

多色化による景観材料の開発

永柳辰一 水野 修 松下福三 島村 修

Development of Colorful Landscape materials

by

Tatsuichi NAGAYANAGI, Osamu MIZUNO,

Fukuzo MATSUSHITA and Osamu SHIMAMURA

景観材料の担い手となる色感に優れた耐久性のある多色強化釉薬の開発を目的に部分安定化ジルコニア、易焼結性アルミナ等の釉薬強化剤を添加した光沢釉 2 種類、マット釉 2 種類をベースとして広範囲に調合試験を行った。この結果、光沢釉のゼーゲル式は、 $0.25\text{KNaO} \cdot 0.25\text{CaO} \cdot 0.25\text{ZnO} \cdot 0.10\text{Li}_2\text{O} \cdot 0.10\text{MgO} \cdot 0.05\text{BaO} \cdot 0.45\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 0.004\text{Y}_2\text{O}_3 \cdot 3.20\text{SiO}_2 \cdot 0.20\text{ZrO}_2$ で、 1200°C 焼成で良好な白色釉となる。さらに、 B_2O_3 を $0.05 \sim 0.20$ モル添加すると $1100 \sim 1220^\circ\text{C}$ の焼成温度に対応できる安定した強化白色光沢釉薬が得られた。一方、マット釉のゼーゲル式は、 $0.22\text{KNaO} \cdot 0.19\text{CaO} \cdot 0.34\text{ZnO} \cdot 0.15\text{MgO} \cdot 0.10\text{BaO} \cdot 0.36\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 0.003\text{Y}_2\text{O}_3 \cdot 2.00\text{SiO}_2 \cdot 0.15\text{ZrO}_2 \cdot 0.08\text{SnO}_2$ において焼成温度 1200°C で良好な白色マット釉となる。更に、両基礎釉に金属酸化物、顔料の添加で多色化を得た。また、耐久性の評価法としてビッカース硬度は $660\text{kgf}/\text{mm}^2$ となり、従来の釉より約 20% の向上となった。

1. まえがき

常滑・三河地域は、タイル・瓦・煉瓦等の都市景観づくりの担い手となる製品の産地である。景観材料においては、他産地との競合、代替え素材の普及に対応するためにも、多様な製品開発が業界から強く要望されている。このため、景観材料にふさわしい色感、材質に優れ、耐久性のある多色強化釉薬の開発を行った。景観材料の高品質化のために釉薬強化剤としてアルミナ、ジルコニア等を使用して $1100 \sim 1220^\circ\text{C}$ の範囲の 6 段階で焼成試験を実施した。基礎釉として光沢釉 2 種類、マット釉 2 種類をベースとして広範囲にアルミナ・シリカ比を変化させて試験し、各焼成温度別に良好な調合割合を求めた。また、各焼成温度別の基礎釉へ金属酸化物、顔料を添加し、釉の多色化を図った。釉の耐久性評価は硬度、耐薬品性によって行い、また、電子顕微鏡により釉表面を観察した。

2. 実験方法

2.1 使用原料

使用した原料は福島長石、釜戸長石、鼠石灰石、亜鉛華、炭酸バリウム、タルク、ユークリプタイト、ペタライト、フリット（日本フリット製 PN 5401）、アルミナ（住友化学製 AES-11、平均粒子径 $0.40\mu\text{m}$ ）、ジルコニア（第一稀元素製 HAY-3.0、平均粒子径 $0.42\mu\text{m}$ ）、金属酸化物及び各種顔料を使用した。

2.2 使用素地

使用素地は $1100 \sim 1160^\circ\text{C}$ 焼成用として半胴土（とこなめ焼協同組合製）、 $1180 \sim 1220^\circ\text{C}$ 焼成用として白 5 号土（同）を用いた。また、市販タイル素地、瓦素地、煉瓦素地を用いた。

2.3 基礎試験の釉組成の割付け

2.3.1 強化白色光沢釉

$1180 \sim 1220^\circ\text{C}$ 用強化白色光沢釉のゼーゲル式を基礎釉 1、基礎釉 2 に示す。基礎釉 1 は、ブリストル釉薬にジルコニアを添加して白色釉薬とした。基礎釉 2 は、より低温焼成可能な釉薬として、 Li_2O と ZrO_2 を添加して白色釉薬とした。

基礎釉 1

0.28KNaO	0.35~0.45	2.50~4.00
0.27CaO		
0.27ZnO		
0.13MgO		
0.05BaO		
	Al ₂ O ₃	SiO ₂
	0.004Y ₂ O ₃	0.20 ZrO ₂

基礎釉2

0.25KNaO	0.35~0.50	2.50~4.00
0.25CaO		
0.25ZnO		
0.10Li ₂ O		
0.10MgO		
0.05BaO	Al ₂ O ₃	SiO ₂
	0.004Y ₂ O ₃	0.20 ZrO ₂

