

県内産窯業原料の調査研究

國枝勝利^{*}，熊谷 哉^{**}，林 茂雄^{***}，稲垣順一^{**}，伊藤 隆^{****}

The Investigation of Ceramic Raw Materials in Mie Prefecture

by Katsutoshi KUNIEDA, Hajime KUMAGAI, Shigeo HAYASHI,
Jun-ichi INAGAKI and Takashi ITO

Chemical and mineralogical compositions, and refractoriness (SK) of 52 ceramic raw materials produced from 23 non-metal mines (ball-clay & kaolinitic sand clay : 10, stoneware clay : 1, feldspar : 2, pottery-stone : 1, limestone : 6, silica : 1, olivine and serpentine : 2) and 9 waste sludges derived from 6 crushed stone mines in Mie Prefecture were investigated. These data were already described in "Ceramic Raw Materials in Japan 2003 (URL: <http://www.aist.go.jp/RIODB/db078>)". The last investigations of these raw materials were carried out in 1990. The results were reported in paper¹⁾ and also described in the book "Ceramic Raw Materials in Japan 1992 (published by T.I.C. Co. Ltd)".

Key words: Ceramic raw material, Plastic clay, Crushed stone sludge, Non-metal mine

1. はじめに

全国のセラミックス用原料調査結果を基に1992年に出版された工業技術連絡会議窯業連合部会編「日本の窯業原料(第3版)」が出版後10年以上経過し、鉱山・原料の状況が変化していると考えられるため、産業技術連携推進会議窯業部会での改訂作業を行うことになった。その調査結果は、今回は本として出版するのではなく独立行政法人産業技術総合研究所のデータベースのホームページで2003年4月から公開している(URL:<http://www.aist.go.jp/RIODB/db078>)。

当窯業研究室は三重県、鳥取県および長野県の一部の調査を担当した。ここでは、三重県産のものに限り、鉱山の現況、調査方法の概要、および

調査結果の一部について報告する。

2. 調査鉱山

今回の調査では県内の窯業原料関連稼働鉱山は23鉱山存在した。前回1990年調査時は27鉱山であった¹⁾。内訳は耐火粘土(木節・蛙目粘土)10[13]、雑粘土1[5]、長石2[2]、陶石1[1]、石灰石6[4]、珪石1[0]、かんらん岩および蛇紋岩2[2]であった。なお[]内の数字は1990年調査時の数である。1990年からの変化は次のようであった。耐火粘土鉱山は4鉱山が閉山する一方で1鉱山が開山、雑粘土は瓦粘土用の4箇所が採掘を廃止、石灰石鉱山は2増加し(内1鉱山は1990年当時休山していたものが再開)、珪石鉱山は、実際には2鉱山あるが1鉱山は石灰石とともに産するため石灰石鉱山に含め、他の1鉱山は明治から大正時代に採掘していた鉱山を再開したものである²⁾。この他に、県内の砕石業者から排出される砕石スラッジについても、セラミック等の

* 窯業研究室

** 窯業研究室材料開発グループ

*** 窯業研究室伊賀分室

**** 窯業研究室応用技術グループ

無機原料としての利用可能性を考慮し6社(9種類)を調査した。なお、調査対象とした三重県内の砕石工場は、平成8年の調査³⁾を基にしており、今回調査したスラッジは新たに採取を行った。

これらの鉱山について現地の聞き取り調査と試料採取を行ったが、一部の鉱山では電話等の聞き取り調査のみの場合もある。主な調査内容は鉱山名、会社名、原料名、産地、地質、鉱山の現状と鉱山処理方法、生産量、取り扱い先、埋蔵量等である。聞き取り調査の結果、全体的に採掘量は減少しており、特に耐火粘土と珪砂の需要が急減して、それらの採掘量は1990年の半以下となっていた。これは窯業関連の大手・中小企業の工場が海外移転するに伴い、移転当初は日本製の原料に依存していたのが、現地の原料精製技術の向上等

