

2 窯 業 部

2.1 桜島火山灰の性状と陶磁器素地及び釉薬としての活用

寺尾 剛, 肥後盛英, 川原キクエ, 蘭田徳幸

Some Properties of the Volcanic Ashes erupted from Mt. Sakurajima and its Applications to the Body and the Glaze of Pottery

Tsuyoshi TERAQ, Morihide HIGO, Kikue KAWAHARA and Tokuyuki SONODA

最近の桜島火山活動の活発化に伴い、鹿児島市を始め近隣市町村は降灰により多大な被害をこうむっており、この対策に苦慮している現況にある。

今回県消防防災課より提供の代表的降灰試料4点につき粒度組成、鉱物組成、化学組成等について諸試験を行い性状を把握した。また、その特性をとらえて陶磁器素地への活用と釉薬の開発を試みた。

1 はじめに

現在活動中の桜島は、約2万3千年前の激しい火山活動によって形成された始良カルデラ（現在の鹿児島湾北部の円形地域）の南縁を母体に約1万3千年前に隆起誕生し、文明年間（1471年、1475年、1476年）、安永8年（1779年）、大正3年（1914年）、昭和21年（1946年）の爆発が特に大きく、熔岩流出をともなう山腹噴火と降灰をもたらす山頂噴火をくり返しているものである。¹⁾特に近年の活動は顕著であり、昭和60年中では爆発回数474回、推定降灰量2,000万トンともいわれている。この降下火山灰は農林水産物、地域住民の生活環境にあたる直接的な被害ばかりでなく、二次的に降雨に主因する土石流災害も発生し、深刻な社会問題となっている。²⁾その対策とし、昭和48年「活火山法」が制定され、昭和53年には「活動火山対策特別措置法」として全面改正された。当初の対象事業は避難施設緊急整備事業と防災営農施設事業であったが、新たに治山事業、砂防事業、降灰除去事業、降灰防除施設整備事業等が追加されている。³⁾

今回は桜島降下火山灰の各降下地点における、粒度組成、鉱物組成、化学組成等について諸試験を行いその性状について検討した。

なお、多量の降灰の利用の一端として陶磁器素地への活用と釉薬の開発を行ったので、その結果について報告する。

2 実験及び結果

2.1 桜島火山灰の性状

2.1.1 試料

県下には桜島降灰量観測点として桜島火口から20km以内の観測点（32ヶ所）、20km以遠の観測点（26ヶ所）計58ヶ所の観測点があり、降灰量は20km以内の主要地点は毎日、10日毎、20km以遠では10日毎、1ヶ月毎に測定(g/m^2)を実施している。

今回の試料は南岳火口西方3km地点鹿児島市県庁、東方麓の黒神、北方18km地点始良、南方10km地点垂水の4地点に降下した火山灰の1カ月間の採取量を縮分し、平均代表原試料とした。表1に各地点の降灰量の推移と、図1に桜島降灰量観測

点位地図を示す。

表 1 桜島降灰量

		噴火口より 20 km以内 単位 g/m ²	
採 取 点		昭和59年1月～7月	昭和60年1月～7月
県 庁		5,733.2	5,804.3
黒 神		35,306.8	32,176.8
始 良		350.0	1,164.9
垂 水		6,241.1	9,638.3
<参 考>			
湯ノ平(桜島)		25,239.0	66,273.2

(消防防災課調)