2.3.2 強化白色マット釉

1200℃用マット釉のゼーゲル式を基礎釉M-1に示す。酸化亜鉛とアルミナによるマット化を安定させるためMgO, ZrO₂及びSnO₂を添加した。

基礎釉M-2は、より低温釉とするために、B₂O₃とLi₂Oを添加した。

基礎釉 M-1 1200℃焼成用マット釉

0.22KNaO	0.31~0.46	1.80~3.30
0.19CaO		
0.34ZnO		
0.15MgO		
0.10BaO		
	Al ₂ O ₃	SiO ₂
	0.003Y ₂ O ₃	0.15 ZrO ₂
		0.08 SnO ₂

基礎釉 M-2 1180℃焼成用マット釉

0.18KNaO	0.23~0.38	1.80~3.30
0.19CaO		
0.34ZnO		
0.14MgO		
0.10BaO		
0.05Li ₂ O	Al ₂ O ₃	SiO ₂
	0.003Y ₂ O ₃	0.15 ZrO ₂
		0.08 SnO ₂
		0.05 B ₂ O ₃

2.4 応用試験の釉組成

2.4.1 強化白色光沢釉

基礎釉の試験結果から、基礎釉2のアルミナを0.43~0.47モルの範囲で、シリカを3.00~3.40モルの範囲で行った。また、より低温釉とするためにB₂O₃を0.05~0.20モル添加した。

2.4.2 強化白色マット釉

基礎試験の結果からマット釉M-3は、アルミナを0.34~0.38モルの範囲で、シリカを1.80~2.20モルの範囲で間隔を狭くして行った。また、マット釉M-4は、アルミナを0.26~0.30モルの

範囲で、シリカを1.80~2.20モルの範囲で行った。

2.5 粉碎及び施釉方法

らいかい機を用いて調合物100gと水60gを標準として2時間粉碎した。施釉は浸掛け法で行った。また、試作用はポットミル粉碎、施釉は浸掛け法、吹付け法で行った。

2.6 粒度分析

応用試験に使用した光沢釉について粒度分析を行った。

2.7 焼成条件

電気炉で昇温速度180℃/h, 1100~1220℃の6段階で焼成し、1時間保持後、自然冷却した。

2.8 釉の評価試験

(1) 釉表面の鉱物の同定

強力X線回折装置を用い釉表面の鉱物を同定した。

(2) 釉表面の硬度試験

微小硬度計を使用し、釉表面の硬度を測定した。

(3) 釉の熱膨張試験

横型式熱膨張測定装置を用いて素地及び釉薬の熱膨張を測定した。

(4) 釉の耐薬品性試験

耐酸試験については、3% HCl溶液、耐アルカリ試験は、3% NaOH溶液で48時間浸漬後外観の異常の有無を観察した。

(5) 電子顕微鏡による観察

分析電子顕微鏡により釉の表面を観察し、EDX(エネルギー分散型X線分光法)により微小領域の元素分析を行った。

2.9 釉の多色化

各焼成温度別の釉に、金属酸化物及び顔料を添加して釉の多色化を図った。

2.10 試作

市販のタイル素地、煉瓦素地、瓦素地を用いて試作した。

3. 実験結果及び考察

3.1 基礎試験

3.1.1 強化白色光沢釉

2.3に割付けた基礎釉1を1180~1220℃で焼成した白色光沢釉の釉性状を図1に示す。図から1200℃焼成で良好な釉のゼーゲル式は、アルミナ

が0.40モルで、シリカが3.0モル付近であった。

基礎釉2を1160～1220℃で焼成した白色光沢釉の表面性状を図2に示す。図から1180℃焼成で良好な釉のゼーゲル式は、アルミナが0.45モルで、シリカが3.0モルであった。この釉組成を基準として、 B_2O_3 を0.05～0.20モルまで添加すると最適焼成温度は、1200℃から1120℃へと低下し、各焼成温度別の基礎釉が得られた。また、基礎釉2は、 Li_2O を含むため B_2O_3 を添加しても熱膨張率はさほど変化がなく、耐久性にも支障がないと考えられる。

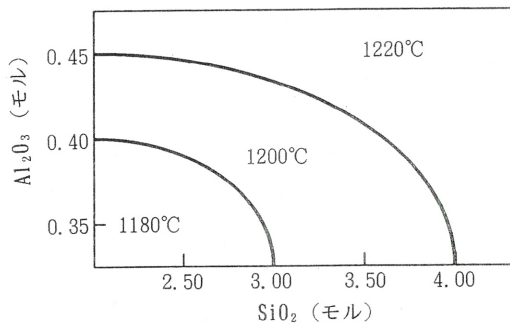


図1 1180～1220℃焼成用
基礎釉1 強化白色光沢釉

図1で、1180℃焼成で白色光沢釉の性状を示した所は、アルミナが0.35モルでシリカが2.50モルにあり、1220℃焼成ではアルミナが0.45モルでシリカが4.00モルであった。従って、1200℃焼成で良好な釉性状となるのは、アルミナが0.40モルでシリカが3.0～3.5モルの範囲となり、高温焼成では、安定した釉と言えるがこの組成範囲で低温焼成の基礎釉に改良するには、耐久性を考慮した場合やや無理がある。図2は、アルミナが

