

銅釉の発色に関する研究

倉地辰幸*1 荒木次夫*2 山田義和*2

Study on Copper Green Glaze Color-developing

Tatsuyuki KURACHI, Tsugio ARAKI and Yoshikazu YAMADA

Seto Ceramic Research Center, AITEC *1*2

銅釉を用いた陶器には、織部、辰砂、トルコ青等の焼物があるが、銅化合物の添加量や釉組成、焼成雰囲気、冷却条件等の相違によって、緑や赤、青など極端な発色の違いを見せる。本研究では、通常酸化焼成で緑色に発色する織部釉を取り上げ、添加物や釉組成、焼成雰囲気等を変化させて、還元焼成雰囲気でも安定した緑の発色が得られるような条件を見出した。この釉組成の最重要ポイントは石灰バリウム釉を基礎釉とすることであり、これに銅を添加するだけで還元焼成で緑に発色する配合も存在する。

1. はじめに

銅釉は、基本的には酸化焼成で緑に発色し、還元焼成で赤く発色すると言われているが、実際の発色は、より複雑多様であり、単純な先入観を持つことは危険である。逆に言えば、釉調合を工夫することで意外な発色を得られる可能性があるということである。

本研究は、一般に織部釉と呼ばれる銅緑釉の緑の発色を、酸化焼成ではなく還元焼成で得ることを目的として行ったものである。これにより一度の焼成で織部と辰砂を共存させるなど、陶磁器用釉薬に新しい可能性を見出すことができた。

2. 実験方法

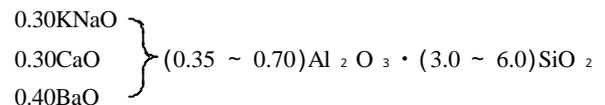
2.1 素地の設定

素地は、重量比で瀬戸産の水簾蛙目粘土：サラワク珪砂：インド長石 = 35 : 40 : 25 に設定した。これは 1275 から 1300 焼成で曲げ強度が大きく、鑄込み性能も良好な素地である¹⁾。

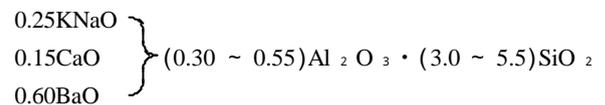
2.2 釉薬の設定

銅釉が還元で緑に発色するための一つの方法として、石灰バリウム釉²⁾の使用が考えられる。このため、表面性状に優れる石灰バリウム釉の基礎釉調合を見出すためテストピ - スを作成した。ゼ - ゲル式を以下に示す。

石灰バリウム釉 系列 1

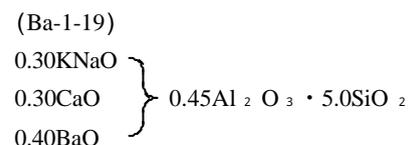
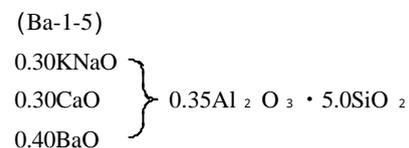


石灰バリウム釉 系列 2

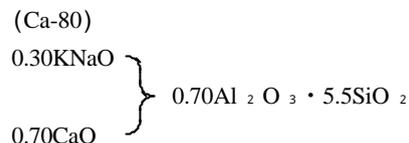
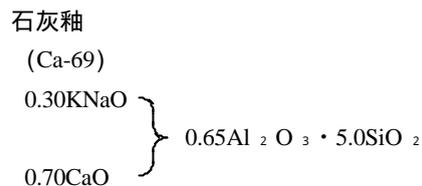
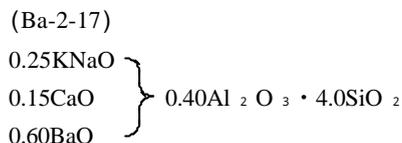
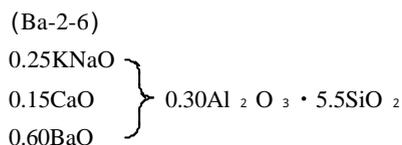


上記の試験から表面性状に優れる石灰バリウム釉を選択した。各系列について 2 配合ずつである。ゼ - ゲル式を以下に示す。

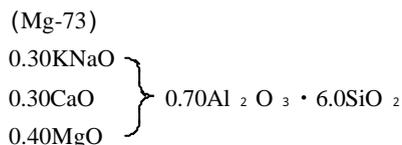
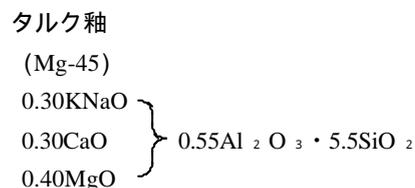
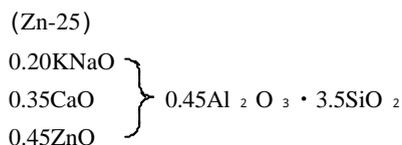
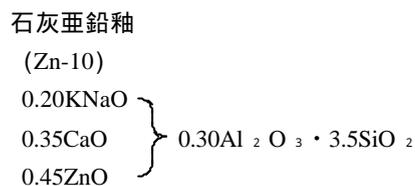
石灰バリウム釉



