

# ゼーゲル式を用いた銅の発色(青～緑)に関する研究

## — 緑色に発色する釉薬の開発 —

愛媛県立松山南高等学校 小梅ブラザーズ

中村光汰 西坂大樹 廣瀬蓮 指導教諭 石丸靖夫

### 1. はじめに

先行研究<sup>1)2)</sup>を参考にしたイチヨウの葉の灰を使った実験で、酸化銅(Ⅱ)の発色が、福島長石(以後長石)との混合ではマット調の緑色、ガラス粉(以後フリット)との混合では透明な青色になることがわかった。この発色の違いに疑問を感じ、自分たちが作った釉薬のゼーゲル式を作成し<sup>3)</sup>、それをグラフ上に表示することで、釉薬のゼーゲル式と発色の関係を解明することを目標として研究を行った。さらに、廃棄される七折梅の枝の灰を用いて、七折小梅(図1, 図2)のような緑色に発色する釉薬の開発を目標に研究を行った。



図1 七折小梅

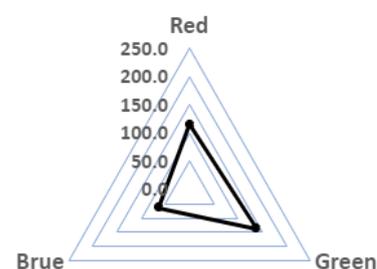


図2 七折小梅のRGB

なお釉薬とは陶器の表面に塗るもので、陶器を保護するガラス層のことであり、ゼーゲル式とは釉薬に含まれるアルカリ酸化物の合計を1molとしたときのSiO<sub>2</sub>(シリカ)とAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(アルミナ)の量(mol)を表したものである。

### 2. 予備実験

梅の枝の灰とフリット(または長石)を2:8で混合し、酸化銅(Ⅱ)の割合を変更して素焼板に15秒間掛けたものを1250℃で還元焼成した。それぞれの釉薬のゼーゲル式を図3および表1・表2に示し、発色をRGBレーダーチャートで表した(図4～7)。この実験でのフリットの位置(①)長石の位置(④)を基準とし、フリットを用いて④の位置で小梅のような緑色に発色する釉薬の開発を目標に研究を行った。また今後は、この実験でフリットを用いたときに最も発色が良いと感じた酸化銅(Ⅱ)3%を使用する。

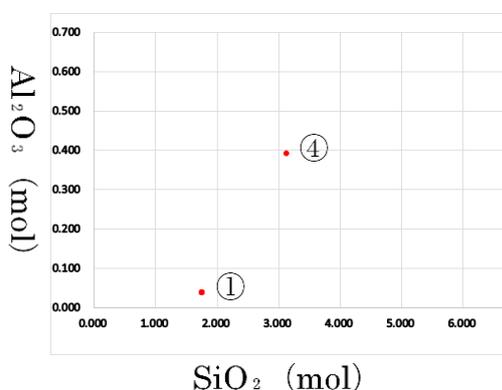


図3 ゼーゲル式のグラフ

表1 ①のゼーゲル式

0.35(mol)Na <sub>2</sub> O	} 3.13(mol)SiO <sub>2</sub>	
0.08(mol)MgO		0.39(mol)Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
0.57(mol)CaO		

表2 ④のゼーゲル式

0.31(mol)Na <sub>2</sub> O	} 1.75(mol)SiO <sub>2</sub>	
0.18(mol)MgO		0.04(mol)Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
0.51(mol)CaO		



図4 ①の釉薬

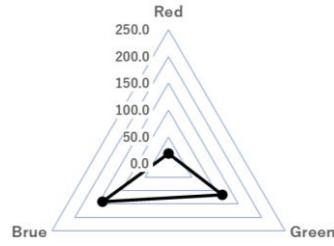


図5 ①のRGB



図6 ④の釉薬

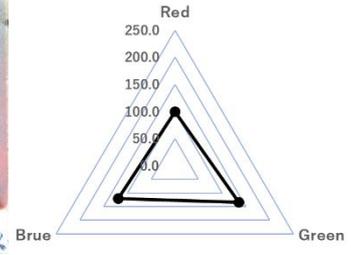


図7 ④のRGB

### 3. 本実験

#### (1) 実験1 ゼーゲル式のグラフ上の位置変更による発色の違い

ゼーゲル式のグラフ(図8)において、フリットの釉薬に $\text{SiO}_2$ (シリカ)と $\text{Al}_2\text{O}_3$ (アルミナ)を加えて、フリットの位置(①)から長石の位置(④)まで等間隔になるように②、③を調整した。また、同じように④の位置を超えて⑤、⑥を設定した。さらに、⑤、⑥の釉薬にシリカと媒溶剤の $\text{Li}_2\text{O}$ を加えて、④の位置に調整したものを⑦、⑧とした。(⑤→⑦、⑥→⑧)