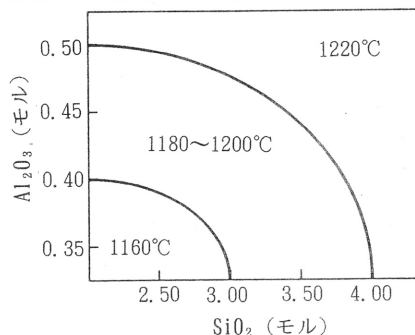


図2 1160～1220℃焼成用
基礎釉2 強化白色光沢釉

0.35～0.50モルでシリカが2.50～4.00モルの広範囲にもかかわらず1180～1220℃焼成での白色光沢釉の表面性状となった所は、基礎釉1と比べ大巾に広がった。この事から基礎釉2の組成をさらに改良して低温焼成用の応用試験釉とする。

3.1.2 強化白色マット釉

図3と図4は、焼成温度1200と1180℃に対応できるマット釉の組成を見出すための試験である。基礎釉M-1は、1200℃用の白色マット釉でアルミナ0.36モルでシリカが2.00モルの付近で良好なマット釉となった。また、基礎釉M-2は、1180℃用の白色マット釉で、アルミナが0.28モル、シリカが2.20モル付近でソフトで良好な白色マット釉となった。

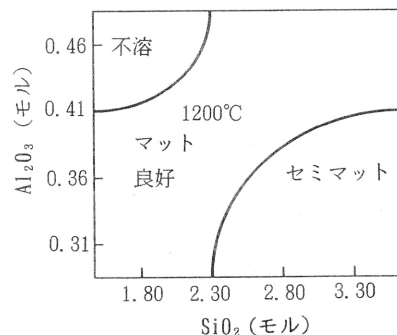


図3 1200℃焼成用マット釉
(基礎釉 M-1)

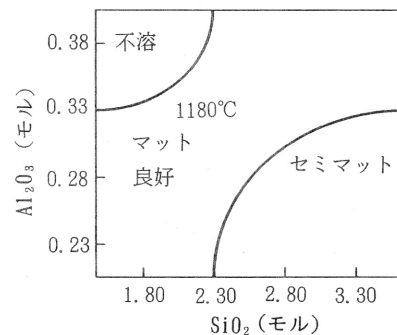


図4 1180℃焼成用マット釉
(基礎釉 M-2)

3.2 応用試験

強化白色光沢釉は、基礎釉2を基に、 B_2O_3 を0.05モル添加した1180℃用釉、0.10モル添加した1160℃用釉、0.15モル添加した1140℃用釉、

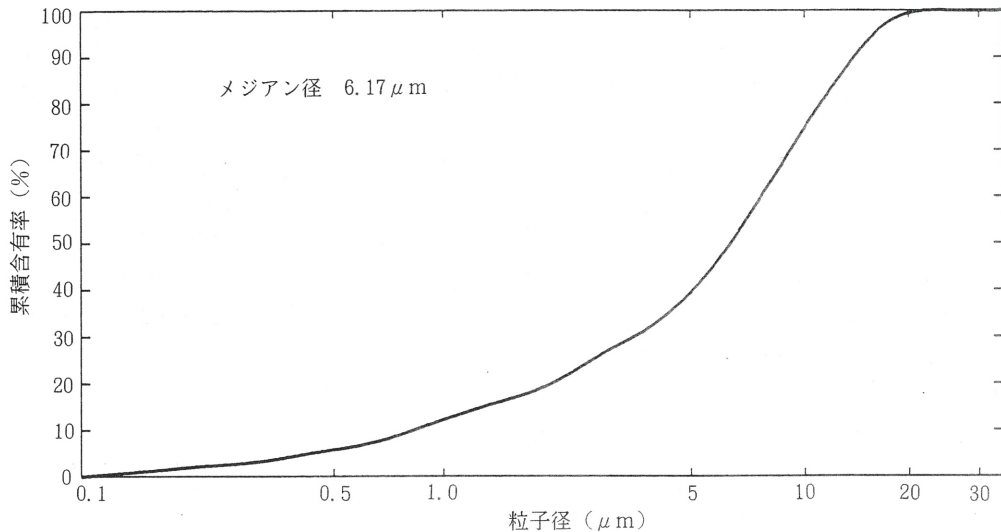


図5 1180℃用強化白色光沢釉の粒度分布曲線

0.20モル添加した1120℃用釉及び B_2O_3 無添加の5種類である。

強化白色マット釉は、高温焼成用M-1と中火度焼成用M-2である。

3.2.1 強化白色光沢釉（基礎釉2改良）

(1) 粒度分析

釉の調整過程において粒度は釉の表面性状に大きく作用するため各焼成温度別の代表釉について3kg調合で18時間ポットミル粉碎した結果、平均粒子径は6.2～8.3 μm の範囲にあり、ジルコニア、アルミナを添加しても沈降することなく作業性も良好であった。