- 火口から20 km以内の観測点(32か所)
- 火口から20 km以遠の観測点(26か所)
- ◎は毎日観測点を示す。
- 供試試料

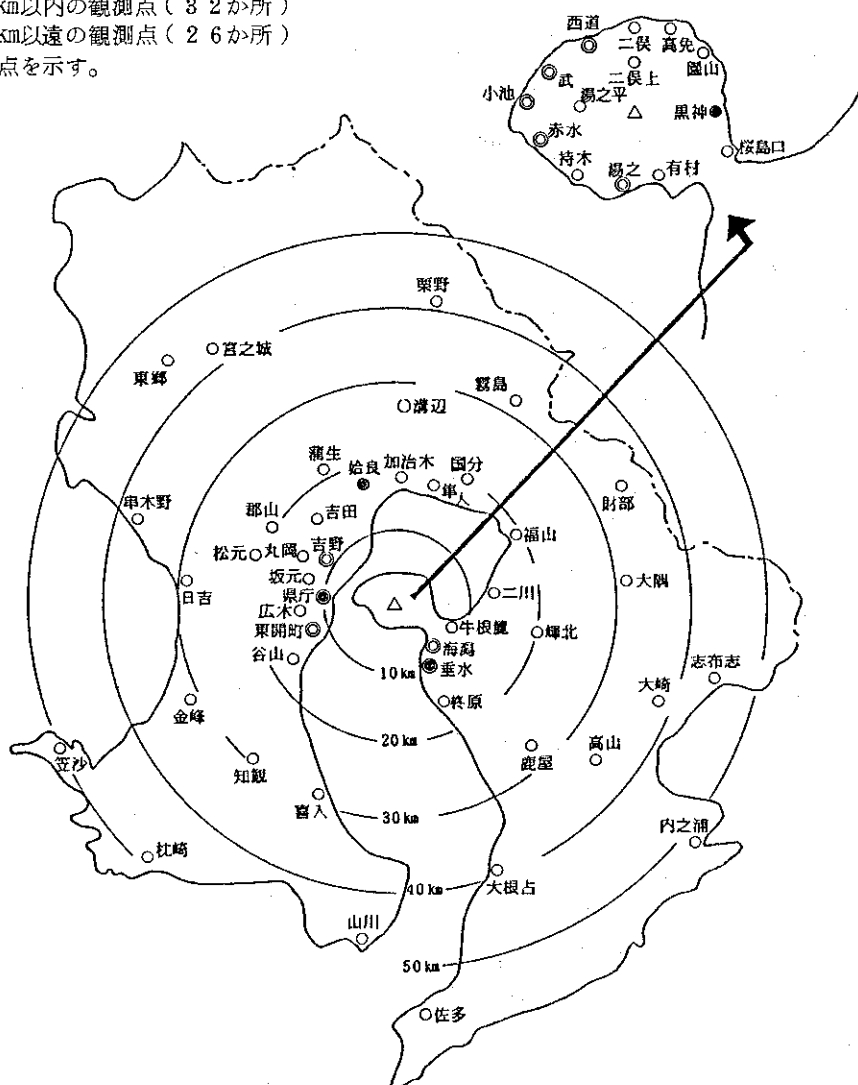


図 1 桜島降灰量観測点位置図

2.1.2 粒度組成

桜島の降灰の拡散は噴火の規模（時に3000mの噴煙）と火口上空の風向、風速、温度及び湿度などの気象要因で飛散距離が異なることは当然である。あくまでも火口周辺では粗粒が多く、遠距離になるにつれて微細粒分が増加している。季節的には、南東風によりおおそ5月～10月にかけては鹿児島市を中心として薩摩半島へ飛沫し、11月～4月の北西風で鹿屋地区を中心とした大隅半島が灰禍を受けている。表2に各地点の粒度分析値、図2に粒度分布ヒストグラムを示す。

また県下には、今から約2万8千年前、鹿児島湾の湾奥部にあった始良火山、湾口部にあった阿多火山などの、火口径20kmにもおよぶ大カルデラ火山からの噴出堆積物である推定量900億トンともいわれているシラスがあるが、その一次シラスの代表として武岡シラス、二次シラスとして

吉田シラスの粒度分析値を参考として示す。

粒度分析は標準網篩74, 149, 297, 590, 1190, 2380 μ mを用い、三田村理研工業（特製シーブシェーカーにセットし篩に間欠上下振動を与える湿式法）によった。