で現地原料利用技術がほぼ完成したことが原因である。このようなことから鉱山経営は非常に困難な状況である。

次に、試料採取あるいは提供された原料について、蛍光X線による定量分析、X線回折による鉱物同定、耐火度、焼成色、可塑性等の試験を行った。これらのデータはすべて上述のホームページに記載した。記載したデータは、原料の種類別に区分されており、化学分析値、地質および今回の調査で得られた新たな知見である。なお通常1つの鉱山では数種類の原料を市販していることが多く、今回の調査でも23鉱山から52種類が販売されていた。ホームページには各原料ごとに記載してある。

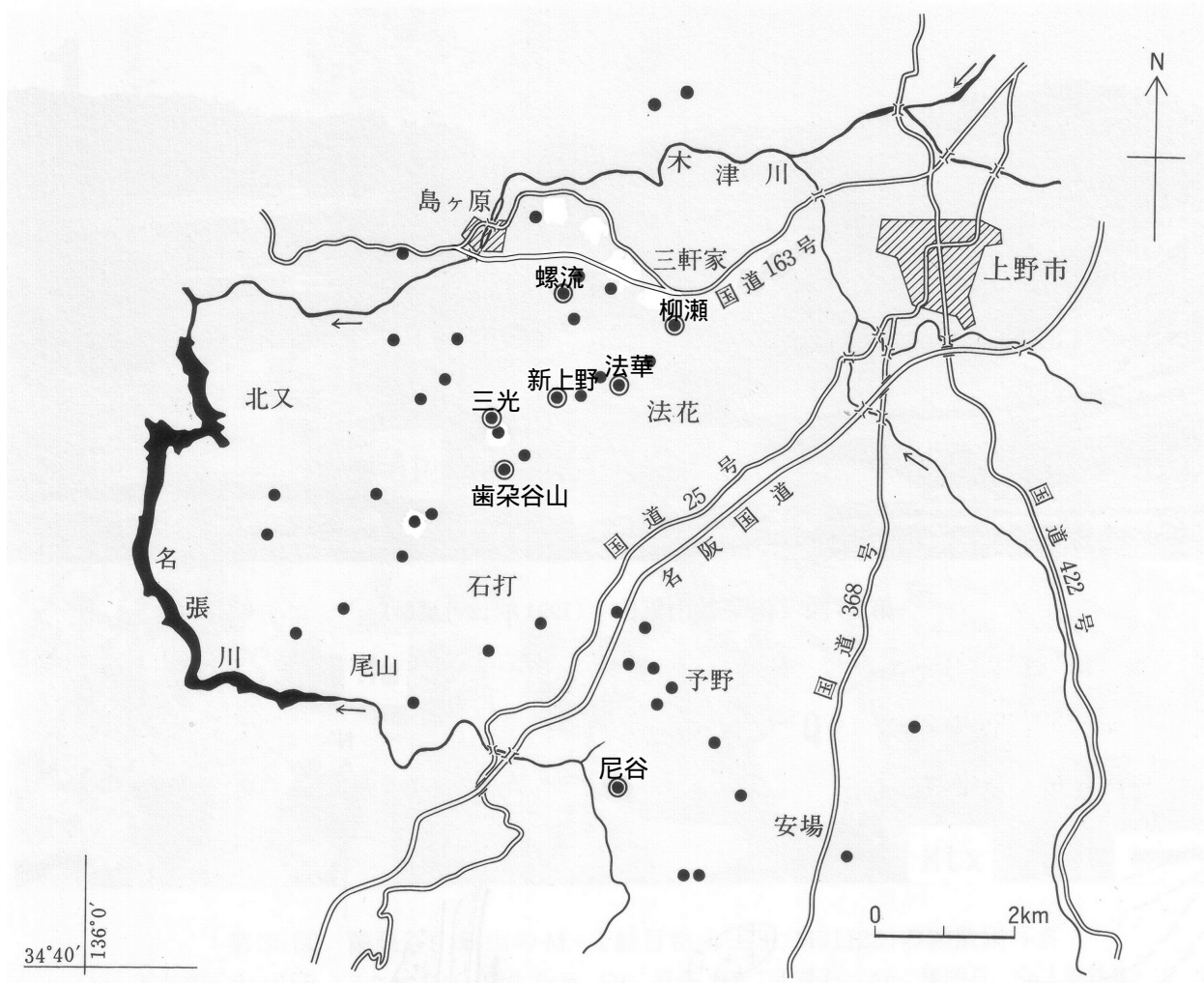


図1. 島ヶ原・上野等地域の耐火粘土鉱山位置図
 は稼行鉱山、 は休廃止鉱山(原図(文献4のp.61)に加筆)

