



Title	樽前山における自然電位繰り返し測定
Author(s)	宮村, 淳一; MIYAMURA, Jun'ichi
Citation	北海道大学地球物理学研究報告, 67, 137-148
Issue Date	2004-03-15
DOI	<a href="https://doi.org/10.14943/gbhu.67.137">https://doi.org/10.14943/gbhu.67.137</a>
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/14339">https://hdl.handle.net/2115/14339</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	67_p137-148.pdf



## 樽前山における自然電位繰り返し測定

宮村 淳一

札幌管区気象台火山監視・情報センター

(2004年1月5日受理)

### Repeated Measurements of Self-potential in Tarumae Volcano, Hokkaido, Japan

Jun'ichi MIYAMURA

Volcanic Observation and Information Center, Sapporo District Meteorological Observatory

(Received January 5, 2004)

Since 1998, we have conducted repeated measurements of self-potential (SP) on the summit crater of Tarumae volcano, Hokkaido, Japan, to monitor the volcanic activity. The measurements reveal that a remarkable positive anomaly amounting to about +1500mV is distributed on the summit crater and its temporal variation corresponds to the change of volcanic activity, that is, the increase of amplitude and wavelength of the anomaly is accompanied with the increase of volcanic activities such as seismicity and fumarolic temperature between 1999 and 2000. Therefore, the SP method is one of the powerful tools to monitor the volcanic activity.

We propose the hydrothermal system of Tarumae volcano so as to interpret the results of SP measurements and the above mentioned volcanic activities. This system describes the intrusion of hot volcanic gas from depths to an aquifer beneath the summit crater which introduces the seismic activity, increases the fumarolic temperature and progresses the hydrothermal circulation to amplify the SP anomaly.

#### I. はじめに

樽前山は西南北海道東端の支笏カルデラ南壁に生じた後カルデラ火山で、有史以来70回以上の噴火記録を持つ、北海道で最も活動的な火山のひとつである。最後のマグマ噴火は現在山頂部に存在する溶岩円頂丘(以下、山頂ドームという)を形成した1909年の噴火で、その後1917~1936年と1944~1955年に小規模な水蒸気爆発が繰り返された結果、山頂ドームおよびその周辺には多くの火口や亀裂が形成された(石川ほか, 1972)。これらの火口および亀裂では現在も熱活動が続いている(Fig. 1)。最近では、1978年5月14日にA火口(Fig. 1)から小規模な水蒸気爆発が発生し、やや高温(220℃前後)のごく小規模な火山灰粉体流を伴った(勝井ほか, 1979)。気象庁

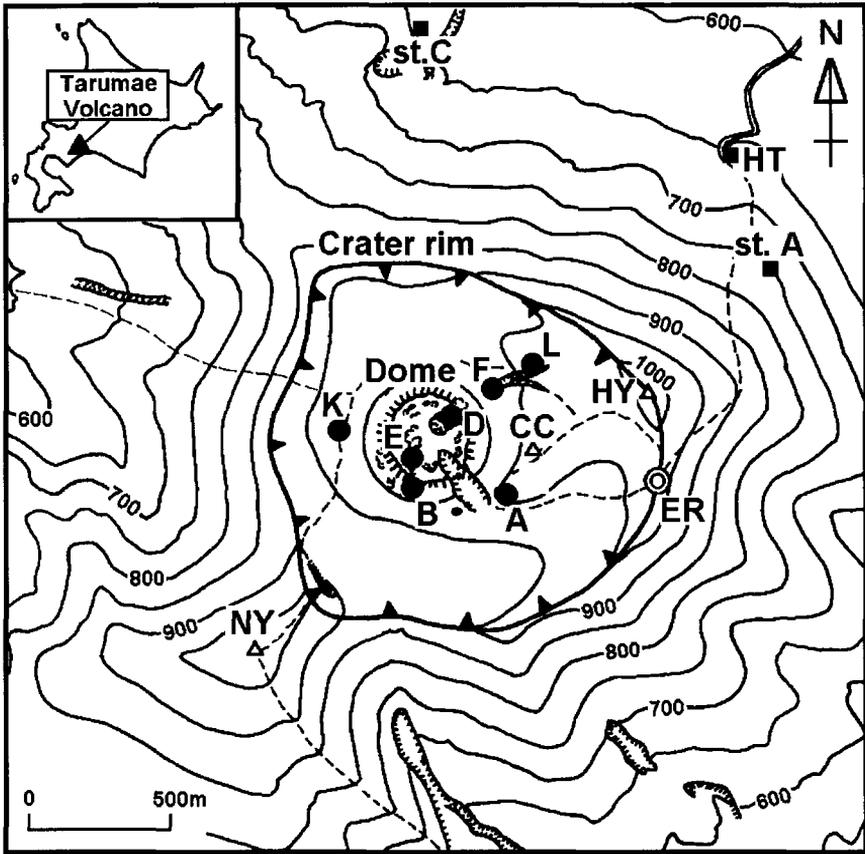


Fig. 1. Topographic map on and around the summit crater of Tarumae volcano. Solid circles indicate the location of craters, fumaroles and geothermal areas, that is, A: A crater, B: B fumaroles, D: D crater, E: E crater, F: F fumarole, K: K geothermal area, L: L geothermal area. Solid squares indicate the location of seismic stations. HY indicates Higashiyama, NY Nishiyama, CC central cone, ER the eastern edge of the crater rim, HT the Nanagoume Hut. Solid lines represent topographic contours which are located at intervals of 50 meters. Seismic observation has been made at st. A and st. C.