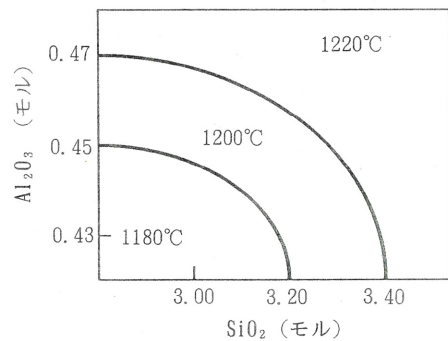
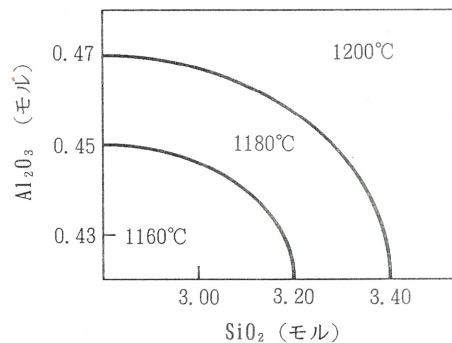
図5に1180℃用の強化白色光沢釉の粒度分布曲線を示す。

(2) B_2O_3 無添加釉の焼成性状

焼成温度1180～1220℃の釉性状を図6に示す。アルミナ-シリカを変化させた結果、アルミナが0.43モルでシリカが3.0モルでは、焼成温度1180℃で光沢大の白色釉となり、アルミナが0.45モルでシリカが3.3モルでは1200℃焼成で白色光沢大の釉性状となる。また、アルミナが0.47モルでシリカが3.4モルの所は、焼成温度1220℃で光沢大の白色釉となる。

(3) B_2O_3 0.05モル添加した釉の焼成性状

焼成温度1160～1200℃の釉性状を図7に示す。アルミナ-シリカ比を変化させた結果、アルミナ

図6 1200℃焼成用強化白色光沢釉 (B_2O_3 無添加)図7 1180℃焼成用強化白色光沢釉 (B_2O_3 0.05モル添加したもの)

が0.43モルでシリカが3.0モルでは、焼成温度が1160℃で白色光沢の良い釉性状となり、アルミナが0.45モルでシリカが3.20モルでは1180℃で白色光沢大の釉性状となる。また、アルミナが0.47モルでシリカが3.4モルでは焼成温度が1200℃で白色光沢の良い釉性状となる。

(4) B_2O_3 0.10モル添加した釉の焼成性状

焼成温度1140～1180℃の釉性状を図8に示す。

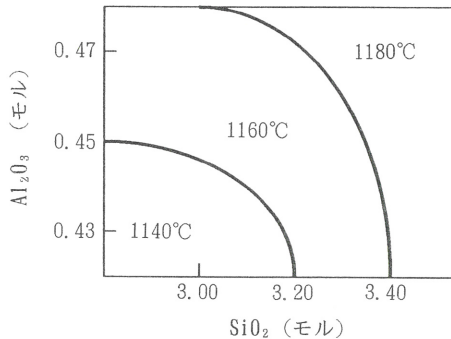


図8 1160℃焼成用強化白色光沢釉
(B_2O_3 0.10モル添加したもの)

アルミナ-シリカ比を変化させた結果、アルミナが0.43モルでシリカが3.0モルの所は焼成温度1140℃で良好な白色光沢釉となる。また、アルミナが0.45モルでシリカが3.2モルの所は1160℃で白色光沢大の釉性状を示した。1180℃焼成ではアルミナが0.47モルでシリカが3.2モルで白色光沢大の釉性状となった。

(5) B_2O_3 0.15モル添加した釉の焼成性状

焼成温度1120～1160℃の釉性状を図9に示す。

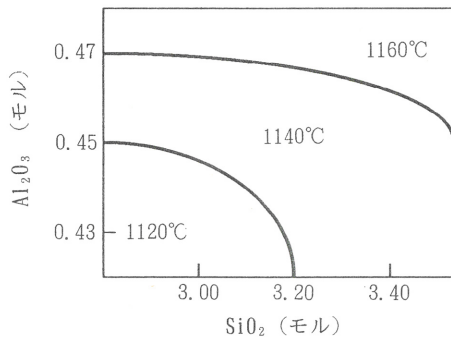


図9 1140℃焼成用強化白色光沢釉
(B_2O_3 0.15モル添加したもの)

アルミナ-シリカ比を変化させた結果、アルミナが0.43モルでシリカが3.0モルでは、焼成温度1120℃で光沢の良い釉性状となった。また、アルミナが0.45モルでシリカが3.2モルでは1140℃で白色光沢釉となり、さらに、アルミナが0.47モルでシリカが3.4モルの所は、焼成温度は1160℃まで使用できる。