表2.三重県内産窯業原料・破石スラッジの鉱物組成(X線回折測定結果)

試料番号	会社名(鉱山名)	原料名	分類	主成分	その他成分
1	(有)丸山陶土部	伊賀蛙目(水ひ)	粘土類蛙目粘土	カオリナイト、石英	
2		白蛙目粘土(原土)	粘土類蛙目粘土	カオリナイト、石英	カリ長石
3		黒蛙目粘土(原土)	粘土類蛙目粘土	カオリナイト、石英	カリ長石
4		黒木節粘土(原土)	粘土類木節粘土	カオリナイト、石英	カリ長石、セリサイト
5		青粘土(原土)	粘土類蛙目粘土	カオリナイト、石英	カリ長石、ソーダ長石、セリサイト
6		蛙目珪砂(水洗)	珪石類珪砂	石英	カリ長石、ソーダ長石、セリサイト
7	三光磁業(有)	特選島ヶ原木節原土	粘土類木節粘土	カオリナイト、石英	カリ長石、セリサイト
8		特選伊賀島ヶ原木節原土	粘土類木節粘土	カオリナイト、石英	セリサイト、カリ長石、ソーダ長石
9		特選島ヶ原蛙目原土	粘土類蛙目粘土	カオリナイト、石英	カリ長石
10		特選伊賀島ヶ原蛙目原土	粘土類蛙目粘土	カオリナイト、石英	カリ長石
11	柳瀬磁業(有)	蛙目粘土	粘土類蛙目粘土	カオリナイト、石英	セリサイト、カリ長石
12		木節粘土	粘土類木節粘土	カオリナイト、石英	カリ長石、ソーダ長石
13	(有)滝谷鉱山	蛙目粘土	粘土類蛙目粘土	カオリナイト、石英	カリ長石、ソーダ長石、セリサイト
14		AB粘土	粘土類蛙目粘土	カオリナイト、石英	カリ長石、ソーダ長石、セリサイト
15		天然珪砂	珪石類珪砂	石英	カリ長石、ソーダ長石
16	尼谷磁業所	伊賀白蛙目粘土	粘土類蛙目粘土	カオリナイト、石英	カリ長石、セリサイト
17		伊賀黒木節粘土	粘土類木節粘土	カオリナイト、石英	カリ長石
18	岡本陶釉産業	岡本長石	長石類風化花崗岩	石英、ソーダ長石	カリ長石、濁沸石、モルデン沸石
19	みね陶土(法華鉱山)	伊賀黒木節粘土	粘土類木節粘土	カオリナイト	石英
20		伊賀青木節粘土	粘土類木節粘土	カオリナイト	石英、カリ長石
21		伊賀蛙目粘土	粘土類蛙目粘土	カオリナイト、石英	ソーダ長石、カリ長石
22	峰磁業所(かい流鉱山)	島ヶ原黒蛙目粘土	粘土類蛙目粘土	カオリナイト、石英	カリ長石
23		島ヶ原白蛙目粘土	粘土類蛙目粘土	カオリナイト、石英	カリ長石、リョウ鉄鉱
24		島ヶ原木節粘土	粘土類木節粘土	カオリナイト、石英	カリ長石、ソーダ長石
25		実土(みつち)	粘土類せり器粘土	カオリナイト、石英	セリサイト、ソーダ長石、カリ長石
26		服部磁業所(根組原鉱山)	蛙目粘土	粘土類蛙目粘土	カオリナイト、石英
27	服部耐火粘土工業所(横山鉱山)	黒蛙目粘土	粘土類蛙目粘土	カオリナイト、石英	カリ長石、ソーダ長石、セリサイト
28		珪砂	珪石類珪砂	石英	カリ長石、ソーダ長石
29		青蛙目粘土	粘土類蛙目粘土	石英、カオリナイト	カリ長石、ソーダ長石