は1967年にA点(山頂ドームから北東約1.2 km 地点, Fig. 1)でテレメータ方式による地震の連続観測を開始した(その後, A点は2000年11月時点で山頂ドームの北約1.5 km 地点のC点に移設されている, Fig. 1)。過去36年間の地震観測結果(Fig. 2)を見ると, 上記の噴火活動期間を含む1972~1982年にかけては一ヶ月あたりの火山性地震の回数(以下, 月回数という)がしばしば100回以上を越えており, 地震活動は非常に活発な時期であった。火山灰噴出活動は1981年2月を最後に停止し, それと同時に地震活動も次第に低下していった。1982年以降は月回数が10回以下となり, 観測開始以来最も低いレベルで経過した。

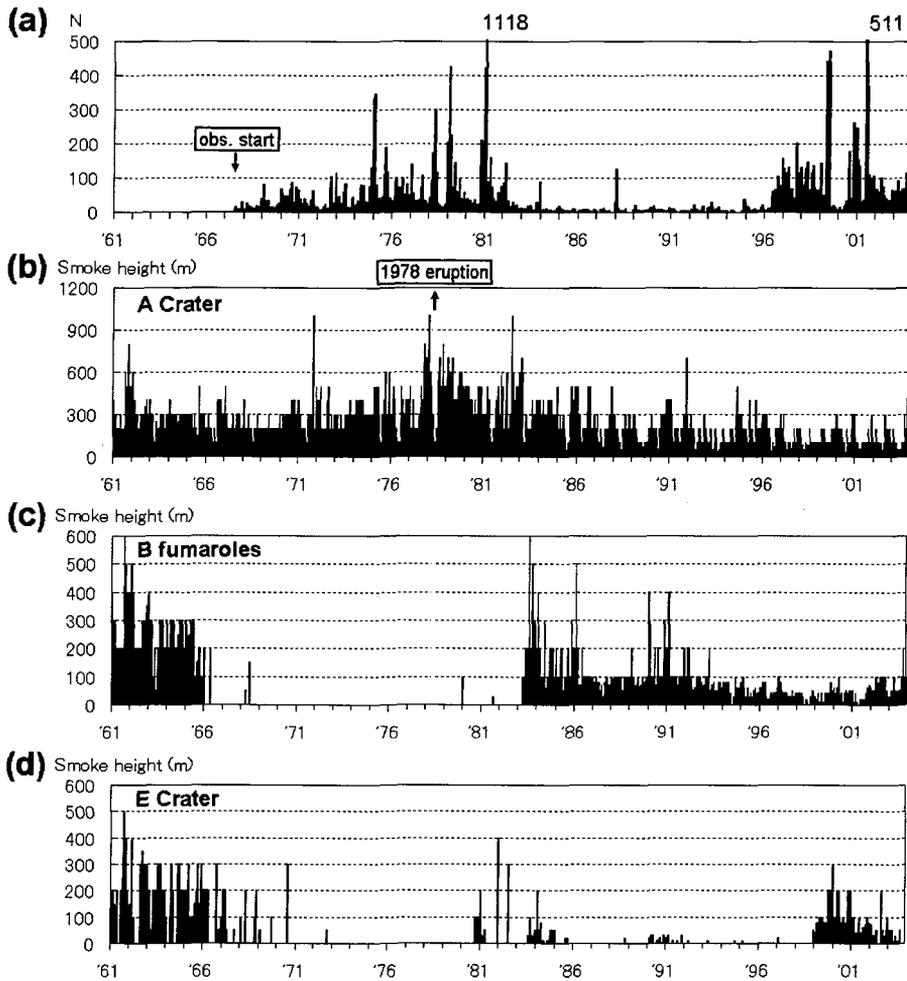


Fig. 2. Temporal variations of seismicity and smoke height during the period from 1961 to 2003 observed by JMA. (a) monthly frequency of volcanic earthquakes, (b) maximum smoke height from A crater, (c) from B fumaroles and (d) from E crater.