(6) B_2O_3 0.20モル添加した釉の焼成性状

焼成温度1100～1140℃の釉性状を図10に示す。

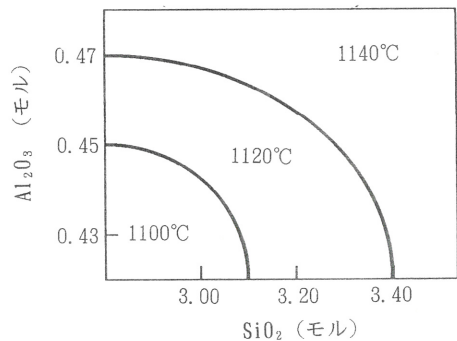


図10 1120℃焼成用強化白色光沢釉
(B_2O_3 0.20モル添加したもの)

アルミナ-シリカ比を変化させた結果、アルミナが0.43モルでシリカが3.0モルでは、焼成温度が1100℃で光沢の良い釉性状を示した。また、アルミナが0.45モルでシリカが3.2モルでは焼成温度1120℃で良好な白色光沢釉を得た。さらに、アルミナが0.47モルでシリカが3.4モルになると焼成温度1140℃まで使用が可能となる。

次に、強化白色光沢釉の内、所定の焼成温度に適した各種の最良好となった調合割合を表1に示す。

(7) X線回折による釉表面の鉱物の同定

強化白色光沢釉のX線回折結果を表2に示す。この表より、ジルコニアを添加した組成では釉表面にケイ酸ジルコニウムとジルコニアの結晶が析出していた。

(8) 釉表面の硬度

表1の強化白色光沢釉の硬度を表2に示す。また、ガラス、陶器釉、強化釉の平均的な硬度を図11に示す。例えば、織部釉の540kgf/mm²である。この図から推定するとアルミナ・ジルコニアの入った釉組成では従来のプリストル釉等に比較して硬度は大きくなり耐久性が期待できる。

表1 強化白色光沢釉及び透明釉の調合割合
(%)

B ₂ O ₃ 添加モル	0.20	0.15	0.10	0.05	—	透明釉
Al ₂ O ₃ "	0.45	0.45	0.45	0.45	0.45	0.30
SiO ₂ "	3.20	3.20	3.20	3.20	3.20	3.20
原料 \ °C用	1120	1140	1160	1180	1200	1200
福島長石	27.4	31.5	35.6	39.8	44.1	—
釜戸長石	—	—	—	—	—	72.3
亜鉛華	4.9	5.1	5.3	5.6	5.8	7.6
ユークリプタイト	6.0	6.3	6.6	6.9	7.2	—
炭酸バリウム	2.7	2.8	2.8	2.8	2.8	5.9
鼠石灰石	6.0	6.3	6.6	6.9	7.2	9.4
タルク	3.5	3.5	3.6	3.6	3.6	—
ジルコニア	7.1	7.1	7.2	7.2	7.3	—
アルミナ	5.8	5.1	4.4	3.6	2.9	—
福島珪石	25.3	23.8	22.3	20.7	19.2	—
PN5401フリット	11.4	8.6	5.8	2.9	—	—
カオリン	—	—	—	—	—	1.6

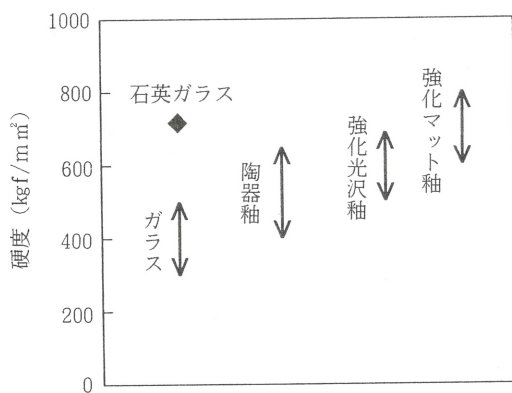


図11 ビッカース硬度

(9) 釉の熱膨張試験

使用した素地及び強化白色光沢釉薬の熱膨張曲線図を図12に示す。図から試験釉はすべて圧縮釉となり貫入は発生しなかった。また、強化白色光沢釉の熱膨張係数を図13に示す。図より、実測値とアップンの計算値は一致した傾向を示した。計算値でも傾向は一致した。

(10) 釉の耐薬品性試験

表1に示した強化白色光沢釉のうち、焼成温度1120、1140°C用の基礎釉について顔料及び金属酸

化物を添加した多色釉の耐酸・耐アルカリ試験を行った結果、すべて異常は認められなかった。また、釉表面の変化もなく異常は認められなかった。

3.2.2 強化白色マット釉

(1) 焼成性状

基礎試験で良好な釉性状を得た基礎釉M-3及びM-4のマット釉のアルミナ・シリカ比を変化させた焼成性状を図14、15に示す。

図14から、アルミナが0.34モルでシリカが1.8モルから2.2モルとアルミナが0.36モルでシリカが2.2モルとアルミナが0.38モルでシリカが2.2モルの所は、焼成温度1180°Cで良好なマット釉となった。