①から⑥にかけて青色から緑色に変化した(図9)。⑦、⑧では、④と同じような緑色の発色が見られた(図10~図12)。

#### (2) 実験2 ⑥から④の位置変更(⑧)での媒溶剤の種類と混合比の変化による発色の違い

実験1の④の釉薬のRGBの値が小梅のもの(図2)と違っていたので、媒溶剤の種類と混合比を変化させることで発色にどのような違いがあるかを調べた。

実験1では⑥から④まで移動させるときに媒溶剤として $\text{Li}_2\text{O}$ のみを使用したが、 $\text{Li}_2\text{O}$ と $\text{MgO}$ 、 $\text{Li}_2\text{O}$ と $\text{ZnO}$ の混合物に変更し、その混合比も変更した。

どの釉薬でも同じような緑色の発色が見られた(図13~図16)。しかし、 $\text{Li}_2\text{O}:\text{MgO}$ が1:3のときは1:1のときと比べ光沢が消え、透明釉からマット釉に変化した。

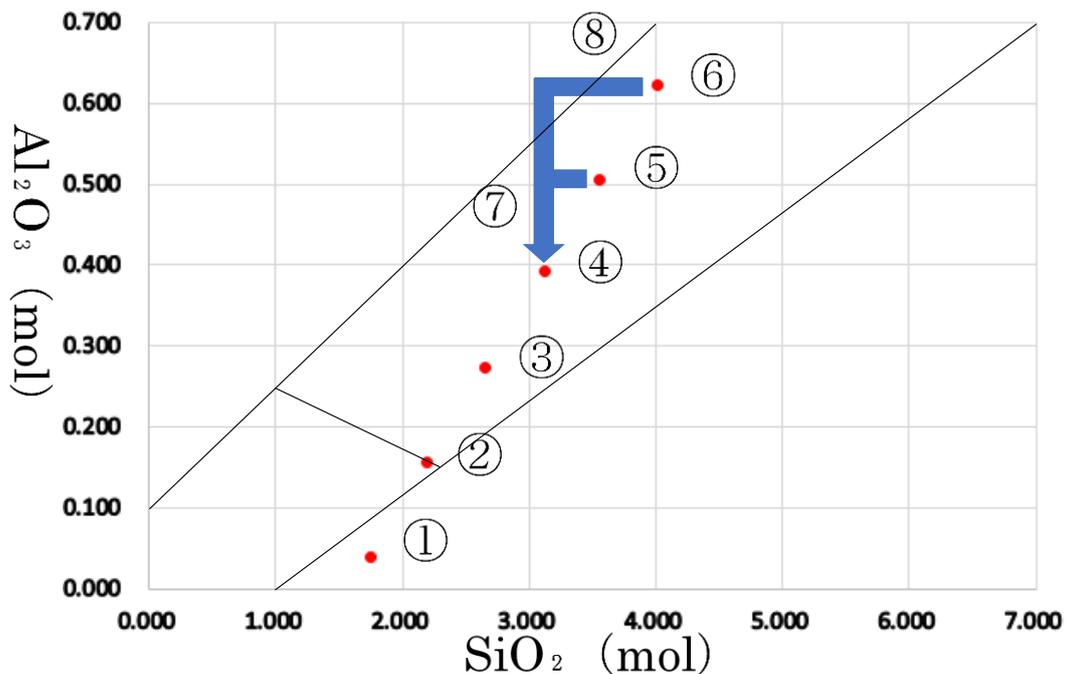


図8 実験1のゼーゲル式のグラフ

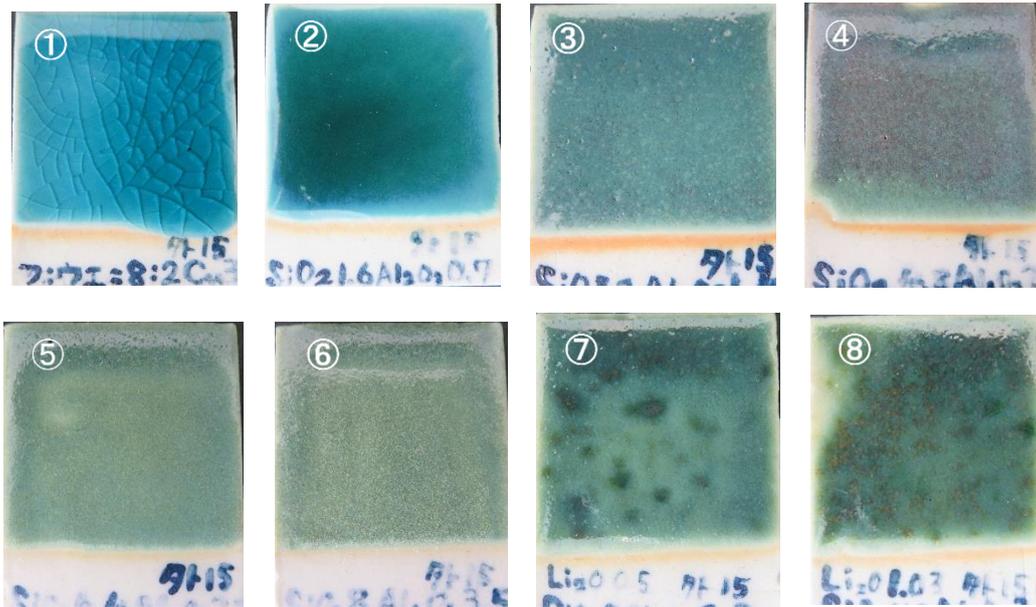


図9 実験1の結果（発色の違い）



図10 ④のRGB



図11 ⑦のRGB



図12 ⑧のRGB

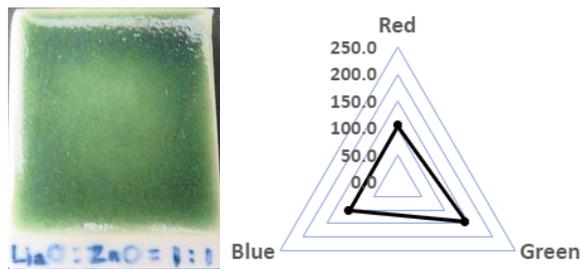


図13  $\text{Li}_2\text{O} : \text{ZnO} = 1 : 1$

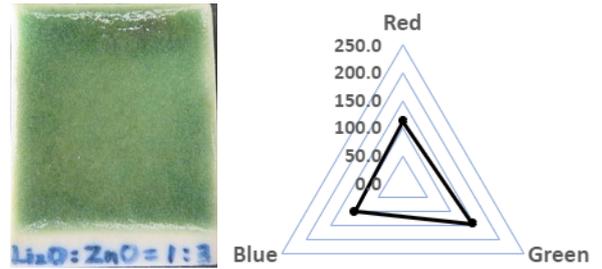


図14  $\text{Li}_2\text{O} : \text{ZnO} = 1 : 3$

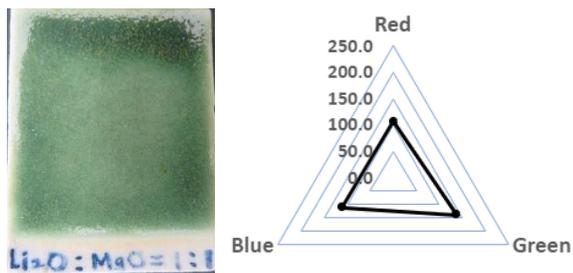


図15  $\text{Li}_2\text{O} : \text{MgO} = 1 : 1$

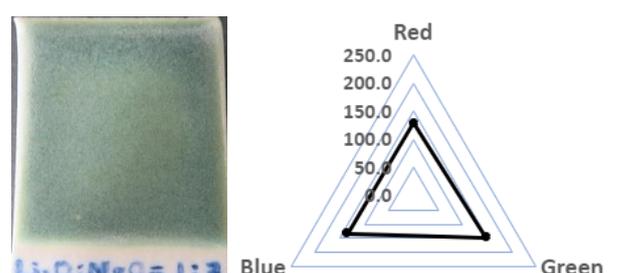