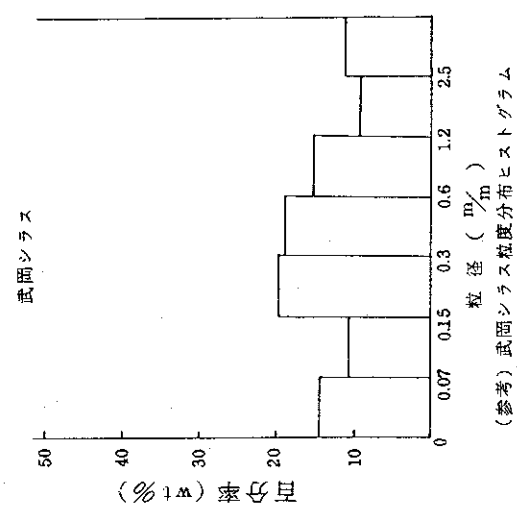
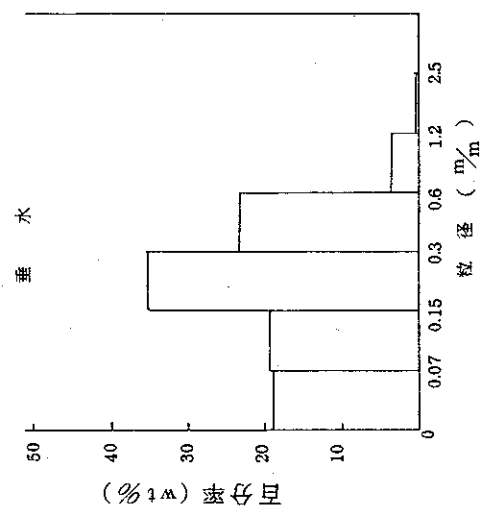
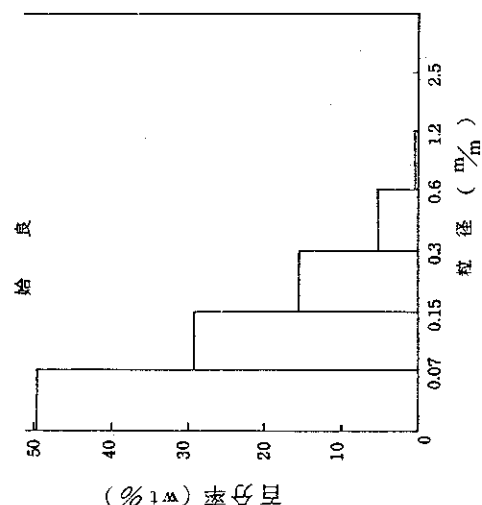
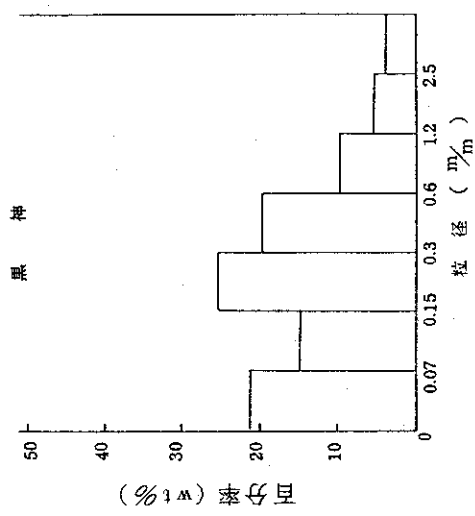
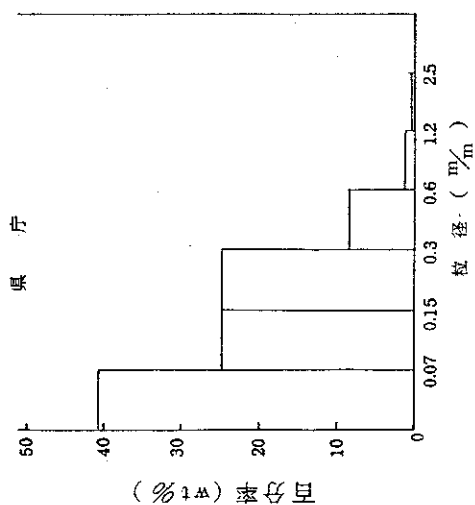
表2、図2からも明らかなように県庁で微細粒0.07%以下が40%、遠距離地の始良で50%、黒神、垂水では約20%、火口に最も近い黒神では2.5%以上の粗粒分が8%と降下地点においての差があらわれている。一方、一次シラスの武岡シラスは0.07%以下が15%、2.5%以上の粗粒分が約20%、これには軽石粒、礫を含んでいる。これがシラス台地における平均的な粒度組成である。二次シラスの吉田シラスは0.07%以下が98%で大半が火山ガラス、斜長石からなっている。これはシラス台地の微細粒分が雨水淘汰により層状に二次堆積したものである。

表2 採取地区別火山灰の粒度分析

粒 径 地 区	粒 度 (wt%)						
	<200M (0.07%)	200M~ 100M (0.15%)	100M~ 48M (0.3%)	48M~ 28M (0.6%)	28M~ 14M (1.2%)	14M~ 8M (2.5%)	8M<
県 庁	40.6	24.8	24.8	8.4	1.2	0.2	0
黒 神	21.4	15.2	26.8	19.6	9.0	5.0	3.0
始 良	49.8	29.0	16.0	5.0	0.2	0	0
垂 水	19.0	19.6	35.2	23.0	3.0	0.2	0

