ートクレープ処理による釉応力低下が全く認められず、経年貫入に対して全く安全であることが改めて確認された。換言すれば、これらに貫入が入るとすれば、経年貫入のためでなく、初期応力自体の不適が原因であると言える。

このように、本評価方法によれば、単に経年貫入性が簡単に定量評価できるだけでなく、初期応力と、釉応力低下傾向の大小を分離して知ることができるので、素地の組成、粒度、焼成条件、釉の組成、厚さなど、経年貫入抵抗性を改善、管理する上で便利であることを知った。

謝 辞 本研究に発表の機会を与えられた日本陶器 ㈱ 岩田蒼明会長、杉本悌二郎社長、加藤守光専務取締役、松島勇生常務取締役をはじめ、関係の方々に深く感謝の意を表します。

本研究は著者が昭和 33 年、受託研究員として日本陶器 ㈱ より名古屋大学工学部応用化学科、野田稲吉教授の下に派遣され、その御指導の下に行った研究を中心にまとめたもので、野田教授からは、一貫して温い御指導と御激励を賜りました。ここに厚く感謝の意を表します。

また実験に協力頂いた日本陶器 ㈱、研究開発部の方々及び、井出製陶 ㈱ の方々に厚く感謝の意を表します。

文 献

- 1) 稲田 博, 窯協, **85**, 487-96 (1977) (第 1 報).
- 2) 稲田 博, 窯協, **85**, 580-86 (1977) (第 2 報).
- 3) 稲田 博, 窯協, **86**, 76-85 (1978) (第 3 報).
- 4) 稲田 博, 窯協, **86**, 107-14 (1978) (第 4 報).
- 5) JIS S 3001, p. 3, 昭和 29 年制定, 昭和 39 年廃止.
- 6) ASTM C 424-60 (Reapproved 1975).
- 7) H.G. Schreht, *J. Am. Ceram. Soc.*, **11**, 271 (1928).
- 8) L. Mattyasovosky-Zsolnay, *J. Am. Ceram. Soc.*, **29**, 200 (1946).

論文・Paper

AlN の焼結と熱伝導率に及ぼす不純物酸素の効果

酒井利和・栗山正明・犬飼 隆*・木島 剛

(無機材質研究所, * 茨城電気通信研究所)

AlN と Al_2O_3 の混合粉末をホットプレスして得た 27 R 及び 21 R-pseudo-polytype 及びスピネル型の oxynitride の熱伝導率を測定し、それぞれ 0.015, 0.013, 0.026 cal/cm $\cdot$ s $\cdot$ K (300 K) であった。

アルミナを各種温度で還元・窒化した酸素含有量の異なる AlN 粉末を用い、酸素含有量並びにホットプレス条件の熱伝導性に及ぼす効果について検討した。熱伝導性は不純物酸素量の増加によって著しく劣化するとともに、焼結温度によっても影響される。AlN 微粉末の表面は一般に非晶質の酸化物で覆われているが、1200°C 以上で非晶質層からコランダムが析出する。コランダムは 1650°C 以上では AlN と反応してスピネル型の oxynitride を生ずる。コランダムと oxynitride の生成が焼結を促進する。主として粒界に存在する oxynitride は 1900°C 以上で AlN と反応して pseudo-polytype を生ずる。この際の急激な熱伝導性の変化は、粒界にあった酸素が広く AlN 粒子内に拡散していくことを示す。

(1977 年 8 月 23 日受付)

Effect of the Oxygen Impurity on the Sintering and the Thermal Conductivity of AlN Polycrystal

Tosikazu SAKAI, Masaaki KURIYAMA, Takasi INUKAI* and Tuyosi KIZIMA

(National Institute for Researches in Inorganic Materials, Ibaraki-ken, 300-31)
* Ibaraki Electrical Communication Laboratory, Ibaraki-ken, 319-11

Thermal conductivities of the 27 R- and 21 R-pseudo-polytypes of AlN and aluminium oxynitride spinel made from mixed powders of AlN and Al_2O_3 by hot-pressing were measured as 0.015, 0.013 and 0.026 cal/cm $\cdot$ s $\cdot$ K at 300 K, respectively.