30		青粘土(せり器粘土)	粘土類せり器粘土	カオリナイト、石英	ソーダ長石、カリ長石
31		横山蛙目	粘土類蛙目粘土		
31	白石磁産(株) (白石磁産阿山鉱山)	阿山アブライト特級塊	長石類アブライト	石英、ソーダ長石、カリ長石	
32		阿山アブライト特級粗砕	長石類アブライト	石英、ソーダ長石、カリ長石	
33		阿山アブライト新2級	長石類アブライト	石英、ソーダ長石、カリ長石	
34		阿山アブライト白石長石	長石類アブライト	石英、ソーダ長石、カリ長石	
35	(株)瀨浜窯	白峰陶石	陶石	石英	カリ長石、ソーダ長石、セリサイト
36	近藤石灰工業(株) (鈴峰鉱山)	石灰石	石灰石	カルサイト	ドロマイト、石英
37	(株)イシザキ(多度鉱山)	多度珪石	珪石類珪石		
38	(株)イシザキ(藤原鉱山)	大貝戸珪石	珪石類珪石		
39		藤原石灰石	石灰石		
40	興和工業(株)(大安鉱山)	石灰石	石灰石	ドロマイト、カルサイト	透角閃石、普通輝石
41	(株)出口組(多志田鉱山)	石灰石	石灰石	カルサイト	
42	国見山三重鉱山(株)	国見山石灰石	石灰石	カルサイト	
43	日東粉化工業(株)鈴鹿工場 (庄内白石、鈴鹿鉱山)	石灰石	石灰石	カルサイト	
44	鶴田石材工業(株)菅島工場	かんらん岩	かんらん岩及び蛇紋岩	かんらん石、アンチゴライト、普通輝石、緑泥石	角閃石
45	丸又磁業(株) (株)出口組 千才工場	鳥羽蛇紋岩	かんらん岩及び蛇紋岩	アンチゴライト	スティヒタイト、ブルーサイト
46		プレスケーキ(石灰系)	砕石スラッジ	カルサイト	石英、カリ長石、ソーダ長石
47	プレスケーキ(砂岩系)	砕石スラッジ	石英	カルサイト、ソーダ長石、カリ長石、白雲母	
48	(有)トモエ商店東員砂利工場	採石スラッジ	砕石スラッジ	石英	緑泥石、ソーダ長石、カリ長石、白雲母
50	(株)杉山コンテック東員工場	脱水ケーキ	砕石スラッジ	石英	ソーダ長石、カリ長石、白雲母、緑泥石
51	多度開発(株)多度工場	採石スクリーニングス	砕石スラッジ	石英	緑泥石、ソーダ長石、カルサイト
52		採石ダスト	砕石スラッジ	石英	緑泥石、ソーダ長石、カリ長石、カルサイト、白雲母
53	余野部建材(株)柘植工場	プレスケーキ(砂岩系)	砕石スラッジ	石英	白雲母、緑泥石、ソーダ長石、カルサイト
54	友栄磁業所 (新上野鉱山)	特級木節粘土	粘土類木節粘土		
55		二級木節粘土	粘土類木節粘土		
56		二級木節粘土	粘土類木節粘土		
57		青蛙目粘土	粘土類蛙目粘土		
58		黒蛙目粘土	粘土類蛙目粘土		
59	三栄磁業(株)	採石スラッジ	砕石スラッジ	石英	緑泥石、ソーダ長石、カリ長石、白雲母
60	浅岡窯業原料(株)	急須用粘土	粘土類せり器粘土	石英、カオリナイト	セリサイト、ソーダ長石、緑泥石、カリ長石