しかし、地震活動は1996年6月頃から再び活発化して月回数がしばしば100回を越えるようになった。1999年5月と7月には月回数が400回を越える顕著な地震増加も見られるなど、地震活動は2003年12月現在も増減を繰り返しながら活発な状態を続けている。一方、表面現象では、山頂ドーム上に位置するドーム南西火口（E火口）の噴煙活動が1998年から次第に活発になり、1999年1月以降には苫小牧測候所（山頂ドームから直線距離で約16 km）からも常時確認できる程度にまで噴煙量が増加した（Fig. 2）。その後、1999年からA火口の温度が急激に上昇したのを始め、2002年4月にはドーム南西噴気孔群（B噴気孔群）でも温度上昇が見られるなど、最近は

熱的活動が高まる傾向を示している。

活動的火山では火口あるいは地熱地帯を中心に自然電位（以下、S Pという）の正異常が分布している例が多く、火山で観測されており（たとえば、Nishida et al., 1996）、火山活動に伴うS Pの変動を捉えた例もある（Zablocki, 1976）。これらのことから、S Pの正異常分布は火山活動を評価する上で重要な指標となる可能性がある。樽前山でも宮村ほか（1995）によりS P測定が行われ、火口原内には山頂ドームを中心とするS Pの正異常が分布していることが分かっており、山体浅部に発達する熱水対流系がその原因として考えられた。

札幌管区気象台は樽前山で1996年以降地震活動が活発化していることに注目し、今後火山活動がさらに活発化する可能性が高いと判断して、活動推移を詳細に把握するために地震、全磁力、S P、温度などの各種観測を精力的に行ってきた（札幌管区気象台, 1999；札幌管区気象台, 2001；札幌管区気象台, 2002）。特に、熱水系の活動を定量的に評価する目的で、1998年以来火口原内においてS Pの繰り返し測定を年1回の割合で実施してきた。

この小論では、これまで行ってきた測定により熱的活動に対応したS Pの変動が捉えられたので、その詳細を他の観測結果と合わせて報告するとともに、山体浅部の熱水系について簡単なモデルにより解釈する。

## II. S Pの繰り返し測定

### 1. 測定

樽前山の全山的な電位分布を求めるため、宮村ほか（1995）は北東斜面の7合目ヒュッテ付近（標高665 m, Fig. 1）を基準点とするS P測定を1992年および1993年に行った。その結果、火口原内には熱水対流によると考えられる+400 mV前後の正異常が分布し、火口原の外側斜面には地形効果で説明可能な-1800 mVを越える規模の大きな負異常が存在していることが確認され、全体的な電位分布の振幅は2000 mVを上回る規模となった。しかし、今回のS P繰り返し測定の目的は火山活動による熱水対流の時間変化を捉えることにあることから、作業効率を優先して測定範囲を火口原内に限定して、東側リム（Fig. 1）を基準点とする測定を行った。

S P測定には非分極性である素焼きの銅-硫酸銅電極、入力インピーダンス1 M $\Omega$ のデジタル

**Table 1.** Condition and loop errors of repeated measurements of self-potential.

year	start time	end time	points	loop error (whole area)	loop error (dome area)
1998	Sep. 17 10:20	Oct. 12 11:40	69	-267.1mV	no data
1999	Jul. 21 09:49	Jul. 22 14:27	75	-37.9mV	-33.0mV
2000	Oct. 12 09:10	Oct. 12 14:06	68	+26.1mV	-28.8mV
2001	Oct. 18 10:10	Oct. 19 15:45	63	+5.1mV	-16.1mV
2002	Oct. 9 10:00	Oct. 10 16:07	73	+16.1mV	-15.4mV
2003	Oct. 17 10:06	Oct. 20 17:04	64	-10.9mV	-34.3mV

テスター、長さ 100 m のシールド線を使用した。山頂火口原の東側リム上に基準点を設けて電極を固定し、別の 2 個の電極を 1 組として交互に移動させる方式で火口原内の測定を行った。火口原内に全体として大きなループ状の測線（大ループ）が構成されるように一筆書きの要領で測定を進め、最後には再び基準点へ戻り測線を閉じた。なお、ドーム上部においても小さなループ状の測線（小ループ）が構成されるように、大ループ内のうちドーム登攀開始点（ドーム南東斜面）にあたる測定点を小ループの基準点として電極を固定し、そこからドーム上部への測定を進めた（ただし、1998 年の測定ではドーム上部も大ループの中に含めた）。各測定点に電極を設置する際には、軽石・硫化物・水溜まり・植物体などをできるだけ避けて、湿りが期待される砂質の地面をできるだけ選択した。その結果、いずれの測定点でも深さ 10 cm 程度で十分な湿りがあったことから、電極の設置状況は良好だったと考えられる。

毎年の繰り返し測定の実施状況を Table 1 にまとめる。各年の総測定点数は 63~75 点である。悪天等のため測定の中断を挟まざるを得なかった 1998 年と 2003 年を除くと、いずれも 2 日間ですべての測定を完了することができた。ループ閉合誤差は大ループ（火口原全体）で  $-37.9$  mV ~  $+26.1$  mV、小ループ（ドーム上部）で  $-34.3$  ~  $-15.4$  mV の範囲内にそれぞれおさまった。1998 年の大ループ閉合誤差がその他の年に比べて 1 桁大きいのは、測定開始から終了までの間に約 25 日の長い測定中断を挟んだことが影響していると考えられる。測定データの解析処理においてはループ閉合誤差を測定開始からの経過時間により補正した。