参 考

粒 径 地 区	粒 度 (wt%)						
	<200M (0.07%)	200M~ 100M (0.15%)	100M~ 48M (0.3%)	48M~ 28M (0.6%)	28M~ 14M (1.2%)	14M~ 8M (2.5%)	8M<
武 岡 シ ラ ス	14.6	10.2	19.8	18.8	16.1	8.9	10.6
吉田二次シラス	97.6	2.4	0	0	0	0	0



(参考) 武岡シラス粒度分布ヒストグラム

図 2 採取地区別火山灰の粒度分布ヒストグラム

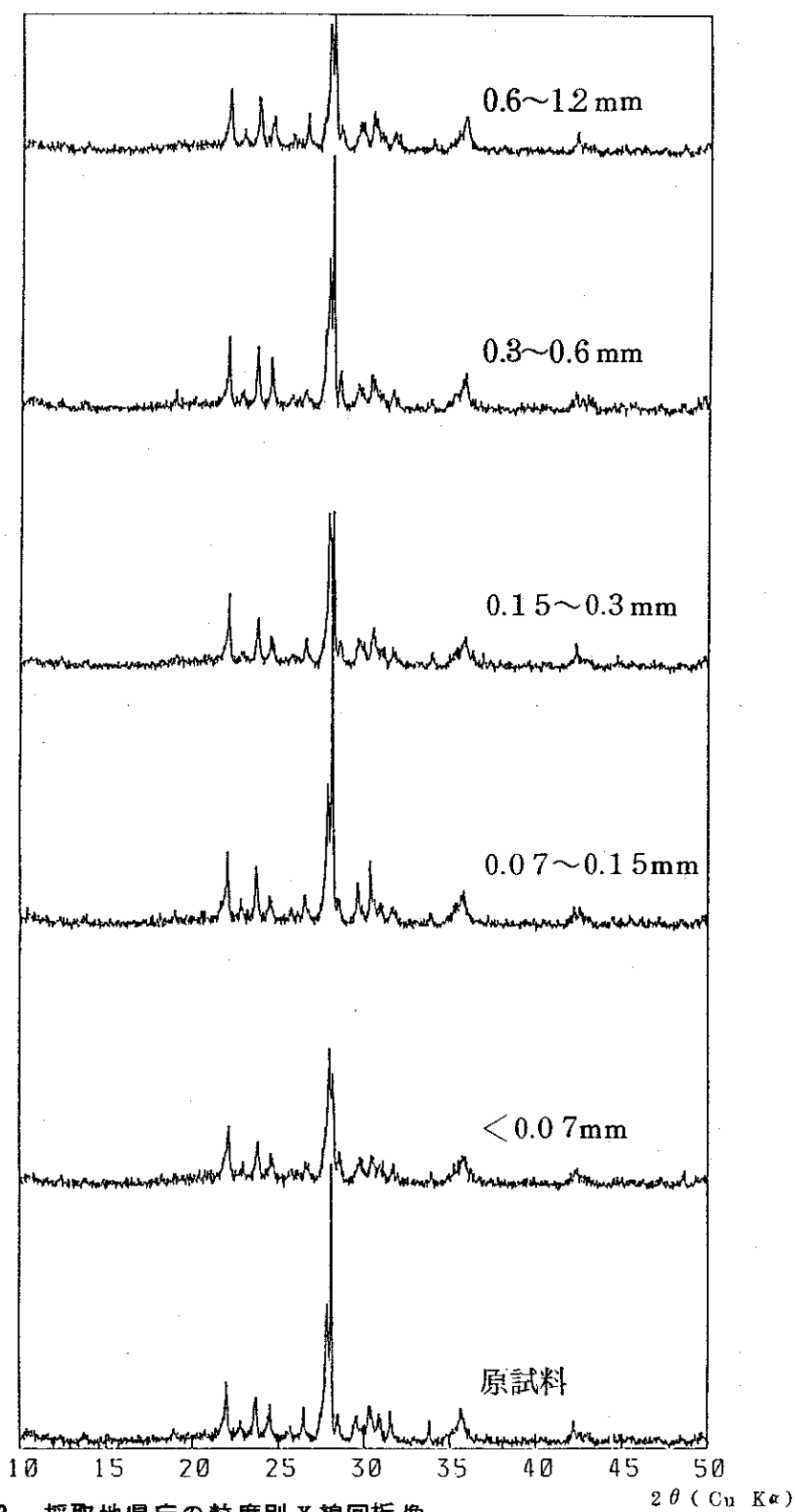


図3 採取地県庁の粒度別X線回折像

2.1.3 鉱物組成

桜島の火山灰の鉱物組成としては、粒度別で若干の差が認められるが火山ガラスが70%を占め、斜長石が約10%、その他は紫蘇輝石、普通輝石、磁鉄鉱、燐灰石等からなりたっている。⁴⁾なお、噴出直後の新鮮な火山灰粒子表面には付着する火山ガラス(陰イオン)の硫酸イオン、塩素イオンがあり、雨水と反応することにより硫酸、塩酸化して、農作物への被害、金属部材の腐蝕等の要因となっている。図3に県庁で採取した試料の粒度別X線回折像を示す。微粉碎した試料を、理学電機(株)製ガイガーフレックスRAD-ⅡBで40kV、30mA、2θ 4°_{min}、モノクロメータ付で走査して回折像を得た。

2.1.4 化学組成

化学分析値は蛍光X線分析値と強熱減量より算出した。微粉碎した試料0.3gに融剤として無水四ホウ酸リチウム3gを添加し、最終温度約1200℃で熔融し、ガラスビートを作成した。これを理学電機工業(株)製全自動蛍光X線分析装置

System3080Eを用い、表3の条件で測定した。得られた蛍光X線強度は、データ処理装置DF151であらかじめ作成してある検量線を用いて相対分析値を算出し、別に測定した強熱減量と合わせて規格化したものを化学分析値とした。表4に採取地区別火山灰と武岡シラス、吉田シラスの化学組成、表5に採取地県庁の粒度別化学組成と参考として武岡シラスの粒度別化学組成を示す。

表3 蛍光X線分析測定条件

	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O
管 球	Rh							
管電圧管電流	5 0 k V－4 0 m A							
2 θ	144.550	144.800	57.530	86.190	61.900	45.225	55.170	69.850
分 光 結 晶	RX-4	PET	LIF	LIF	GE	TAP	TAP	GE
検 出 器	PC		SC		PC			
計数時間(Sec)	20							

表4 採取地区別火山灰とシラスの化学組成

成分	化 学 組 成 (wt%)								
地区	Igloss	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O