3.1 耐火粘土(木節・蛙目粘土) 鉱山

1990年当時は13鉱山で稼行していたが、今回の調査では10鉱山であった。第2花垣(友栄鉱業所), 上田((合)上田耐火鉱業所), 黒崎耐火上野(黒崎耐火原料(株)伊賀事業所: 奈良県月ヶ瀬村に事務所・鉱床があるが地質の関連, 組合所属等から三重県の調査担当としている), 川本((有)川本鉱山)の4鉱山が廃山した。一方, 新上野鉱山(友栄鉱業所)が開山途中にある。

三重県の耐火粘土鉱床は伊賀上野地域の古琵琶湖層群の最下位上野累層の伊賀粘土層(鮮新世: 約400万年前~300万年前)に胚胎し, 木節粘土, 蛙目粘土, 青灰色粘土, 亜炭, 砂および砂礫からなる^{4), 5)}。稼行の対象となるのは前3者で, 一部蛙目粘土を水簸処理する以外は原土のまま乾燥粉碎して販売されている。用途は, 以前は製鉄用耐火煉瓦原料に使われたが, 現在は陶磁器用が多い。かつては, 伊賀粘土層の胚胎する名張, 上野市, 阿山郡東部を含めて50カ所前後の鉱山⁶⁾があったが, 現在は島ヶ原地区の花ノ木断層のすぐ北側で6, 槇山地区で3鉱山が稼行中である。なお上野市地域花ノ木断層の南にある尼谷鉱山は休山中で貯鉱を販売している。図1に島ヶ原, 上野市地域にある鉱山の位置を示す。

これら鉱山が販売している木節・蛙目粘土の鉱物組成は積層不整の著しいカオリナイト, 石英, カリ長石(正長石: Orthoclase), セリサイトから構成されることが多い。今回は検出されなかったが, 伊賀上野地域産の粘土にはギブサイト($Al(OH)_3$)の存在が知られていて, 前回の調査でも存在が確認された。しかし, 微量であるため同定用の鉱石処理方法等の違いにより今回は検出されなかったと考えられる。

なお, これら耐火粘土鉱山では木節・蛙目粘土の上層の青灰色粘土(試料番号25の実土と試料番号30の青粘土。粘土類せっ器粘土に属する。)も

稼行対象にしている。これらは耐火度が低く, 着色するため, タイルなどに使われる。

3.1.1 母岩の違いによる蛙目粘土の性質への影響

すでに述べたように, 島ヶ原村地域では, 現在花ノ木断層の北側に沿った6鉱山で木節, 蛙目粘土を, 阿山町槇山地域では3鉱山で主に蛙目粘土を採掘している⁷⁾。蛙目粘土に関して両地域間には表3のような違いがあると思われる。

この違いは, 母岩(花崗岩類)を構成する長石の風化の受け易さの差に起因するものと推測される。槇山地域の未風化の長石は脆く乾式粉碎処理で容易に微粉化し, 融材の効果を発揮する。そのため蛙目粘土原土単味で陶器素地とすることができ。京焼陶器に称揚された童仙房粘土は京都府相楽郡(ソウラクゲン)南山城村大字童仙房で採掘され, 単味で乾式粉碎後篩で粗粒部分を除いて陶器素地に使用された。童仙房地域は槇山地域と同じ信楽花崗閃緑岩分布域に属し, かなり多量に含まれる長石粒子が脆い特徴を持つ蛙目粘土であったと推定される。

しかし, 現在の市販の童仙房粘土(童仙房で採掘されておらず表3の島ヶ原地域の白色の未風化長石をほとんど含まない蛙目粘土原土粉碎物を「童仙房粘土」と称している)は耐火度が高く, 京都周辺の陶磁器業者間では主に窯道具の補修材に使い, 彼らの間では「童仙房」といえば耐火度の高い粘土を指すのが一般である。これはかなり古くからの慣習であったらしく童仙房地域で採掘された粘土には耐火度の高い蛙目粘土も存在した可能性が高い。これと同種の蛙目粘土が, 槇山地域にある伊賀焼陶磁器工業協同組合所の青岳鉱山で最近まで採掘され, 土鍋用の耐火度の高い粘土を販売していた。この鉱山も信楽花崗閃緑岩分布域にある。

童仙房地域は明治4年以降京都府主導の基に開拓された(童仙房ホームページによる)。明治時代

表3. 島ヶ原と槇山地域の蛙目粘土の特徴

地域	未風化粗粒部分	原土の耐火度	採鉱状況	母岩の花崗岩の型 ⁴⁾
島ヶ原	槇山	SK32~34	島ヶ原6鉱山で採掘	柳生花崗閃緑岩
槇山	石英, 長石	SK18~29	槇山3鉱山で採掘	信楽花崗閃緑岩
	石英	SK32~34	青岳鉱山(休山)	