S P 測定では電極の再設置によるデータの再現性がしばしば問題となる。1999 年以降の測定では終了時に東側リムの基準点で電極の再設置および再測定を行った。その結果、再設置による測定値の差は 3% 以内におさまっており、この程度の誤差は測定結果の解釈を行う上で特に問題がない。

なお、測定時における地電流の時間変化を把握するための連続測定等は特に行わなかったが、気象庁地磁気観測所女満別出張所における全磁力および地電流の連続観測結果によると、測定期間中の全磁力は 10 nT 以下の、地電流は数 mV / 100 m 以下の変動がそれぞれ見られたが、今回の S P 測定に影響を与えるような顕著な変動は認められなかった。

## 2. 結果

1998 年から 2003 年までの繰り返し測定で得られた火口原内の電位分布を Fig. 3 に示す。いずれも東側リムを基準（ゼロ）とした場合の相対分布である。コンターはいずれもアイフィッティングに基づいてフリーハンドで描線した。ドーム付近の正異常分布をより詳細に示すため、 $+1450$  mV あるいは  $+1550$  mV のコンターを破線で表現してある。なお、今回の測定で得られた電位分布を宮村ほか（1995）と比較する場合には、基準点が異なることに注意する必要がある。宮村ほか（1995）の 7 目目ヒュッテを基準点とした全山の電位分布では、Fig. 3 で基準点とした東側リム付近は  $-1200$  mV 前後の電位であった。

得られた火口原内の電位分布に見られる特徴は、宮村ほか（1995）による 1992 年あるいは 1993

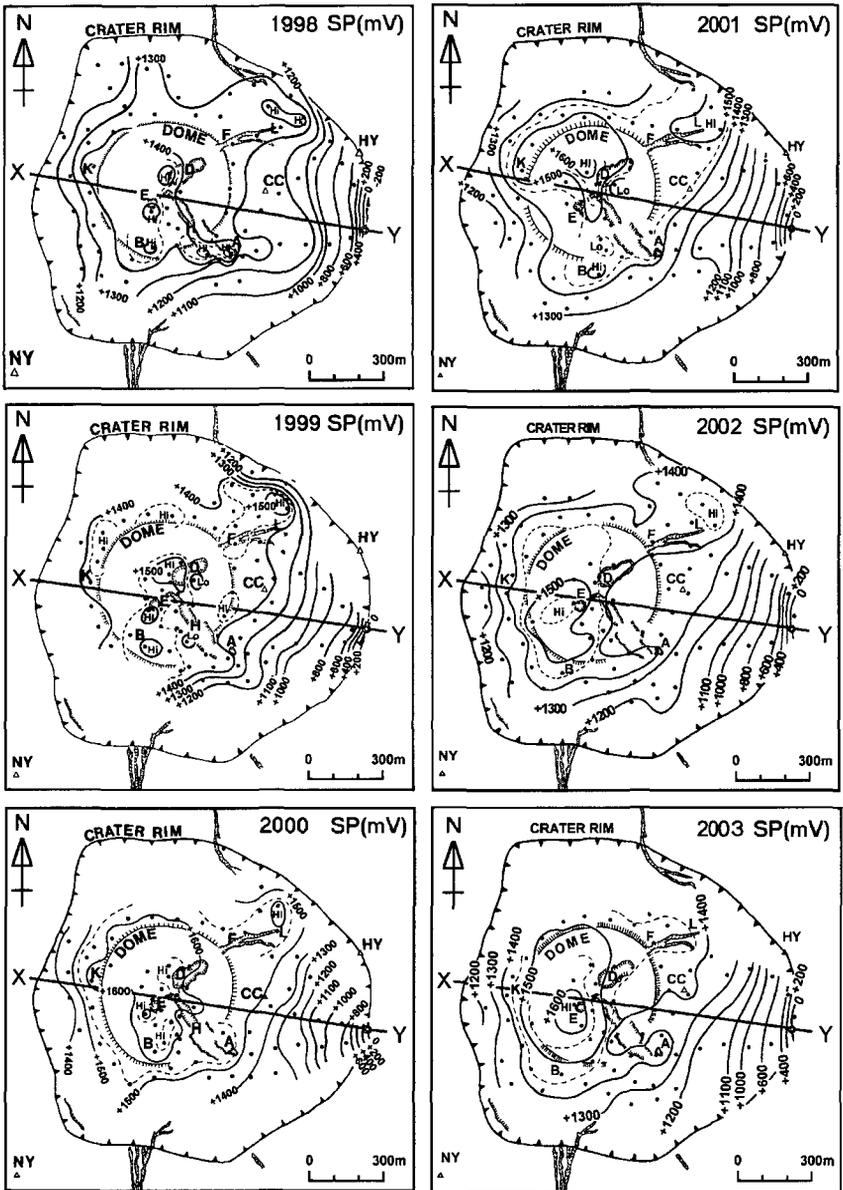


Fig. 3. Contour map of the distribution of self-potential for each year. Contours are located at intervals of 100mV for the range over +1000mV and intervals of 200mV for the range under +1000mV. Dashed lines represent the +1450mV and +1550mV equi-potential contours. “Hi” and “Lo” denote the centers of the positive and negative anomalies. Solid circles and the double circle in the eastern rim of the crater rim denote measurement points and the reference point, respectively. A ~ L indicate the location of craters, fumaroles and geothermal areas and HY indicates Higashiyama, NY Nishiyama and CC central cone as those in Fig. 1.

