

# 低火度磁器に適した基礎釉薬の開発 (第2報)

川原田金吾<sup>\*</sup>, 服部正明<sup>\*</sup>, 伊藤 隆<sup>\*\*</sup>, 新島聖治<sup>\*\*</sup>

## Development of Basic Glazes Suitable for Low-Temperature Sintering Porcelain (Part2)

Kingo KAWARADA, Masaaki HATTORI, Takashi ITO and Seiji NIJIMA

### 1. はじめに

窯業研究室ではこれまでに、従来の磁器より200 程度低い 1100 で磁器化する素地 (以後、低火度磁器素地と称す) の開発を行ってきた<sup>1), 2)</sup>。この素材を実用化できれば、燃料費の低減及び二酸化炭素排出量を抑制し、環境に優しい陶磁器製品が得られることが期待できる。

本研究では、1100 で焼成する低火度磁器に適した釉薬の開発を目的とした。開発する釉薬は、1100 で熔融する組成に設計する必要がある。さらに、貫入 (釉薬層のひび割れ) を発生させないために、釉薬の熱膨張係数を低火度磁器素地のもの (約  $6 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ ) よりも小さくする必要がある。

我々は、前報で表 1 に示す低火度磁器用の透明釉 (T14) について報告した<sup>3)</sup>。しかし、この透明釉は時間が経過するとともに貫入の発生が見られた。そこで本報告は、この透明釉を基本調合として、長石原料の置換を行い、貫入のない透明釉の開発について検討した。加えて、釉薬のパリエーションを増やすためにマット釉、乳濁釉の開発も併せて行ったので報告する。

### 2. 実験方法

原料にはインドソーダ長石、平津長石、亜鉛華、鼠石灰石、福島珪石、土岐口蛙目粘土、ペタライ

表 1 低火度磁器に適する透明釉 (T14) の原料調合割合 (単位: wt%)

原材料名	透明釉 T14 (%)
釜戸長石 (特級)	33.4
土岐口蛙目	16.1
亜鉛華	7.6
鼠石灰	10.7
炭酸ストロンチウム	8.2
ペタライト	9.1
福島珪石	14.9
合計	100.0
フリットCY-5401 (外割り)	10.0

ト、マグネサイト、水酸化アルミニウムを用いた。またフリットは CY5401, 12-3614, 12-3737, 12-3641, 12-3974 の 5 種を用いた。これらのフリットは熔融温度が低く、体膨張係数の小さいものである。

#### 2. 1 透明釉

前報で開発した透明釉 T14 (表 1) を出発組成とし、釜戸長石をインドソーダ長石で、炭酸ストロンチウムをマグネサイトで置換した。その際、ゼーゲル式中の KNaO のモル数は固定し、また SrO は MgO で全量置換した。それ以外の塩基成分 (CaO, ZnO 等) は T14 と同モル数とし、中性成分 ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) と酸性成分 ( $\text{SiO}_2$ ) のモル数を変化させた。透明釉の試験調合 (ゼーゲル式) を表 2 に示す。なお、各フリットは外割で 30 ~ 100%

\* 窯業研究室

\*\* 窯業研究室伊賀分室

添加し、釉薬を調合した(10g 調合)。得られた釉薬をテストピースに施釉し、電気炉で酸化焼成した。昇温時間は7時間、最高温度1100で1時間保持した。得られたテストピースの透明性、気泡の混入及び貫入の有無を目視により確認した。

表2 透明釉の試験調合(ゼーゲル式)

Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.25~0.40 珪
SiO <sub>2</sub>	2.00~5.00 珪
アルカリ分	
KNaO	0.13 珪
Li <sub>2</sub> O	0.04 珪
CaO	0.35 珪
MgO	0.18 珪
ZnO	0.3 珪
アルカリ計	1 珪

## 2.2 マット釉

2.1で無貫入となった透明釉(T21)を基本として、表面がマット状(つや消し)になる領域を見出すために、中性成分(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)と酸性成分(SiO<sub>2</sub>)のモル数をそれぞれ0.30から0.45、2.5から5.0の範囲で変化させて釉薬を調合した。なお、フリット12-3614の添加量は、外割で30%または70%とした。試験方法は2.1と同様である。

## 2.3 乳濁釉

2.2と同様に、前述の透明釉(T21)を基本として、乳濁状態になる領域を見出すために長石原料及びフリットの選択を行い、中性成分(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)と酸性成分(SiO<sub>2</sub>)のモル数を変化させて釉薬を調合した。フリットの添加量は外割で30%または40%とした。試験方法は2.1と同様である。