Effect of hot-pressing conditions on the thermal conductivities of AlN which was synthe-

sized by reducing and azotizing alumina was investigated. The thermal conductivity decreased with increase of the oxygen content, especially at lower temperature near 300 K. The thermal conductivity, however, varied not only with the amount of oxygen, but also with its distribution in the hot-pressed specimens. This is due to some crystalline phase transformation as the result of the solid reactions between AlN and oxygen containing crystal layers at elevated temperature.

In general, fine powder of AlN is covered with amorphous oxide layer of about 40~120 Å. During heating, probably at above 1200°C, the amorphous layer begins to crystallize into corundum. The corundum reacts on AlN at above 1650°C to form aluminium oxynitride spinel with defect structure. The formations of these corundum and oxynitride facilitate the sintering of the powder remarkably. The oxynitride further reacts on AlN at above 1900°C to form 27 R-pseudo-polytype of AlN.

The considerable decrease of the thermal conductivity in the temperature range from 1800°C to 1900°C suggests that the oxygen in the oxynitride which is supposed to be concentrated in rather narrow grain boundaries seems to spread widely into the AlN grains composing 27 R structure.

[Received August 23, 1977]

1. ま え が き

AlN は熱伝導性の絶縁体として知られており、その特性を生かした電子工学材料として用途の開発が期待されてきた。しかし、実用性のある高密度焼結体の作成技術、不純物効果等については十分知られていない。

Long ら¹⁾は、アーク放電法によって合成した粉末を通常焼結した試料の熱伝導率 $0.0042 \text{ cal} \cdot \text{cm} / \text{s} \cdot \text{cm}^2 \cdot ^\circ\text{C}$ (25°C) を得ている。不純物については明らかでないが、少なくとも酸素 1.4 wt% 程度を Al_2O_3 として含むと思われる。気孔率についても記録されていないが、彼らが電気抵抗を測定した試料から推測すれば 40~18% である。気孔率による熱伝導率の補正は $\lambda_s = \lambda_m / (1 - P)$ で与えられる²⁾。ここに λ_s , λ_m はそれぞれ固相部分及び試料の熱伝導率、 P は試料の気孔率である。Long らのデータから固相の AlN の熱伝導率は $0.005 \sim 0.007 \text{ cal} \cdot \text{cm} / \text{s} \cdot \text{cm}^2 \cdot ^\circ\text{C}$ と計算される。

Taylor ら³⁾は金属アルミニウムの直接窒化法で純度 96% の粉末を得て、2000°C, 360 kg/cm² の条件でホットプレスして比密度 98% の焼結体を作った。200~800°C の熱伝導率は $0.072 \sim 0.048 \text{ cal} / \text{cm} \cdot \text{s} \cdot ^\circ\text{C}$ と報告されている。

Slack⁴⁾ は単結晶並びに各種焼結体を用いて 300 K 以下の熱伝導率を定常測定法で測定した。彼は試料の酸素含有量を測定し、AlN の熱伝導率が酸素量に強く依存することを報告している。焼結体の多くは 1900°C, 300 kg/cm² でホットプレスしたもので気孔率は 3~38%, 酸素量は放射化分析の結果では 0.9~6.7 wt%, 格子定数の変化から求めた値は約 0.24~1.38 wt% である。300 K における熱伝導率 λ は酸素量の増加にしたがって急激に減少し、Slack は酸素量と $1/\lambda$ が直線関係にあると主張している。彼は 2000°C における酸素の固溶量は 1.6 wt% であり、これ以上の酸素を

含む場合は第 2 相を形成すると推論し、第 2 相として oxynitride 又は oxycarbide を想定している。

著者は AlN-Al₂O₃ の系で、低温では oxynitride が生成し、1900°C 以上では oxynitride と AlN との反応で組成比に応じた各種の pseudo-polytype が生成することを見出した⁵⁾。

本研究では、反応温度を変えてアルミナを還元・窒化して作った酸素量の異なる AlN 粉末を用いて、常温付近の比熱及び熱拡散率を測定し、焼結体中での酸素の挙動と熱伝導性への効果を検討した。

2. 実 験

2.1 試 料

粒径 0.5 μm 以下、純度 99.9% のアルミナと、粒径 2 μm 以下、灰分 0.1% 以下の高純度黒鉛の粉末を、重量比 10 : 6 に混合し黒鉛抵抗炉中、窒素気流中で 1600~2000°C の各温度で 4 時間保持して AlN とした。得られた粉末は乾燥空気中 600°C で加熱し、残存したカーボンを除去した。粉末の平均粒径、発光分光分析値、酸素含有量を表 1 に示す。酸素量の測定は高速中性子放射化分析法で行った。

これら粉末を 8 mm ϕ の黒鉛ダイスに入れ、窒素雰囲気中でホットプレスし、上下面を平行に研磨し、熱測定試料とした。ホットプレス条件及び試料の密度、試料中

Table 1. Particle size, emission spectrographic analysis and oxygen contents of AlN powders.