県 庁	0.14	60.43	16.77	6.83	0.79	6.97	2.67	3.85	1.54
黒 神	0.01	61.16	17.02	7.09	0.81	6.81	2.74	2.78	1.58
始 良	0.31	60.64	17.22	6.86	0.81	7.04	2.64	2.87	1.60
垂 水	0.01	60.71	16.98	7.15	0.81	6.98	2.95	2.83	1.58

成分	化 学 組 成 (wt%)								
地区	Igloss	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O
武 岡 シ ラ ス	2.68	69.28	15.68	3.37	—	2.60	0.84	3.58	2.22
吉田二次 シ ラ ス	6.05	70.54	13.10	2.32	—	1.53	0.48	2.95	3.60

表5 採取地県庁の粒度別化学組成

成分 粒 径	化 学 組 成 (wt.%)							
	Ig.loss	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	K ₂ O
8 M <	—	—	—	—	—	—	—	—
14~8 M	—	—	—	—	—	—	—	—
28~14 M	1.01	60.99	17.20	6.36	0.78	6.80	2.31	1.63
48~28 M	0.28	61.02	16.89	6.67	0.80	6.84	2.67	1.64
100~48 M	0.10	61.18	16.93	6.90	0.77	6.76	3.00	1.52
200~100M	0.01	60.07	16.82	7.48	0.82	7.28	3.23	1.50
< 200 M	0.15	60.41	17.96	6.64	0.81	7.21	2.23	1.58

(参考) 武岡シラスの粒度別化学組成

成分 粒 径	化 学 組 成 (wt.%)							
	Ig.loss	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	K ₂ O
8 M <	2.99	67.85	16.07	3.54	—	2.49	1.15	2.07
14~8 M	2.70	66.47	18.10	2.75	—	4.18	0.92	1.47
28~14 M	2.45	66.60	18.27	2.65	—	4.72	1.00	1.15
48~28 M	1.95	67.90	16.82	3.58	—	3.50	1.04	2.05
100~48 M	3.00	70.00	14.82	3.58	—	1.95	0.88	2.40
200~100M	4.10	70.70	14.16	2.44	—	1.57	0.68	2.70
< 200 M	4.40	71.20	14.32	2.08	—	1.27	0.56	2.80