年の場合と同様で、大局的には山頂ドームを中心とした正異常の分布が見られることである。山頂ドームの中心部からE火口にかけての領域とドーム南側斜面にあたるB噴気孔群付近には+1450 mV以上の大きな正異常が常に分布している。それに比べると、A火口が位置する山頂ドーム南東麓の領域は+1400 mV前後の正異常が常に分布しているが、ドーム中心部～南側斜面ほどの大きな値にはなっていない。A火口は樽前山で最も活発な噴煙活動を行っており火口温度も非常に高い状態が続いているが、電位分布で見ると必ずしも大きな正異常値を示してはいない。

山頂ドーム西側に隣接する火口原西側地熱域(K地熱域)は1983年に発見された沸点以下の弱い地熱地域である(山下ほか, 1984b)。K地熱域には+1400 mV程度以上の正異常が分布しており、地表下に弱い熱水系の存在を示唆していると考えられる。

北東火口原噴気孔(F噴気孔)や北東火口原変色域(L変色域)が位置する火口原北東部には+1500 mV前後の正異常が分布している。この領域は1933～1934年の噴火で生じた亀裂地帯であり、地熱分布との対応が良いことからドーム中心から火口原北東側の浅部に向かう弱い熱水系が発達していると推定される。

一方、中央火口丘(CC)付近は各年の測定においても正異常の高まりが見られない領域である。火口原内はドーム周辺に比較的平坦な地形が広がっているが、中央火口丘が位置する東側の領域に限っては数10 m程度の起伏が存在している。その影響のためこの領域の電位分布には局所的な地形効果が重なり、結果として周囲に比べて正異常の高まりが弱くなっているのかもしれない。

### III. 議 論

Fig. 4には各年における火口原内の電位分布をFig. 3のX-Y測線に投影させて示す。各年もドーム付近にピークを持ったほぼ同じ形状の分布が見られる。詳しく見ると、正異常の分布はわずかに時間変化している様子が伺える。正異常の高まり(振幅)はおおむね+1500 mV～+1700 mVの範囲で、+1200 mV以上の電位の広がり(波長)はおおむね900～1100 mの範囲でそれぞれ変動している。特に、2000年には正異常の振幅と波長が同時に増大していることが注目される。このほか、2003年にも正異常の振幅がやや増大している。

前述したとおり、樽前山では1996年に地震活動が活発化して以来、熱的活動の高まりを示す様々な現象が次々と観測されている。A火口では1999年5月に急激な高温化が進行して600℃以上と極めて高温な状態となり、火口内には赤熱現象も確認された(宮村, 2000)。B噴気孔群では2002年4月27日の日中から噴煙量が増大し、夜間になると噴気孔が明るく見える状態が高感度カメラによって観測され、数日後に行われた現地調査によりB噴気孔群でごく小規模な噴出現象があったことが確認された(札幌管区気象台ほか, 2003)。さらに、2003年10月にも同様な現象が観測された(札幌管区気象台, 2003)。

Fig. 5にはA火口およびB噴気孔群における最近の温度推移を示す。Fig. 4で2000年と2003年に現れたSPの正異常増大はちょうどこれらの温度上昇に対応して発現したことが分かる。したがって、SPの正異常増大は樽前山の山体浅部(山頂ドーム直下)に発達していると考えられ