の童仙房粘土の記載は非常に少なく、今回行ったの文献調査では僅かにヲ・コルシェルトの記載⁸⁾と“京焼百年の歩み”⁹⁾に見られるのみであった。これらによれば、童仙房産の粘土には耐火度が低く原土のまま磁器・陶器土になる土、耐火度の高く収縮の小さい窯道具用の土、および陶器白絵用のカオリン質の土があったようで、それぞれ蛙目粘土、現在市販の「童仙房粘土」で一般に京都陶磁器業者がいう蛙目粘土、最後はよく分からないが石英、長石をほとんど含まない分級の進んだ蛙目質カオリン粘土であったのではないかと推測される。

以上のように信楽花崗閃緑岩由来の蛙目粘土は種々のタイプのものを産すると考えるのが合理的である。一方、柳生花崗閃緑岩地域では耐火度の高い蛙目粘土しか産出しない。今回の調査で、母岩の違いが風化生成物に及ぼす影響の一端を知ることができた。

3.2 雑粘土鉍床

今回の調査にて、雑粘土を目的に稼行している鉍山は1カ所(試料番号60)で、その粘土は萬古焼急須用原料に使用されている。前調査の1990年当時は、明治時代から続いている採掘地域の四日市市南いかるがで採掘していた^{2),8)}。地質的には第三紀鮮新世東海層群(以前は奄芸(アゲ)層群とも言われた)大泉累層中の別名粘土層に属するものである。しかしそれ以降宅地開発で南いかるが地域の採掘は次第に困難となり今回の調査を契機に他地域で同種粘土を探すこととなった。別名粘土層分布地域は四日市市内の南いかるが、別

名、みゆきヶ丘と垂坂東谷であるが、いずれも宅地化されていて採掘は困難であった。従って層準が異なるが同市一色町東芝四日市工場東の層厚約4mの青岩(灰青色未固結粘土層、試料番号60)を採掘の対象とし、すでに実用に供している。この地層は大泉累層山之一色砂層に属する⁹⁾。この粘土層は上下に厚い砂層を伴う。南いかるが粘土等との化学分析値の比較を表4に示す。

今回の粘土は従来から酸化鉄含有量が少なく、また可塑性がやや悪く、鉍床もここだけで小さい。四日市市川島乱飛地区の粘土層(20年ほど前までは瓦用原料に使用したといわれる)が有力候補と筆者は考えており、今後適切な採掘地の調査が望まれる。表4に1969年に調査¹⁰⁾した際の化学分析値を示した。

3.3 長石鉍山

前回の調査と同じ2鉍山(阿山アプライト、岡本長石)が稼働していた。阿山アプライトのカリ長石は微斜長石(Microcline)、岡本長石は信楽花崗閃緑岩の半風化物を水簸処理したもので、そのカリ長石は正長石(Orthoclase)である。岡本長石は伊賀焼釉薬用に使われる。

3.4 砕石スラッジ

砕石スラッジは窯業用原料として使用の可能性が高い。今回調査したスラッジは3種に大別できる。それらを特徴とともに表5に示す。

このように可塑性、耐火度ともに高い粘土質スラッジと石灰石に富んだスラッジが存在するため、今後有効利用を考えたい。

表4. 各種急須用青岩(灰青色未固結粘土)の化学分析値(mass%)

	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	MnO	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅	Ig.Loss
東芝工場東青岩	63.23	18.52	5.79	0.89	0.06	0.73	1.73	1.37	2.44	0.07	5.90
南いかるが青岩	60.35	18.07	7.50	0.97	0.18	0.67	2.00	1.50	2.79	0.09	5.87
乱飛粘土層粘土	60.46	18.22	6.87	0.36	0.08	0.32	1.29	1.50	2.32	---	8.19

表5. 砕石・砂利スラッジの化学分析値(mass%)と特徴

	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	Ig.Loss	耐火度	可塑性砂
岩砕石系	64	15	5±1	0.6	1~3	1.5	2.0	3.5	4.5	SK4a	小
石灰石砕石系	9.86	2.27	0.59	0.08	47.77	0.65	0.04	0.41	----	----	----
未固結砂層系	60.16	22.73	3.63	0.47	0.63	0.61	1.54	2.79	6.76	SK18	大