火山灰の化学組成は表4に示したように各地点とも大差なく、 SiO_2 60~61%, Al_2O_3 16~17%, Fe_2O_3 6~7%, TiO_2 <1%, CaO 6~7%, MgO 2~3%, Na_2O 2~4%, K_2O 1~2%, Ig. loss <1%の範囲であったが、これを武岡シラスの化学成分と比較すると、 SiO_2 が約10%少く、 Fe_2O_3 、 CaO 、 MgO の含有量が増加しているのが特徴である。

表5の採取地県庁の粒度別の化学組成は、粗粒から微粒分にわたり各粒分ともほとんど差が認められないが、武岡シラスの場合は粒度別では SiO_2 、 Al_2O_3 、 Fe_2O_3 、 CaO の含有量で若干変動が見られる。

2.1.5 結果

桜島降下火山灰の各観測地点における特徴としては、当然のことながら降下火山灰の粒径は、桜島南岳火口から離れるにつれて次第に小さくなり、遠地点ほど微粒子となる。

火山灰の拡散については、火口上層大気の流れ、風速、温度及び湿度などの気象条件と噴火の規模に左右され、遠くは宮崎、山口、長崎県等にも降下している。

鉱物組成としては火山ガラスが70%を占め、斜長石、紫蘇輝石、普通輝石、磁鉄鉱、磷灰石等から成立っており、粒度別の組成も大差がない。

噴出直後の新鮮な火山灰粒子表面には、硫酸イオン、塩素イオンが付着していてこれが雨水と反応することにより、硫酸化、塩酸化して諸々の弊害をもたらすことになる。

化学組成では火口からの遠近と方位を考慮した4種の平均代表の原試料と採取地県庁の試料を粒度毎に選別して分析した結果は、 SiO_2 60~61%, Al_2O_3 16~17%, Fe_2O_3 6~7%, TiO_2 <1%, CaO 6~7%, MgO 2~3%, Na_2O 2~4%, K_2O 1~2%, Ig. loss <1%の範囲であることが判明した。このことは降下地点及び選別した粗粒から微粒にわたる粒分とも化学組成的には均質と

見なすことができる。

以上の結果をもとに降下火山灰の性状としては、火山ガラス、斜長石が主体であり、 Fe_2O_3 、 CaO の含有がシラスに比して多いことからシラスよりも更に易溶結性であろうことが窺われ、化学組成的には降下地点、粒度別でも均質であることと、分析値の Fe_2O_3 、 CaO 等の含有率から判断すると i) 易溶結性をとらえて陶磁器素地の媒溶原料としての活用、ii) 化学組成から黒釉薬の開発、が考えられるので、多量の降灰の活用的一端として以下に関する試験、試作を行った。その応用例について述べる。

2.2 火山灰の陶磁器素地への活用と低火度釉薬

2.2.1 焼成性状

火山灰の焼成性状を把握するため、火山灰とシラス(吉田)の100メッシュ通過粒分を磁性無軸ルツボに20gづつ採量し、電気炉を用い各焼成温度におけるルツボ試験を試みた結果を表6に示す。

シラスに比して焼結度が進行して1150℃~1200℃で一部ガラス化し、1250℃では完全にガラス化して黒色ガラスとなる。

2.2.2 供試原料及び配合

表7に供試原料の化学組成、表8に原料配合割合を示す。

供試火山灰は非可塑性原料であるので成形能を考慮して弱火性ではあるが可塑性の強い頁岩質の山之口粘土、耐火性のある入来カオリンの二種を用いて素地の調整を行った。成形法としては、押型、機械ロクロ、鋳込、ロクロ成形を試みた。火山灰70%、可塑性原料30%配合素地では、ロクロ成形のみ若干成形能が劣るが、火山灰60%可塑性原料40%配合素地では、ロクロ成形も可能である。

表 6 桜島火山灰とシラスの焼成性状の対比

焼成温度 ℃	1000	1050	1100	1150	1200	1250	1300	
桜島火山灰	未焼結	＋ 焼結	＋＋ 焼結	＋＋＋ 焼結	＋ ガラス化	＋＋ ガラス化	＋＋＋ ガラス化	黒色ガラス
シラス	未焼結	焼結	＋ 焼結	＋＋ 焼結	＋＋＋ 焼結	発泡	＋ ガラス化	灰色ガラス

(電気炉, ルツボ試験, 試料 20 g)