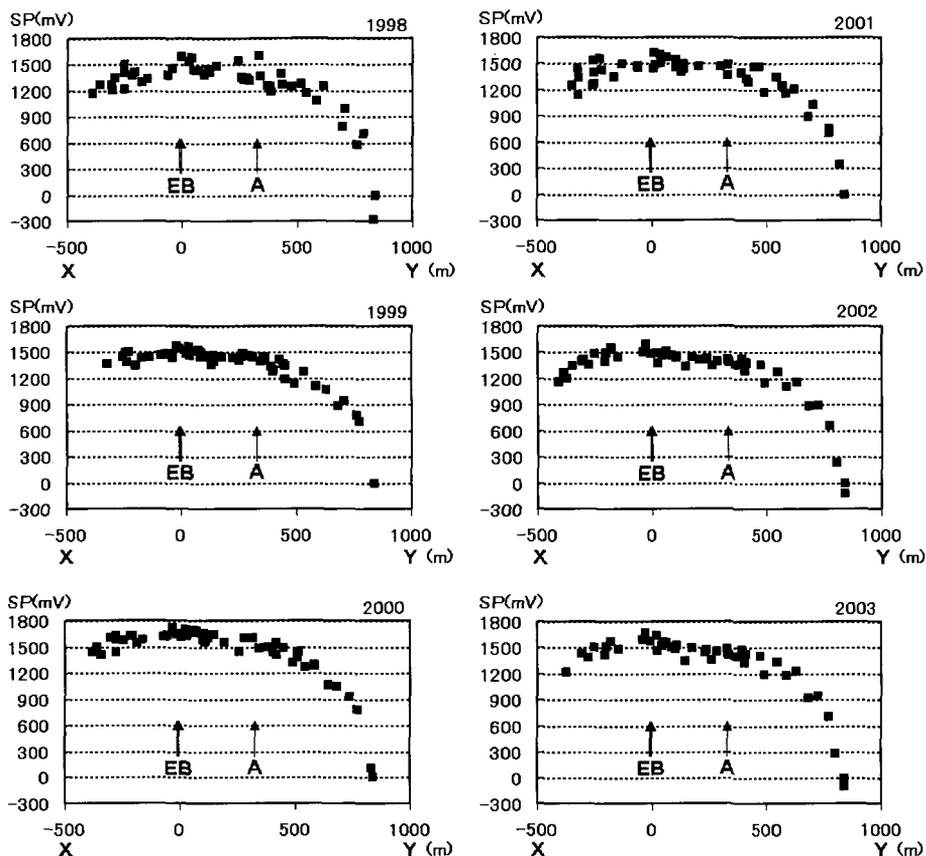


Fig. 4. Self-potential along the X-Y line in Fig. 3. Arrows in the figure show the locations of each crater projected on the X-Y line (A : A crater, B : B fumaroles, E : E crater in Fig. 1).

る熱水系の活動活発化を意味していると解釈することが最も妥当である。宮村ほか (1995) は点電流源を仮定した簡単なモデル計算により S P 正異常の電流源の深さを海拔約 500 m と見積もった。Fig. 4 に示した正異常の波長が 1992 年および 1993 年当時のそれとほぼ同じであることから、電流源の深さに大きな変化はないと推定される。すなわち、樽前山では現在も海拔数 100 m 付近まで熱水上昇が生じていると考えられる。

Fig. 6 には火山灰噴出のあった 1981 年 2 月 (山下ほか, 1984 a), 地震活動が活発化した 1998 年 6 月~10 月 (札幌管区気象台, 1999) および火口温度上昇後の 2002 年 11 月~2003 年 11 月における札幌管区気象台のルーチン処理による火山性地震の震源分布を示す。いずれの期間においても山頂ドーム付近直下の海拔前後の深さに顕著な震源集中域が共通して認められる。このほか、1999 年から 2000 年にかけて山体浅部に全磁力繰り返し観測による弱い熱消磁 (札幌管区気象台ほか,

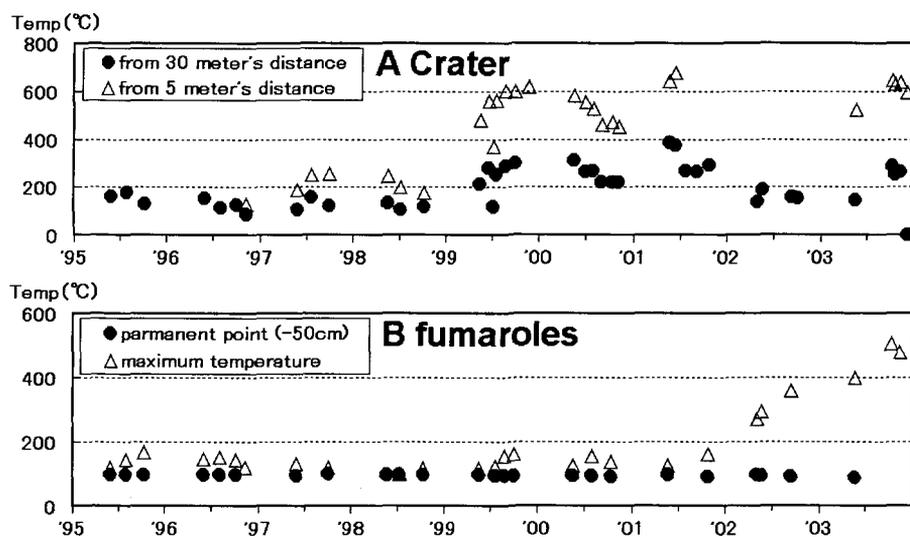


Fig. 5. Temporal variations of the temperature at A crater (upper) and B fumaroles (lower) during the period from 1995 to 2003 observed by JMA.

