



焼成雰囲気を変えて焼成した青磁釉の釉色調、鉄価数及び釉構造の関係調査

杉山信之¹，小島均²，松川健³

1 あいち産業科学技術総合センター，2 茨城県産業技術イノベーションセンター笠間陶芸大学校，
3 茨城大学フロンティア応用原子科学研究センター

キーワード：笠間焼，青磁釉薬，鉄価数・構造，XANES

1. 背景と研究目的

笠間焼陶磁器に用いられる鉄釉(鉄化合物を添加した色釉薬)は、青色などの色彩を発色可能な釉薬である^[1]。鉄濃度 1%程度 of 鉄釉薬(青磁釉)は、3種類の焼成条件(1:酸化-酸化処理(OFOF), 2:還元-酸化処理(RFOF), 3:還元-還元処理(RFRF))に依存して、黄色(OFOF)と青色(RFOF, RFRF)へと着色される。この青磁釉の色調は、焼成条件で鉄価数比(Fe^{2+}/Fe^{3+} 比)の変化により色が変化することが X 線吸収分光(XAFS)で明らかにされているが^[2]、その発色起源は不明瞭である。笠間焼釉薬の発色起源解明のために、鉄価数比だけでなく”局所構造”も考慮した分析が必要であると考えて、X 線吸収微細構造(XANES)スペクトルから青磁釉試料の色調に関する鉄価数と構造の相関を調査する。

2. 実験内容

過去の実験より、鉄価数比は釉薬表面より 10 μm 以上深い箇所に依存していた。異なる 3 種類の焼成条件(1: OFOF, 2: RFOF, 3: RFRF)で作製した青磁釉表面から深さ方向に 100 μm 研削した試料 (20 mm×25 mm×5 mm) を準備した。XAFS 計測は、あいちシンクトロン BL5S1 で蛍光収量法にて実施した。比較のために、数種類の標準試料も計測した(透過法)。

3. 結果および考察

Fig.1 は、Fe-K 端における OFOF, RFOF, RFRF 試料の XANES スペクトルである(7.1-7.2 keV)。OFOF 試料は、7.112 keV にプレエッジと 7.114 keV からエッジジャンプが観測された。一方で RFOF と RFRF 試料は、7.110 keV にプレエッジと 7.113 keV からエッジジャンプを示した。Fe-K 端のプレエッジは、鉄価数と鉄の構造情報(鉄周りの配位数)を評価できることが報告されている^[3]。 Fe^{2+} と Fe^{3+} でプレエッジ位置が約 1.4 eV 異なり、かつその強度は 4 配位と 6 配位で異なる。OFOF 試料と RFOF(RFRF)試料のプレエッジスペクトルは、ピーク位置が 1.2 eV 異なるためそれぞれ Fe^{3+} と Fe^{2+} である。強度は標準試料($\alpha-Fe_2O_3$: Fe^{3+} で 6 配位、FeO: Fe^{2+} で 6 配位)よりも高いため、両者は 4 配位の構造であると推測した。よって、3 種類の笠間焼青磁釉は上記鉄価数と 4 配位構造により、焼成条件に依存した黄色と青色の色調が得られたと考えられる。

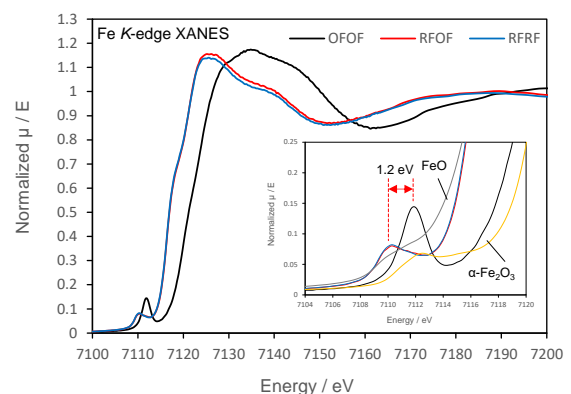


Fig.1 笠間焼青磁釉(OFOF, RFOF, RFRF)の XANES スペクトル。挿入図: プレエッジ周りの拡大図

4. 参考文献

1. 小島均、他、平成 29 年度やきもの焼成技術研究会報告会
2. H. Katsuki, *et al.*, J. Ceramic Soc. Jpn., 122, (2014) 520.
3. M. Wilke, *et al.*, Am. Miner., 86, (2001) 714.