No.	Mean particle diameter (μm)	Ca	Mg	Cr	Mn	Cu	Fe	Si	Oxygen content (wt%)
R-16	0.2	++	+	tr	tr	tr	++	++	4.4
R-17	0.4	+	+	tr	tr	tr	++	++	7.2
R-18	0.7	tr	tr	tr	—	tr	tr	++	6.7
R-20	2.5	tr	tr	—	—	tr	tr	+	1.6

++: weak, +: very weak, tr: faint trace, —: not detected.

Fe and Si in R-16 are both 100~200 ppm.

Table 2. Characteristics of hot-pressed AlN.

Specimen No.	Used powder	Conditions of hot-pressing (kg/cm ²) (°C) (min)	Density (g/cm ³)	Oxygen content after hot-pressing (wt%)
3	R-16	150 1900 60	3.23	3.9
4	R-18	200 1800 120	3.25	4.5
5	R-20	350 2000 120	2.54	0.8
6	R-17	200 1800 120	3.19	2.9
7	R-17	450 1900 120	3.24	2.6

の酸素濃度を表 2 に示す。

2 種の AlN pseudo-polytype⁵⁾ 及び oxynitride の測定試料は、市販の AlN とアルミナをそれぞれ 9:1, 8:2, 4:6 のモル比に混合し、2000°C, 200 kg/cm² で 1 時間ホットプレスして 10 mmφ×3 mm の円板にした。それぞれの試料は X 線的に単一の結晶相から成る。

2.2 熱伝導率

レーザー・フラッシュ法により 300~800 K の比熱及び熱拡散率を測定し、熱伝導率を計算した。 α -Al₂O₃ の比熱は TPRC⁶⁾ のデータを用いた。

3. 実験結果

各試料の比熱及び熱拡散率の測定結果を図 1 及び 2 に示す。これらの値から計算した熱伝導率を図 3 に示す。熱伝導率は気孔率を補正した値である。熱伝導率の値は、最高のもので 0.15 cal/cm·s·K (300 K) である。この値は Slack の報告した単結晶の 0.48 にくらべかなり低いが、彼がホットプレスした焼結体の 0.07~0.18 cal/cm·s·K とほぼ等しい。1200 K 以上の測定値は、著者らが同種の試料により、エレクトロン・ビーム法により得たものである⁸⁾。

Fig. 1. Specific heat of hot-pressed AlN vs. temperature.

ホットプレスした市販の AlN, AlN の pseudo-polytype, Al の oxynitride 及び コランダム の常温近くの比熱, 熱拡散率及び熱伝導率を表 3 に示す。

4. 考 察

4.1 酸素含有量と熱伝導率

焼結体中の酸素濃度と熱伝導率の関係を図 4 に示す。Slack は焼結体中に固溶又は、第 2 相を形

Fig. 2. Thermal diffusivity of hot-pressed AlN vs. temperature. **Fig. 3.** Thermal conductivity-temperature relation for hot-pressed AlN measured by the laser flash method (up to 800 K) and the modulated electron beam technique (above 1300 K).

Table 3. Specific heat, thermal diffusivity and calculated thermal conductivity of hot-pressed AlN, 27 R and 21 R-pseudo-polytypes of AlN, oxynitride in spinel structure and α -Al₂O₃.

Crystal phase of sample	Oxygen content in powder (wt%)	Specific heat		Thermal diffusivity		Thermal conductivity	
		at 300 K	at 450 K	at 300 K	at 450 K	at 300 K	at 450 K
AlN	1.76			0.234	0.148	0.128	0.109
AlN	2.59			0.198	0.130	0.113	0.099
27 R	12.3	0.185	0.204	0.024	0.020	0.015	0.013
21 R	15.6	0.172	0.211	0.022	0.018	0.013	0.013
oxynitride	39.1	0.169	0.252	0.043	0.027	0.026	0.025
α -Al ₂ O ₃	47.1			0.118	0.056	0.086	0.054

Fig. 4. Thermal conductivity at 295 K and at 795 K of hot-pressed AlN as a function of the oxygen content. A dotted line referred after Slack.