また、アルミナが0.36モルでシリカが1.80モルと2.0モルの所は、焼成温度1200°Cで良好な白色マット釉となった。アルミナが0.38モルでシリカのモル比

表2 B₂O₃添加による各種焼成温度別釉のX線回折及び硬度 (強化白色光沢釉)

B ₂ O ₃ 添加 (モル)	焼成温度 (°C)	硬 度 (kgf/mm ²)	生成鉱物相		
			珪コ	珪コニ	石英
—	1200	686	○	△	△
0.05	1180	678	○	△	△
0.10	1160	657	○	△	△
0.15	1140	690	○	△	△
0.20	1120	595	○	△	△
透明釉	1200	552	×	×	○

○: やや多く検出 △: 検出 ×: 検出なし

が1.8では、焼成温度1220°Cで良好な白色マット釉となった。

図15は、1180°C焼成用マットの性状図であるが、アルミナが0.26モルでシリカが1.8モルから2.2モルの所とアルミナが0.28モルでシリカが2.2モルの位置は、1160°Cで良好な白色マット釉となる。

図16は、アルミナが0.28モルでシリカが2.0モルの所は、焼成温度1180°Cで良好な白色マット釉となった。アルミナが0.30モルでシリカが1.80モルでは、焼成温度1200°Cで良好な白色マット釉

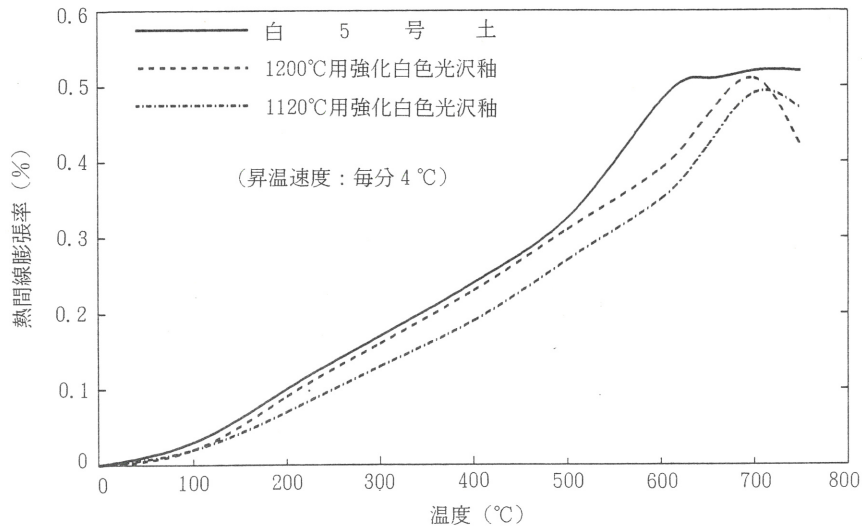


図12 素地・釉薬の熱膨張曲線

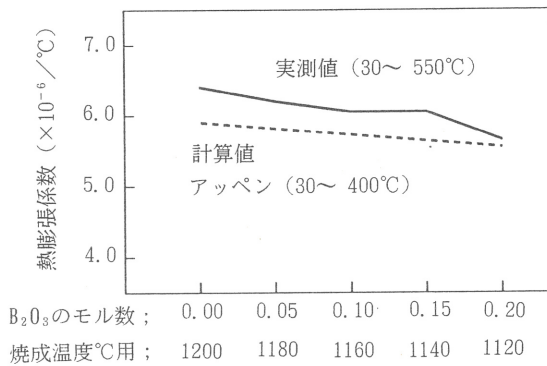
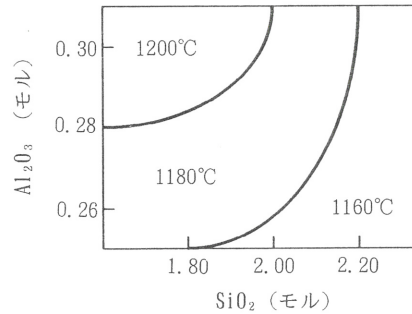
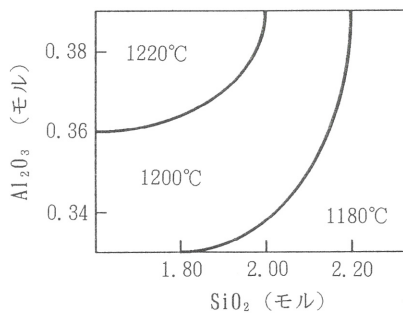