表 7 供試原料の化学組成

成分 原料	化 学 組 成 (wt%)								
	Ig.loss	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O
桜島火山灰	0.31	60.64	17.22	6.36	0.81	7.04	2.64	2.87	1.60
山ノ口粘土	10.25	60.74	18.17	5.23	—	0.16	1.20	—	—
入来粘土	12.17	56.18	30.24	2.04	—	0.13	tr.	—	—

表 8 原料配合割合

原料 試料No	(wt%)				
	A-1	A-2	B-1	B-2	
桜島火山灰	70	60	70	60	(80目通過粒分)
山ノ口粘土	30	40			(60目 #)
入来粘土			30	40	(60目 #)

2.2.3 焼成試験と低火度釉薬の調整

配合素地 A-1, A-2, B-1, B-2 についてテストピース 30%×50%×7% を作製し 750℃ で素焼を行い 1100℃ と 1120℃ の設定温度で電気炉による酸化焼成とガス窯による還元

焼成を行った。焼成条件として 電気炉 焼成時間 7 時間, 保持時間 20 分, ガス窯 焼成時間 5 時間 30 分, 保持時間 20 分とした。表 10 に焼成物の吸水率及び表 11 に低火度釉薬と着色金属酸化物の割合の一例を示す。

表 10 焼成物の吸水率

(単位: %)					
窯 炉	焼成温度	A-1	A-2	B-1	B-2
電気窯 (酸化)	1100℃	6.1	7.7	10.0	11.5
	1120℃	4.1	4.8	6.2	7.1
ガス窯 (還元)	1100℃	4.3	5.0	7.5	8.6
	1120℃	1.6	2.0	5.5	6.9

表 11 低火度釉薬と着色金属酸化物の割合

	青 釉	緑 釉
フリット	100	100
酸化チタニウム	3	—
酸化銅	—	3

1100℃、1120℃の焼成温度における焼成物の吸水率の結果からも明らかのようにA-1、A-2は焼結が進行するが、B-1、B-2は入来カオリンの影響で焼結性は不良であるが焼結温度域に幅があることがわかる。目的としては火山灰の配合比を多くして、低温度で焼結させ省エネルギー化を図ることであるので、試作品としてA-1、A-2素地で押型による灰皿、盛皿、機械ロクロによる菓子鉢、鋳込による花瓶、特にA-2素地ではロクロによる湯呑、酒器等を試作した。この素地に適合する低火度釉には、日本フェロー社製#1121を用い、着色金属酸化物としては各々3%のチタン、酸化銅を添加して釉を調整し、施釉後酸化焼成を行った。焼成温度は1070℃と1100℃とした。このことは、テストピースによる1100℃と1120℃に設定した焼成試験の結果から判断して、低火度釉を施釉することにより素地の焼結が更に促進し、変形が予想されるためである。

2.2.4 結果

火山灰の陶磁器素地への利用として、火山灰

60～70%、粘土40～30%を配合することにより、従来の黒薩摩焼の焼成温度1230℃～1250℃に対して、易溶結性の火山灰の影響で、1070℃～1100℃で焼成が可能となり省エネルギー化が図られ、これに適合する低火度の釉薬を調合検討した結果、コバルトブルー、エメラルドグリーン等の色調の多様化が可能となった。

2.3 火山灰を活用した陶磁器釉薬の開発

2.3.1 釉薬原料としての性状

供試火山灰は火山ガラス、斜長石が主体であり、既報⁵⁾「シラスによる釉薬について」よりも Fe_2O_3 、 CaO の含有がシラスに比して多いことと、化学組成的には降下地点、粒度別でも均質であることが特徴である。また化学成分結果から判断して1230℃～1250℃焼成温度域の釉薬として単味でも黒釉薬として利用が可能であることが考えられる。

2.3.2 供試原料の化学組成と釉薬の調合

釉調の多様化を図るため、表12に供試原料の化学組成と表13、表14に18種の釉薬の調合例を示す。なお、火山灰は200メッシュ通過粒分を用いた。

表12 供試原料の化学組成

成分 原料	化 学 組 成 (wt%)								
	Ig.loss	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	TiO_2	CaO	MgO	Na_2O	K_2O
桜島火山灰	0.31	60.64	17.22	6.86	0.81	7.04	2.64	2.87	1.60
けい石	—	99.50	0.20	0.02	—	0.02	0.01	—	—
朝鮮カオリン	13.13	45.57	38.96	0.55	—	0.74	0.33	0.46	0.26
蛙目粘土	13.89	46.98	37.13	0.96	—	0.35	0.22	0.21	0.26
石灰石	43.86	—	—	0.02	—	54.08	—	—	—