Fig. 5. Thermal conductivity of hot-pressed R-17 powder at 297 K vs. hot-pressing temperature.

成する不純物酸素が AlN 焼結体の熱伝導率を理論値にくらべ著しく低めると結論している。図 4 の点線は Slack が各種原料粉末をホットプレスした焼結体の測定値である。本研究では同一原料から出発して作った酸素含有量の異なる試料の熱伝導率を調べ、常温付近では酸素量による影響の大きいことが知られた。しかしその効果は、Slack の報告にくらべ、酸素量 1~2 wt% の場合約 1/3 である。酸素の混入による熱伝導率の低下は常温では顕著であるが、温度の上昇にともなって減少し約 600 K 以上では酸素量の差による影響は認められない。また、酸素量の少ない焼結体の熱伝導率の温度依存性は極めて大きい。酸素量が 2 wt% 以上の場合の温度係数は小さい (図 3)。

4.2 焼結条件の影響

図 4 の中で実線から大きく離れた測定値がある。これは同一粉末を使用しているが、焼結温度の高い場合にみられる。R-17 の粉末を用いて焼結温度、焼結時間を変えてホットプレスした試料の熱伝導率を図 5 に示す。

R-17 は酸素 7.2 wt% を含む微粉末であるが、1800°C 以上でホットプレスするときは 2.9~2.6 wt% にまで減少する。この粉末を 1650~1800°C、200 kg/cm²、1 時間ホットプレスした試料の常温での熱伝導率は約 0.10 cal/cm·s·K であるが、1900°C 以上でホットプレスした場合は約 0.06 cal/cm·s·K と半減する。これら試料の X 線回折では、前者には AlN に微量のスピンル型の oxynitride が、後者には少量の 27 R-pseudo-polytype が含まれるのが認められた。1650°C で 10 分間ホットプレスした試料には極めてわずかながらコランダムと oxynitride のこん跡が認められるが、1800°C、10 分間では、微量の oxynitride が認められた。1900°C、5 分間の試料にはわずかな oxynitride と 27 R がともに認められた。

AlN の熱伝導率は酸素量によって大きく影響されるが、焼結条件によっても影響される。すなわち、全酸素量が同じであっても、焼結体中での分布状態によって変わる。一般的には高温で焼結するほど酸素の分布は拡散し、pseudo-polytype を作る条件では熱伝導率の低下は著しい。

4.3 AlN-O 系各種結晶の熱伝導率

AlN 中の酸素の量と分布が熱伝導率に影響することが知られた。AlN-O の系には数種類の結晶が存在する⁵⁾が、その中で X 線的に単相で得られた焼結体の比熱及び熱拡散率を測定した。純粋な AlN の熱伝導性は極めて高いことを推測させるが、酸素量が増すにしたがって低下し、27 R 及び 21 R 構造をもつものでは極めて低い。

4.4 焼結体中の酸素の挙動

AlN の粗粒を微粉碎するとその酸素含有量は表面積に比例して増加することから⁹⁾、粒子の表面は酸素の吸着層又は空気中の湿気と $2\text{AlN} + 3\text{H}_2\text{O} = \text{Al}_2\text{O}_3 + 2\text{NH}_3$ のように反応して生ずる酸化物が非晶質又は極微小粉末の層をなして覆っていると推測される。粉末 R-17 は X 線的にはすべて AlN であるが、1650°C で 5 分間窒素中で加熱した試料にはコランダム相が認められる。非晶質相からのコランダムの再結晶は、1200°C 以上で起こり、温度の上昇にともない迅速に進むと考えられる。

R-17 粉末を平均半径 $r = 0.2 \times 10^{-4} \text{ cm}$ の等大球と仮定すると、1 g 当たりの表面積は $4.6 \times 10^4 \text{ cm}^2$ 、7.2 wt% の酸素が Al_2O_3 の形で表面を覆うとすれば、その厚さは約 80 Å となる。この表面層中の空孔の拡散速度は共有結合の強い AlN 粒子内部にくらべ格段に大きいであろう。