図16  $\text{Li}_2\text{O} : \text{MgO} = 1 : 3$

#### 4. まとめ

実験1より、ゼーゲル式のグラフの点①から⑥にかけて青色から緑色という発色の傾向が見られた(図9)。また実験2より、媒溶剤などを変えてもゼーゲル式のグラフの点を④に統一すると同じような発色が見られることが分かった(図13~図16)。これらのことから、予備実験のフリット(①)と長石(④)を用いたときの銅の発色の違いは、釉薬に含まれるアルカリ酸化物の量に関係なく、シリカとアルミナの量によることが分かった。

実験2より、媒溶剤を用いるときに $\text{Li}_2\text{O}$ に対する $\text{ZnO}$ の割合を変化させてもあまり変化はなかった(図13, 図14)。しかし、 $\text{Li}_2\text{O}$ に対する $\text{MgO}$ の割合を増やすと光沢が消え、透明釉からマット釉に変化することが分かった(図15, 図16)。

今後も、ゼーゲル式のグラフ上の点の位置を動かすことによって小梅のような緑色を出すことを目標に研究を行っていききたい。また、媒溶剤の種類と混合比を変えることによって小梅のような質感も追及していきたい。

#### 5. 謝辞

農事組合法人「ななおれ梅組合」の方々に梅の枝を提供していただきました。そして、愛媛県産業技術研究所窯業技術センターの方々に灰の含有成分の分析をしていただきました。また、愛媛県立松山南高等学校砥部分校の鳥谷先生にご協力いただきました。感謝申し上げます。

#### 6. 参考文献

- 1) 熊谷響輝・吉田匡希・渡部華夏(2020)「ゼーゲル式を用いた赤色釉薬の研究」『令和元年度愛媛県立松山南高等学校理数科課題研究論文集』愛媛県立松山南高等学校 p. 22-25.
- 2) 大西黎・角川陽太・増田希美・松浦瑠音・山田佳明(2021)「媒溶剤が鉄(II)イオンの発色に及ぼす影響の研究」『令和2年度愛媛県立松山南高等学校理数科課題研究論文集』愛媛県立松山南高等学校 p. 36-39.
- 3) 樋口わかな(2007)『焼き物実践ガイド：陶器作りますます上達』誠文堂新光社