表 1 3 釉薬の調合

No.	(wt %)									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
桜島火山灰	100	95	95	90	90	90	85	85	85	85
けい石		5		10	5		15	10	5	
朝鮮カオリン			5		5	10		5	10	15

表 1 4 釉薬の調合

No.	(wt %)							
	11	12	13	14	15	16	17	18
桜島火山灰	80	75	70	65	75	70	65	60
けい石	5	10	15	20	5	10	15	20
石灰石	5	5	5	5	10	10	10	10
蛙目粘土	10	10	10	10	10	10	10	10

2.3.3 施釉及び焼成試験

従来、黒窯摩に用いられている素地で径50%
高さ30%の酒杯形のテストピースをロクロ成形
により作製し、素焼後18種の調合釉を施釉した。
非可塑性原料のみの調合釉No.1, No.2, No.4,

No.7についてはCMCを添加して粘度を附与した。

焼成はガス窯を用い1250℃(SK8)で酸化
焰、還元焰焼成を行った。図4に配合比の関係を
三角座標で示す。

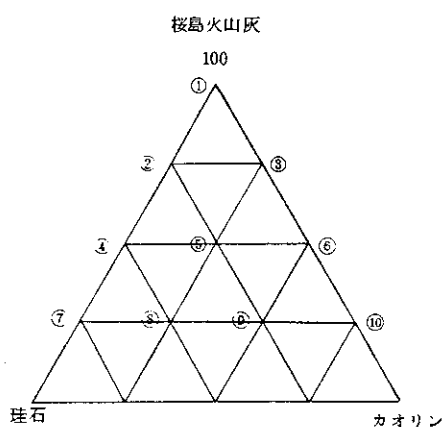


図 4 釉薬の調合例

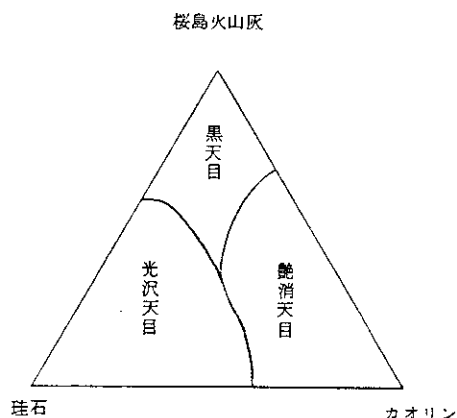


図 5 天目釉の釉調

化学成分の結果から予想されたとおり火山灰単味で酸化焰、還元焰焼成とも黒天目釉が得られた。還元焰焼成では渋味も加わり1250℃焼成域の釉薬として実用性が確認され、更に釉調の多様化を図るためけい酸塩原料、媒溶原料等を配合することにより図5に示す天目釉の巾広い釉調が得られた。これをもとに皿、酒器、花瓶等を試作し各々の釉薬を施釉し、焼成雰囲気を変えて商品化を図った。

2.3.4 結果

従来の黒薩摩焼の焼成温度域(1230℃~1250℃)の釉薬として、火山灰の性状と焼成試験結果から火山灰単味で天目釉が得られることが判明し、これにけい酸塩原料、媒溶原料等を配合することにより、黒天目釉、光沢天目釉、艶消天目釉、そば釉等の釉調の多様化が可能となり講習会、技術指導を通じて業界へ指導普及した。

3. おわりに

桜島降下火山灰の性状について諸試験を行った結果、鉱物組成、化学組成的にはほぼ均質であることの知見を得た。この降下火山灰の利

用については一部土産品としての砂時計、樹脂と混合した壁画、陶磁器の素地、釉薬への利用がはかられているが、量的には僅かであるので今後は資源として大量消費の前提にたち、例えばアスファルトの充填材等土木分野の細骨材としての用途等の開発が必要である。

参考文献

- 1) 岡村 巧, 松元弘己, 提 毅一, 塩月敬司,
鹿児島工業専門学校研究報告, 20, 91
(1986)
- 2) 春山元寿, 北村良介, 斉藤雅子, “桜島”,
鹿児島大学南科研資料センター(1986)P. 26
- 3) 鹿児島県編, “桜島火山対策ハンドブック”
(1986)P. 52
- 4) 島田欣二, 福重安雄, 重信 学,
鹿児島大学工学部研究報告, 22, 133
(1980)
- 5) 蘭田徳幸, 肥後盛英, 中重 朗, 野元堅一郎,
鹿工試業務報告書, 16, 11(1969)