1650°C で 10 分間ホットプレスした試料の比密度は約 72% であり、等大球が立方配位していると仮定すれば、粒子間ネックの面積は粒子断面積の 0.2 倍程度で、焼結初期のネックの成長がほぼ終わった段階と考えることができる¹⁰⁾。ネックの成長は次式で与えられる¹¹⁾。

$$\left(\frac{x}{r}\right)^6 = \frac{96 D_b W \varrho}{r^4 k T} \left[r + \frac{P_a r}{6} \right] t$$

ここに x はネックの半径、 D_b は原子の粒界拡散係数、 ϱ は空孔容積、 W は易拡散層の厚さ、 r は表面エネルギー、 P_a は加圧力、 k 、 T 、 t はボルツマン定数、絶対温度及び保持時間である。

今、 ϱ を $1/2 \text{ Al}_2\text{O}_3$ として $2.1 \times 10^{-23} \text{ cm}^3$ 、 r を 900 erg/cm^2 ¹²⁾ とし、 $x = 10^{-5} \text{ cm}$ 、 $W = 160 \times 10^{-8} \text{ cm}$ と仮定すれば、 $t = 600 \text{ s}$ とし $D_b = 2 \times 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{s}$ である。

この値は同じ粉末のホットプレスの終期収縮過程を格子拡散律速として計算した原子の格子拡散係数 $D_L = 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{s}$ ⁹⁾ とほぼ等しい。

このモデルでネック部分の収縮により比容積が常温における 52% から 72% に増大したとすれば、ネックの厚さは $440 \times 10^{-8} \text{ cm}$ となる。ネック容積の中 AlN 粒子部分を幾何学的に求めれば 9 vol%， Al_2O_3 に対して約 16 mol% でありスピネル型の oxynitride となって粒界に溶け出であろう。この時最初にできる oxynitride は組成的に N 欠陥の多い、また格子定数の小さい構造をもち⁵⁾、易拡散層を作ると考える。

1800°C のホットプレスでは 10 分後に約 96% まで比容積が進んでおり、この大きな焼結速度はスピネル層の生成に因るものであろう。1800°C、120 分後の酸素量 2.9 wt% がすべて oxynitride となると仮定すれば、容積比で約 7.6%、これが粒径 $1.2 \mu\text{m}$ ⁸⁾ の AlN の粒界を埋めるとすればその厚さは $0.032 \mu\text{m}$ である。1900°C では AlN は約 $2 \mu\text{m}$ に粒成長したとして、前と同

じく酸素がすべて 27 R を形成したと仮定すれば、その容積比は約 23% であり、粒界の厚さは $0.17 \mu\text{m}$ である。AlN 粒子が立方配位をし、oxynitride 及び 27 R がそれぞれ上記の幅で粒界をなすと仮定してそれぞれの熱伝導率を計算する。oxynitride、27 R 及び AlN の熱伝導率に表 3 の値を使うと、それらは 0.11 及び $0.07 \text{ cal/cm} \cdot \text{s} \cdot \text{K}$ と計算され、それぞれ実測値に近い。このことから、始め粒界にあった酸素は 1900°C 以上でかなり急速に AlN 粒子中に拡散し pseudo-polytype を作る と推測できる。

5. ま と め

同一原料から出発して得た粒度、不純物酸素量の異なる AlN 粉末をホットプレスし、比熱及び熱拡散率を測定し、熱伝導率を計算した。

- 1) AlN の熱伝導率は酸素の混入により著しく低下する。その温度係数は酸素量によって異なり、常温以下では純度の影響は特に著しい。
- 2) AlN の熱伝導率は酸素量のみでなく、焼結温度によっても異なる。焼結温度によって粒界等の酸素濃度の高い部分に析出する結晶相が変化すること、すなわち焼結体内の酸素分布の変化に起因する。
- 3) AlN-O 間化合物の中 27 R-、21 R-pseudo-polytype 及びスピネル型の oxynitride の比熱及び熱拡散率を測定し、それぞれ 0.185 、 0.172 、 $0.169 \text{ cal/g} \cdot \text{K}$ 及び 0.024 、 0.022 、 $0.043 \text{ cm}^2/\text{s}$ (300 K) であった。これから計算した熱伝導率はそれぞれ 0.015 、 0.013 、 $0.026 \text{ cal/cm} \cdot \text{s} \cdot \text{K}$ (300 K) であった。
- 4) AlN の微粉末は一般にその表面を厚さ $40 \sim 120 \text{ Å}$ の非晶質の酸化層で覆われる。この表面層は 1200°C 以上の加熱でコランダムとなり、1650°C 以上で AlN と反応しスピネル型の oxynitride を生ずる。このコランダム及び oxynitride の生成は焼結を促進する。
- 5) oxynitride は 1900°C 以上で AlN と反応し 27 R-pseudo-polytype を作る。この際の熱伝導率の低下は粒界に存在する oxynitride が AlN に溶けて幅広く 27 R の層を作ることを示す。