(注) 砂岩砕石系 試料番号47, 48, 51, 52, 53
 石灰石砕石系 試料番号46
 未固結砂層系 試料番号59

4. まとめ

今回、三重県内の窯業原料鉱山および砕石工場の現地調査を行い、鉱山の現況とその原料の特性を調べた。

- (1) 鉱山数は 1990 年に比べ耐火粘土で 3、雑粘土（瓦用）で 4 減少した。石灰石、珪石は増加したが、これは休鉱山の再開によるものである。
- (2) 今回の調査で母岩による耐火粘土の性質への影響が推測された。また調査に付随して萬古焼急須用の新しい採掘場を定めることができた。
- (3) 窯業関連の大手・中小企業工場の海外移転が続いていることから、特に耐火粘土、珪砂の需要が急減し、採掘量が 1990 年の半分以下となっていて、鉱山経営は非常に苦しい状況にある。
- (4) 調査した原料の詳細なデータは、(独)産業技術総合研究所のホームページ「日本の窯業原料」の中に 2003 年 4 月から公開している (URL: <http://www.aist.go.jp/RIODB/db078>)。

謝辞

この調査にあたり各鉱山関係の方々には多大のご協力を頂きましたことを記し、深謝いたします。特に、柳瀬鉱業(有)代表取締役上野英昌氏には、現在は採掘を終了している童仙房粘土について情報提供いただき、新たな知見を得ることができた。

また、鳥取県全域、長野県大平鉱山については國枝が担当・調査し、上記ホームページに公開した。両県の調査の際にも鉱山関係者、県関係者の協力を頂いた。特に鳥取県現地調査(平成 14 年 10 月 15 日~16 日)に際しては、元鳥取県職員で因幡焼当主田中幸成氏に終始案内をしていただいた。平成 15 年 12 月田中氏の訃報に接し、ここに深謝するとともにご冥福をお祈りします。また文献調査には元中京短期大学比較陶器研究所 金岡繁人氏、(独)産業技術総合研究所中部センター

杉山豊彦氏にご協力いただきました。記して感謝致します。

参考文献

- 1) 林 茂雄他：“県内窯業原料の調査と利用研究(第 1 報)”。三重県窯業試験場年報, 25, p.15-25 (1990)。
- 2) 吉田史郎他：“桑名地域の地質(5 万分の 1 図幅)”。p.130 (1991) 地質調査所。
- 3) 國枝勝利他：“三重県下砕石・砂利プラントからの廃泥の有効利用研究”。三重県窯業試験場年報, 31, p.28-39 (1996)。
- 4) 川辺孝幸他：“上野地域の地質(5 万分の 1 地質図幅)”。p.60-70 (1996) 地質調査所。
- 5) 川辺孝幸：“古琵琶湖層群 - 上野盆地を中心に - ”。アーバンクボタ, No.29, p.30-47 (1990)。
- 6) 工業技術連絡会議窯業連合部会編：“日本の窯業原料”(1965)。
- 7) 柿谷悟他：“滋賀県信楽地域の地質と粘土鉱床”。窯業協会誌, 81, p.587-596 (1973)。
- 8) ヲ. コルシエルト：“日本陶業”(塚田政雄編)。大日本窯業協会誌, 39, p.329, 471 (1931)。p.514, 562 (1937)。または中京短期大学比較陶器研究所第 6 回公開講座 資料 5-1 (平成 4 年 6 月 30 日) p.53, 61, 83, 85。
- 9) 藤岡幸二編纂：“京焼百年の歩み”。p.97-100 (昭和 37 年刊), (財)京都陶磁器協会, 京都府, 京都市。
- 10) 吉田史郎：“四日市地域の地質(5 万分の 1 図幅)”。p.71-72 (1984) 地質調査所。
- 11) 吉田史郎他：“桑名地域の地質(5 万分の 1 地質図幅)”。p.49-54 (1991) 地質調査所。
- 12) 國枝勝利他：“北・中勢および伊賀地方における頁岩類の地質的調査”。三窯試研究報告, 4, p.3-17 (1970)。