2002) やGPS繰り返し観測によるわずかな山体膨張 (気象研究所, 2002) が捉えられており, 熱消磁領域や膨張圧力源の深さは Fig. 6 に示した震源分布の上限付近と見積もられている。

Nishida et al. (1996) は活動的火山でSP測定を行った結果, 電位異常の形態から活動的火山を熱源であるマグマと山体内の帯水層の関係により3つのタイプに分類している。樽前山では1909年噴火以降, マグマ貫入を伴う噴火が発生しておらず, 山体浅部には熱源となる高温の貫入マグマが存在していないと考えられることや, 山頂ドームには多くの火口や亀裂が発達しており山体浅部は比較的透水性が高いと考えられることから判断して, 樽前山はNishida et al. (1996) による分類のうち三宅島・北海道駒ヶ岳と同じタイプに属すると考えられる。

一方, 山頂ドームは表面がすでに冷却しているがその内部には現在も熱源となり得る程度に高温状態の貫入マグマが存在している可能性も考えられる。しかし, 石川ほか(1972)によると, 樽前山の1909年噴火による貫入マグマは山頂ドーム直下の半径10m程度, 長さ1.5km前後, その体積は $4.7 \times 10^5 \text{ m}^3$ と推定されており, Matsushima et al. (2001) が求めた有珠山の1977-1978年噴火による貫入マグマの体積( $10^8 \text{ m}^3$  オーダー)に比べるとスケールは3桁程度小さい。また, 渡辺ほか(1984)の電気探査によると, 山頂ドーム直下数100mの比抵抗値は100Ωm程度で, 山頂ドーム中心から400m離れた南火口原とほぼ同じ値を示し, Matsushima et al. (2001) が有珠山の火口原直下に見出した貫入マグマに対応すると考えられる高比抵抗構造は, 樽前山においては見出されていないようである。以上のことから判断すると, 現在の樽前山の山体浅部には熱源としての貫入マグマが存在していないと見るべきであろう。

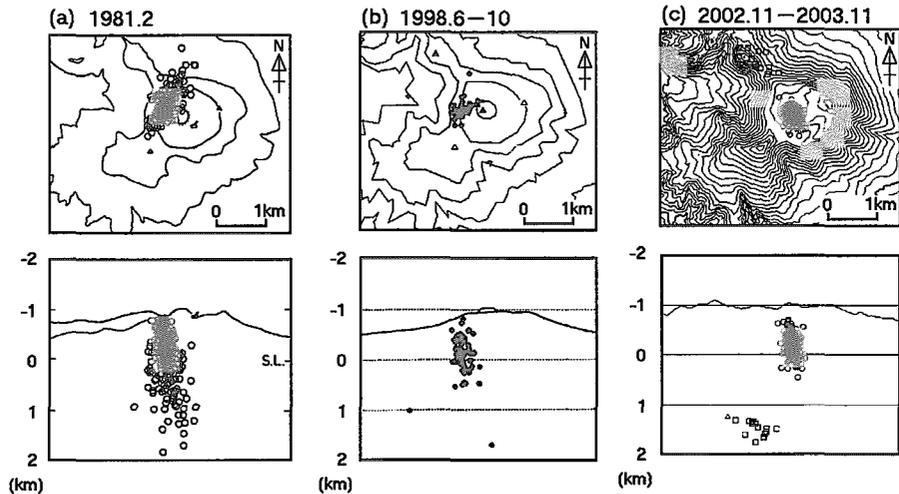
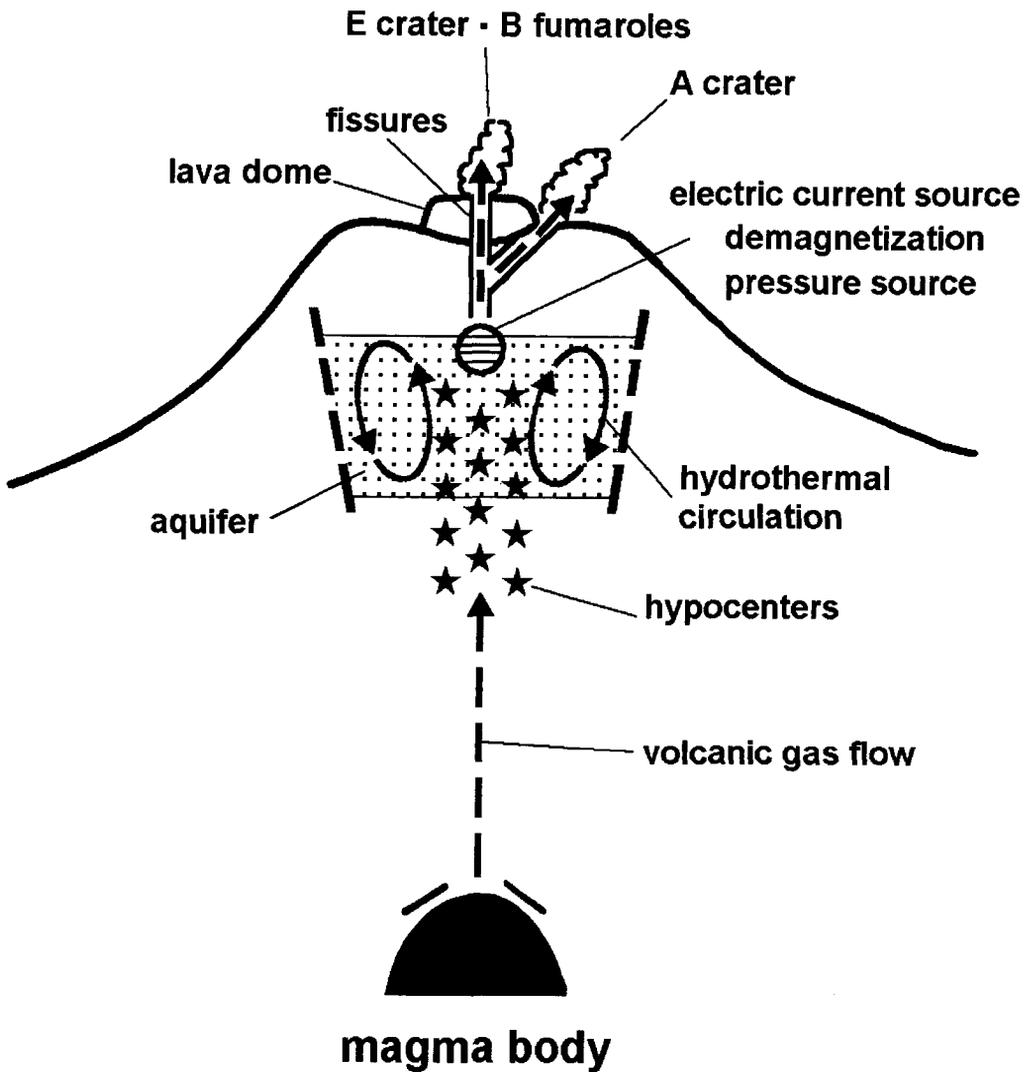