*1 瀬戸窯業技術センタ - 応用技術室 *2 瀬戸窯業技術センタ - 開発技術室



他に、石灰亜鉛釉とタルク釉及び石灰釉の3種の釉薬を、各2配合ずつ設定した。ゼ - ゲル式を以下に示す。



原料の分析値については表1に示す。焼成スケジュールは、室温から950℃まで酸化焼成(4~4.5h)、950℃から1280℃まで還元焼成(2.5~3h)、1280℃で1時間還元雰囲気でのキ - プである。

2.3 施釉焼成

上記全10配合100gに対して酸化銅3g、5g、8gを添加して混合、1配合に試験体9枚を使用して施釉し焼成した。焼成雰囲気は還元と酸化の2段階である。

2.4 添加物

酸化銅以外の添加物として、クロム、コバルト、骨灰を設定し、添加効果を試験した。

2.5 釉薬の改良

より安定的で美しい緑の発色を得るため、調合に改良を加え、焼成試験を繰り返した。

3. 結果及び考察

3.1 釉薬による発色の違い

石灰亜鉛釉、タルク釉及び石灰釉については、還元雰囲気では緑の発色は全く得られなかったが、石灰バリウム釉では、緑系の発色が得られた。特に(Ba-2-6)と

表1 使用原料の化学分析値

(単位: mass %)

原料名	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅	灼熱減量
長石	65.31	19.53	0.11	-	0.27	-	3.19	10.22	0.01	1.35
珪砂	99.33	0.19	0.03	-	0.01	-	0.04	0.02	-	0.28
蛙目粘土	49.01	34.41	1.18	0.52	0.24	0.27	0.12	1.45	-	12.71
石灰石	0.23	0.07	0.01	-	53.91	0.89	0.02	0.01	0.06	44.68
タルク	61.16	0.07	0.05	-	0.32	38.06	0.03	-	0.05	0.25
カオリン	46.51	37.55	0.13	0.07	-	-	0.08	0.01	0.15	15.43
骨灰	0.85	-	-	-	39.80	-	0.12	2.10	30.41	26.55

(Ba-2-17)については、より強く緑がかった発色が得られた。つまり、バリウム添加が焼成雰囲気の変化における、緑の発色の安定化に寄与することが明確になった。

3.2 骨灰の添加効果

上記10配合に対して骨灰 1g ずつ添加して同じように焼成し、リンの添加効果を試験した。結果は、石灰垂鉛釉、タルク釉及び石灰釉については、緑の発色は得られず、リンの添加効果は全く無かったが、石灰バリウム釉では、緑の発色がより強くなった。

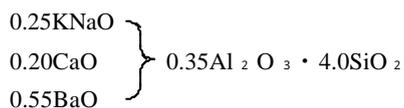
3.3 クロムとコバルトの添加効果

上記配合のうちでは(Ba-2-6)と(Ba-2-17)の発色が最も優れるという結果になった。これ以上バリウムを増量しても意味のある変化は見られなかったため、この2配合にクロム、コバルト、骨灰を添加して、より安定的で美しい緑の発色を得るべく試験を繰り返した。結果としてはコバルト添加は緑の発色には寄与しなかった。クロム添加は非常に緑の発色が強くなるため、酸化クロムの外割添加重量で 0.3 から 0.5 %程度が望ましいという結果になった。

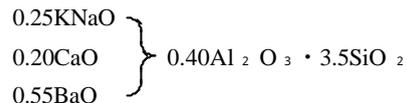
3.4 釉薬の改良

釉薬の配合に改良を加えて試験を繰り返した結果、以下の2種類の基本調合に、外割で酸化銅を4ないし5%、酸化クロムを0.3から0.5%、骨灰を0ないし1%添加した場合に、非常に魅力ある緑の発色を、1280 の還元焼成で得ることに成功した。

(Ba-2-17-A)



(Ba-2-17-B)



発色に渋みを加えるためには、酸化コバルトの0.1%程度の添加が効果的であった。また、より艶やかな表面性状を得るためには、石灰を外割で3%程度添加すれば良い。

さらに、(Ba-2-17-B)については、クロム無添加で酸化銅外割4%添加のみの配合において、やや青みがかった緑の発色を得ることに成功した。

4. 結 論

銅緑釉の緑の発色を、酸化焼成ではなく還元焼成で得ることを目的として研究を行い、以下の結果を得た。

- (1) 釉薬のうちでは石灰バリウム釉のみが銅釉の還元での緑の発色に寄与する。
- (2) リンの添加効果については、石灰バリウム釉では、緑の発色がより強くなり、発色の安定に寄与することが明確となった。
- (3) クロム添加は、安定的な緑の発色を狙ったものである。クロムの発色は非常に強いので添加量は少量でよい。外割添加重量で0.3から0.5%程度が望ましい。
- (4) クロム無添加、酸化銅外割4%添加のみの配合において、還元焼成で緑の発色を得ることができた。

文 献

- 1) 倉地辰幸, 荒木次夫, 安井克幸, 愛知県瀬戸窯業技術センタ - 報告, 27, 1-2, (1998)
- 2) 津坂和秀, “釉薬応用ノート”, 双葉社(1999), P.84