## 3. 結果と考察

### 3.1 透明釉

前報で開発した透明釉T14(表1)を出発組成とし、釜戸長石をインドソーダ長石で、炭酸ストロンチウムをマグネサイトで置換した。これは、イオン半径のより小さなイオン(Na<sup>+</sup>やMg<sup>2+</sup>)を導入することにより、釉薬の熱膨張が低下し、貫入の発生を抑制できることが考えられたからである。更に、低熱膨張性のフリットを使用することにより釉薬の低熱膨張化が期待できる。そこで、フリット4種12-3614、12-3737、12-3641、12-3974を外割りで50%、70%、100%添加した結果、添加量70%が良好であった。フリット添加量70%で、中性成分(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)と酸性成分(SiO<sub>2</sub>)

のモル数をそれぞれ0.25から0.40、2.50から4.00に変化させたときの焼成結果を図1に示す。フリット12-3737と12-3614で良好な透明釉が得られた。

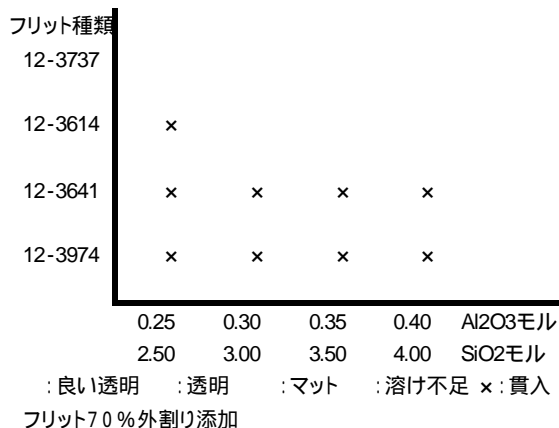


図1 フリット4種の透明釉の焼成結果

次に、フリット12-3614を70%添加し、ゼーゲル式の中性成分(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)のモル数を0.30から0.45、酸性成分(SiO<sub>2</sub>)のモル数を2.0から4.5でそれぞれ変化させた焼成結果を図2に示す。試験した全ての範囲で透明釉が得られたが、貫入の発生や泡の混入が多く見られた。

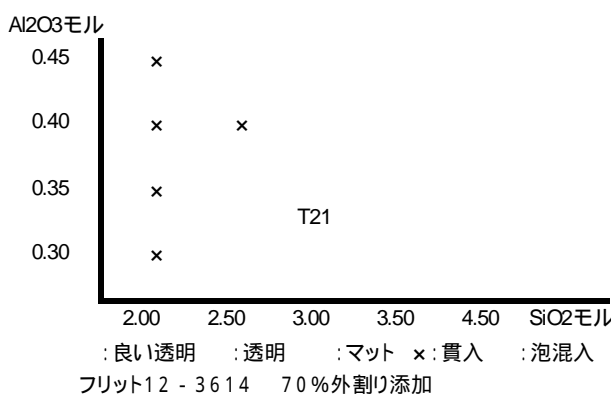


図2 透明釉の焼成結果

図2より、酸性成分(SiO<sub>2</sub>)が2.5および3.0モルで良い透明釉が得られたことがわかる。また、酸性成分(SiO<sub>2</sub>)の小さい範囲(2.0モル)では貫入が発生していることがわかる。これらのことを考慮して、中性成分(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)0.35モル、酸性成分(SiO<sub>2</sub>)3.0モルの釉薬を無貫入な透明釉として選択した(T21)。そのゼーゲル式を以下に示

し、外観を図3に示す。

0.13KNaO  
 0.04Li2O  
 0.35CaO 0.35Al2O3 3.00SiO2  
 0.18 MgO + フリット 12-3614 70% (外割)  
 0.30ZnO



図3 透明釉 (T21)

### 3.2 マット釉

3.1で無貫入の透明釉となった T21 を選択し、マット釉の試験を行った。

前述のゼーゲル式の中性成分 (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) と酸性成分 (SiO<sub>2</sub>) のモル数をそれぞれ 0.30 から 0.45 と 2.5 から 5.0 の範囲で変化させ、フリット 12-3614 を外割りで 30%、70%添加した。その結果、添加量 30%で良好な結果が得られた。図4に添加量 30%の焼成結果を示す。中性成分 (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 0.35 から 0.45、酸性成分 (SiO<sub>2</sub>) 2.50 から 3.50 の範囲でマット釉が得られた。これらの中から、中性成分 (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 0.45 モル、酸性成分 (SiO<sub>2</sub>) 3.0 モルの釉薬を無貫入のマット釉として選択した (M21)。その外観を図5に示す。