図13 強化白色光沢釉の熱膨張係数

図15 1180°C焼成用強化白色マット釉
(基礎釉M-4)図14 1200°C焼成用強化白色マット釉
(基礎釉M-3)

となった。次に、強化白色マット釉M-3, M-4の内、所定の焼成温度に適した調合割合を表3に示す。

(2) X線回折による釉表面の鉱物の同定

強化白色マット釉のX線回折においても強化白色光沢釉の結果と同様にジルコニアを添加した組成では釉表面にケイ酸ジルコニウムとジルコニアの結晶が析出していた。

(3) 釉表面の硬度

表3に強化白色マット釉の硬度を示す。M3-4とM3-5は680及び674kgf/mm²となり、M4-4とM4-5は648及び633kgf/mm²となった。アルミナとシリカのモル数の増加により硬度は増大した。

(4) 電子顕微鏡による観察

強化白色マット釉M3-5を1200°Cで焼成したもの電子顕微鏡による観察結果を写真1に示す。また、写真の1, 2, 3の化学組成を表4に示す。1の結晶はジルコニアとアルミナ、亜鉛を多く含む細かい球状粒子である。2はジルコニアとシリ

表3 強化白色マット釉の調合割合及び硬度

	(%)			
M-1, M-2 改良	M3-4	M3-5	M4-4	M4-5
Al ₂ O ₃ (モル)	0.36	0.36	0.28	0.28
SiO ₂ (モル)	1.80	2.00	1.80	2.00
原料 \ °C用	1200	1200	1180	1180
福島長石	50.2	48.2	37.2	35.4
亜鉛華	10.2	9.8	10.2	9.8
ユークリプタイト	—	—	4.4	4.2
炭酸バリウム	7.4	7.0	7.6	7.2
鼠石灰石	7.0	6.8	7.0	6.6
タルク	7.0	6.8	6.8	6.4
ジルコニア	7.0	6.8	7.2	7.0
アルミナ	5.2	5.0	3.0	2.8
福島珪石	1.4	5.6	8.0	12.2
PN5401フリット	—	—	4.0	3.8
酸化錫	4.4	4.2	4.6	4.4
硬度(kgf/mm ²)	680	674	648	633

表4 マット釉表面の化学組成

M3-5 (EDXにより分析)

化学式	分析値 (%)		
	1	2	3
SiO ₂	30.0	34.6	59.5
Al ₂ O ₃	5.9	1.5	13.5
ZrO ₂	42.0	57.0	1.9
ZnO	10.4	3.0	10.0
CaO	3.1	0.7	7.1
BaO	2.9	0.5	3.5
MgO	2.0	1.1	2.0
K ₂ O	2.0	0.4	2.4
SnO	1.8	1.3	0.3

カを含む大きな角形粒子である。化学組成から2はジルコニアとシリカのモル比が1対1となっている。そのため、角形粒子はジルコンと推定される。3は亜鉛、石灰、バリウムを含むケイ酸塩ガラスである。

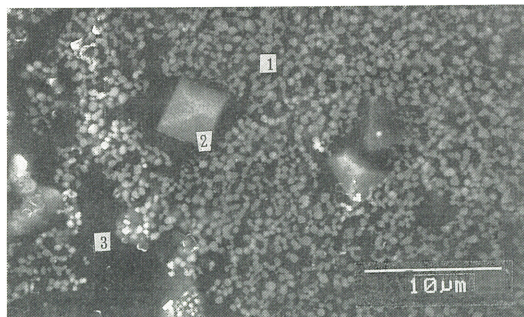


写真1 強化マット釉の画像解析

表5 多色化による顔料・金属酸化物の割合

呈色	成分	品番	割合 (%)
グリーン (1)	Zr-Si-Pr系顔料	P-40	2.0
	Sn-V系顔料	M-600	4.0
	Zr-Si-V系顔料	M-6000	4.5
グリーン (2)	Cr-Co-Al-Zn系顔料	M-416	3.0
	Zr-Si-Cr-Fe系顔料	M-55	1.0
ブルー (1)	Zr-Si-V系顔料	T-503	1.4
	Zr-Si-Pr系顔料	B-85	0.5
ブルー (2)	Sn-Cr-Co系顔料	M-10	1.0~4.0
	Co-Si系顔料	M-10	2.0
ブルー (3)	Co-Zn-Al系顔料	T-503	0.5
	Co-Zn-Al系顔料	K-89	1.4
グレー (1)	Sn-Sb系顔料	B-85	0.5
	Co-Zn-Al系顔料	T-503	0.5
グレー (2)	Zr-Si-Ni-Co系顔料	H-150	3.0
	Sn-Sb系顔料	B-85	3.0
グレー (3)	NiO		2.0
	CoO		0.5
グレー (4)	Fe ₂ O ₃		0.6
	MnO ₂		0.1
ベージュ (1)	CoO		0.2
	Al-Zr-Fe-Cr系顔料	T-12	3.0
ベージュ (2)	Sn-Cr系顔料	M-9	1.0
	Al-Cr-Zr系顔料	G-250	0.3
ベージュ (3)	Zr-Si-V-Pr-Fe系顔料	M-69	4.0
	Al-Zr-Fe-Cr系顔料	T-12	0.5
黄色	Fe ₂ O ₃		2.0
	TiO ₂		2.0
アイボリー	TiO ₂		2.0~4.0
ピンク (1)	Zr-Si-Se系顔料	G-10	2.0
	Sn-Cr系顔料	SP-75	0.5
ピンク (2)	SnO ₂		2.0
	Zr-Si-Se系顔料	G-10	5.0
	SnO ₂ 系顔料		5.0

