バリウム（2.0）：亜鉛華(1.0)－大嵩粘土配合系に炭酸銅 1.5 %、添加材として酸化スズ 3 %と骨灰 2 %添加し、強還元で焼成したときの釉性状に変化について示す。

全体的に半溶－暗紫色釉－辰砂釉－マット釉と釉調が変化し、溶媒成分（天然イス灰＋炭酸バリウム＋亜鉛華）の割合が 40 %または 50 %の配合で辰砂釉特有の発色が得られる。

還元条件の違いによる変化を見ると、強還元になるほど赤色の発色が濃くなる傾向があるが、全体的に釉調は不安定であった。辰砂釉としては強還元における No.10 の配合が良好と思われる。

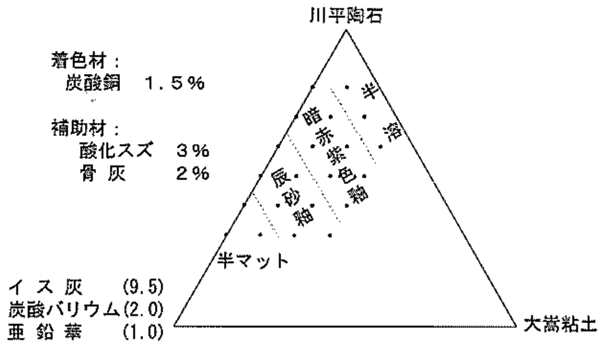

図12　炭酸銅添加による辰砂釉試験（Ｂ４）

4　まとめ

川平陶石や大嵩粘土、富崎黒色鉱物を使用した釉薬について試験を行った結果、次のことがわかった。

（１）川平陶石－本部石灰石－大嵩粘土配合系及び川平陶石－イス灰－大嵩粘土配合系では、いずれの焼成条件でも淡青色を帯びた青磁釉に近似した透明釉が得られた。良好と思われる配合割合を表２に示す。

表２　透明釉の配合割合

(単位:%)

配合番号	A1－17	A1－18	A1－21
川平陶石	40	40	30
本部石灰石	30	20	30
大嵩粘土	30	40	40

配合番号	B1－3	B1－4	B1－7	B1－8
川平陶石	70	70	60	60
イス灰	30	20	30	20
大嵩粘土	0	10	10	20

（２）酸化第二鉄２％添加により得られる緑色青磁釉の配合割合を表３に示す。

表３　緑色青磁釉の配合割合

(単位:%)

配合番号	A2－16	A2－20	B2－
川平陶石	30		60
本部石灰石	17	13	－－－
イス灰	－－－	－－－	29
炭酸バリウム	33	27	11
大嵩粘土	20	30	40
酸化第二鉄	2	2	2

（３）富崎黒色鉱物５％添加により淡緑色青磁釉が得られ、着色材料として利用できることがわかった。良好と思われる配合について表４に示す。

表４　淡緑色青磁釉の配合割合

(単位:%)

配合番号	A3－18	B3－17
川平陶石	40	40
本部石灰石	7	－－－
イス灰	－－－	22
炭酸バリウム	13	8
大嵩粘土	40	30
富崎黒色鉱物	5	5

（４）炭酸銅添加による辰砂釉試験では還元が強いほど、濃い赤色の発色が得られた。また、辰砂釉はイス灰を使用した配合系を強還元で焼成した時に得られた。その配合割合を表５に示す。

表５　辰砂釉の配合割合

（単位：%）

配合番号	B4－17
川平陶石	50
イス灰	38
炭酸バリウム	8
亜鉛華	4
大嵩粘土	0
炭酸銅	1.5
酸化スズ	3
骨灰	2

参考文献

１）加藤悦三　釉調合の基本　窯技社

２）沖縄県八重山支庁　石垣島の窯業資源調査（要約版）（1999）

３）野原昌人、大城逸郎　陸生マンガンノジュール－その形状・鉱物学的・地球化学的特徴－　沖縄県立博物館紀要　第４号　pp.17-30　（1978）

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　　　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。