謝 辞 本研究の酸素分析をして頂いた大阪工業技術試験所 中根正典博士、激励と御教示を頂いた無機材質研究所 岩田 稔、下平高次郎 両総合研究官に深く感謝します。

文 献

- 1) G. Long and L.M. Foster, *J. Am. Ceram. Soc.*, **42**, 53-59 (1959).
- 2) J. Francle and W.D. Kingery, *ibid.*, **31**, 99-107 (1954).
- 3) K.M. Taylor and C. Lenie, *J. Electrochem. Soc.*,

- 107, 308-14 (1960).
- 4) G.A. Slack, *J. Phys. Chem. Solids*, **34**, 321-35 (1973).
- 5) T. Sakai, *Yogyo-Kyokai-Shi*, **86**, 335-40 (1978).
- 6) The TPRC Data Series, Thermophys. Properties of Matter, Vol. 5, Plenum, N.Y. (1970).
- 7) JANAF, Thermochemical Table, 2nd. ed. (1971) Horikosi Lab., Tokyo.
- 8) T. Tanaka, T. Sakai and M. Iwata, *Yogyo-Kyokai-Shi*, **81**, 399-400 (1973).
- 9) T. Sakai and M. Iwata, *J. Mater. Sci.*, **12**, 1659-65 (1977).
- 10) R.L. Coble, *J. Appl. Phys.*, **32**, 787-92 (1961).
- 11) R.L. Coble, *ibid.*, **41**, 4798-807 (1970).
- 12) W.D. Kingery, *J. Am. Ceram. Soc.*, **37**, 42 (1954).

論文・Paper

ボーンチャイナ素地の焼成過程

市 古 忠 利

(鳴海製陶(株) 研究室)

骨リンを使用したボーンチャイナの製造のための基礎資料を得ることを目的に、ボーンチャイナ素地の焼成過程を等温収縮の測定及びX線回折、偏光顕微鏡、走査型電子顕微鏡による観察によって速度論的、微構造的に考察した。また焼成素地のかさ比重、弾性率、抗折強度、透光度、膨張係数も測定した。

昇温熱膨張収縮の結果から 920°C 付近と 1200°C 付近に明確な収縮が認められた。920°C 付近の収縮は拡散反応機構によると推測できた。1200°C 付近の収縮は粘性流動機構と結晶の溶解過程の複合した収縮過程と推測できた。弾性率と抗折強度は 1200°C 以上でマトリックス部の熔融相の発達に伴い増大し、気孔の発達に伴い減少した。透光度はマトリックス部の熔融相の発達に伴い増大し、膨張係数は結晶の溶解に伴い減少した。

骨リンを使用した素地と骨灰を使用した素地を比較すると、920°C 付近の $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$ とアノーサイトの生成過程の違いを除いては、焼き締め過程、微構造、焼成素地の特徴に顕著な差は認められなかった。

(1977 年 9 月 29 日受付)

Firing Process of Bone China Bodies

Tadatoshi ICHIKO

(Narumi China Corporation, Nagoya-shi, 458)

In order to collect fundamental data for manufacturing bone china by using bone phosphate, firing process of bone china bodies was investigated by conventional methods kinematically and microscopically. And bulk specific gravity, modulus of elasticity, transverse strength, translucency, and expansion coefficient for fired bodies were measured.

The results of linear thermal expansion and shrinkage in the specimens showed two distinct stages which shrank at about 920°C and 1200°C or higher temperature. The shrinkage occurred at about 920°C seemed to accompany with diffusion sintering process. The shrinkage observed at about 1200°C might be related to the densification process occurred by both viscous flow mechanism and melting process of crystal grains in bodies. Modulus of elasticity and transverse strength increased with spreading of melt through matrix phase and decreased with expansion of the pores at 1200°C or higher temperature. Translucency increased with spreading of melt through matrix phase and expansion coefficient decreased with melting of crystals.

In comparison with bone china body of using bone phosphate and that of using bone ash, the vitrification behaviour, microstructure, and natures of fired bodies were not so markedly