3.3 釉の多色化

表1に示した強化白色光沢釉の各焼成温度別釉薬と表3のマット釉に多色化のため、金属酸化物及び顔料を添加し多数のアースカラーを得た。代表的な焼成呈色を表5に示す。

基礎釉M3-5、4-5の強化白色マット釉について顔料及び金属酸化物を添加した多色釉の耐酸・耐アルカリ試験をしたが、すべて異常は認められなかった。

3.4 試作

写真2に瓦、写真3にタイルの試作品と写真4に煉瓦、瓦の試作品を示す。

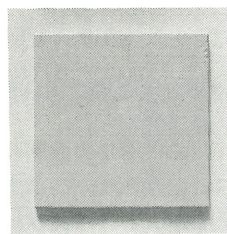


写真3 タイルの試作品

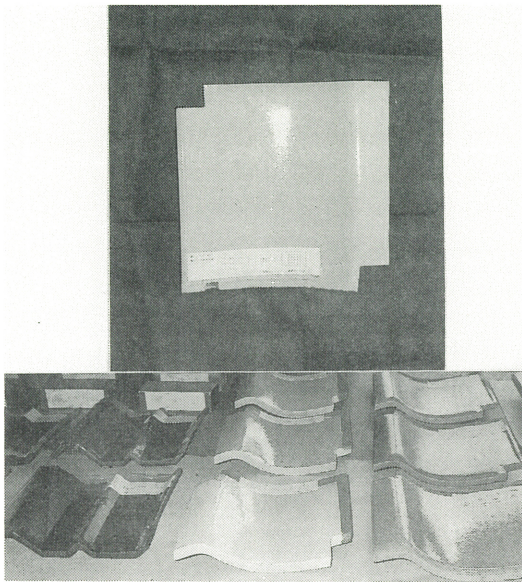


写真2 瓦の試作品

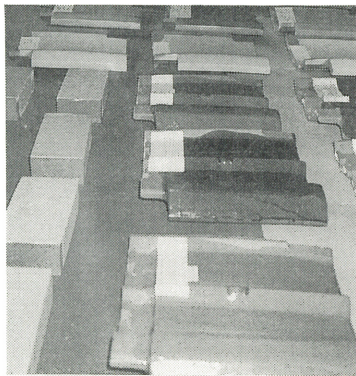


写真4 煉瓦・瓦の試作品

0.25KNaO, 0.25CaO, 0.25ZnO, 0.10Li₂O, 0.10MgO, 0.05BaO, 0.45Al₂O₃, 0.004Y₂O₃, 3.20SiO₂, 0.20ZrO₂となり、さらにB₂O₃を0.20モル添加すると焼成温度は1120℃まで低下し、安定した強化白色光沢釉となった。

(4) 焼成温度1200℃で良好な強化白色マット釉となったゼーゲル式は、0.22KNaO, 0.19CaO, 0.34ZnO, 0.15MgO, 0.10BaO, 0.36Al₂O₃, 0.003Y₂O₃, 2.00SiO₂, 0.15ZrO₂, 0.08SnO₂であった。

(5) 金属酸化物、顔料の添加で多数のアースカラーを得た。また、実物大のタイル、瓦、煉瓦等を試作した。

(6) 電子顕微鏡観察によりジルコニア、アルミナの添加釉にジルコン及びジルコニア結晶の析出が認められ、ビッカース硬度は660kgf/mm²となり、従来釉の540kgf/mm²に対し約20%の向上となった。

(7) 耐酸・耐アルカリ試験でも異常は認められなかった。

参考文献

- 1) 国枝, 熊谷, 三重県窯業試験場年報, 昭和61年度 (Vol.21), 陶磁器釉薬の熱膨張係数計算因子について, 11~25
- 2) D.G.Holloway, ガラスの物理, 136~142, 共立出版 (1977)

4. まとめ

- (1) 景観材料の担い手となる色感, 素材に優れた耐久性のある多色強化釉薬を開発した。
- (2) ジルコニア, アルミナの添加による光沢釉2種類, マット釉2種類をベースとして焼成温度1100~1220℃の各温度別の釉組成を見出した。
- (3) ジルコニア・アルミナ等を添加した強化白色光沢釉のうち1200℃で良好となったゼーゲル式は,