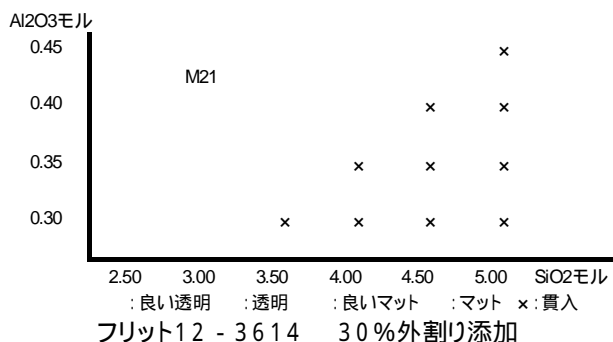


図4 マット釉の焼成結果



図5 マット釉 (M21)

### 3.3 乳濁釉

3.1で無貫入の透明釉となった T21 を選択し、乳濁釉の試験を行った。

前述のゼーゲル式の中性成分 (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) と酸性成分 (SiO<sub>2</sub>) のモル数をそれぞれ 0.10 から 0.25 と 5.0 から 8.0 の範囲で変化させて、試験を行ったが、良好な乳濁釉が得られなかった。

次にフリット 12-3614 の添加量を 30%、40%と低下させたが、乳濁釉は得られなかった。更にインドソーダ長石を平津長石で置換したが、乳濁釉は得られなかった。そこで、フリット CK5401 の使用について検討した。その結果、インドソーダ長石および平津長石どちらを使用しても CY5401 添加量 40%で乳濁釉が得られた。以上の結果を図6に示す。これらの中で、平津長石を使用し、フリット CY5401 を外割りで 40%し、中性成分 (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 0.3 モル、酸性成分 (SiO<sub>2</sub>) 3.0 モルの釉薬を無貫入で良好な乳濁釉として選択した (N21)。その外観を図7に示す。

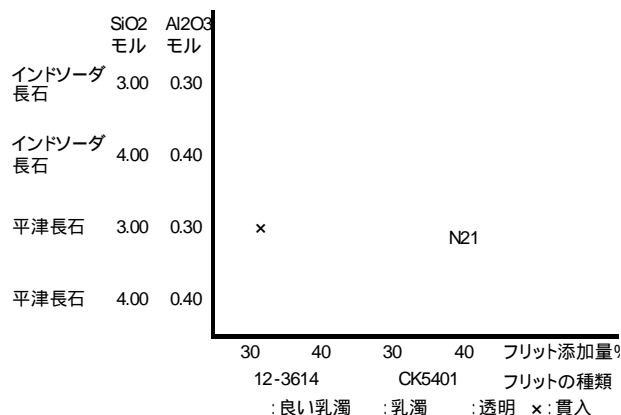


図6 乳濁釉の焼成結果



図 7 乳濁釉薬 (N21)

以上の低火度磁器に適合する透明釉, マット釉, 乳濁釉の原料調合割合を表 3 にまとめる.

表 3 低火度磁器に適合する透明釉・マット釉・乳濁釉の原料調合割合 (単位: wt%)

原材料名	透明釉 T21	マット釉 M21	乳濁釉 N21
インドソーダ長石	26.6	26.0	
平津長石			27.6
朝鮮カリツ	13.8	18.4	0.0
土岐口蛙目	0.0	0.0	10.7
福島珪石	26.7	23.6	27.4
鼠石灰	10.6	10.3	11.8
亜鉛華	7.9	7.7	8.0
ペタライト	9.5	9.3	9.6
矽酸ナトリウム	4.9	4.7	4.9
合計	100.0	100.0	100.0
フリット12-3614 (外割り)	70.0	30.0	
フリットCY-5401 (外割り)			40.0

#### 4. まとめ

新しい陶磁器素材である 1100 で焼結する低火度磁器に適合した釉薬として, 透明釉, マット釉及び乳濁釉を開発した. これら釉薬の開発により, 低火度磁器素地の製品化が可能となる. 今後は低火度磁器製品の開発を促進する.

#### 参考文献

- 1) 伊藤隆ほか: “低温焼成磁器用組成物および低温焼成磁器の製造方法”. 特開 2009-215115
- 2) 伊藤隆ほか, 「低温焼結性陶磁器素地の開発」, 平成 19 年度三重県科学技術振興センター工業研究部研究報告, No.32, p36-41 (2008)
- 3) 林茂雄ほか, 「低火度磁器に適した基礎釉薬の開発」, 平成 20 年度三重県工業研究所研究報告, No.33, p84-87 (2009).

(本研究は法人県民税の超過課税を財源としています)