Fig. 6. Hypocentral distributions of volcanic earthquakes at Tarumae volcano. (a) in February, 1981 revised by Yamashita et al. (1984a), (b) from June to October, 1998 revised by Sapporo District Meteorological Observatory(1999) and (c) from November, 2002 to November, 2003 determined routinely by JMA.

樽前山の山体浅部における熱水系を Nishida et al. (1996) の三宅島・北海道駒ヶ岳タイプのモデルに当てはめて考えると、最近観測されている種々の現象は Fig. 7 に示した簡単なモデルにより解釈することができるかもしれない。まず、熱源としてのマグマは深部に存在すると想定する。山体浅部には帯水層が存在しており、熱源から遊離した高温ガスにより熱水対流系が発達している。熱水対流の上昇域に当たる山頂部では、熱水対流に伴う界面動電効果（流動電位）により S P の正異常が分布する。何らかの原因で高温ガスの上昇が増大すると、山体浅部では熱水対流が活発化して S P の正異常が増大する。これに対応して山体浅部への熱水上昇により間隙圧が増大して地震活動が活発化し、熱水上昇域では熱消磁の進行や圧力増加が生じる。Fig. 7 に示したモデルの妥当性を定量的に検証するためには、今後、電気探査や人工地震探査などの手法を用いて山体浅部の微細構造を明らかにする必要がある。

#### IV. ま と め

熱的活動が高まる傾向を示す樽前山において 1998 年以來 S P の繰り返し測定を実施してきた。その結果、火口温度上昇に対応した S P の正異常増大を捉えることができた。これは樽前山の山体浅部に発達していると考えられる熱水対流の活発化を示すと考えられ、対応するように地震活動の活発化やわずかな熱消磁や山体膨張も観測されている。以上の観測結果から、樽前山の火山活動の推移、特に熱水系の活動を把握する上で、S P の正異常分布の監視は非常に有効であると考えられる。火山活動を評価するためには熱水系の活動をリアルタイムに監視することが重要で



**Fig. 7.** Schematic model of geothermal system of Tarumae volcano based on Nishida et al. (1996). Solid arrows represent the hydrothermal circulation in the aquifer denoted by dotted part and dashed arrows indicate the volcanic gas flow with high temperature. Stars denote hypocenters of volcanic earthquakes and the striped circle denotes electric current source, demagnetization area and pressure source.

あり、今後はS Pの連続測定を行う必要がある。

謝 辞 北海道大学の西田泰典教授にはS Pの測定方法、データ解析など全般にわたり熱心にご指導頂きました。北海道大学の小山順二教授には原稿の不備を指摘して頂きました。北海道立地質研究所の岡崎紀俊氏には機材の手配などで大変お世話になりました。樽前山7合目ヒュッテ管理人の山田武重氏、菊池弘範氏には測定作業に便宜を図って頂きました。気象庁地磁気観測所女満別出張所の橋本雅彦氏には女満別における全磁力および地電流の観測資料を提供して頂きました。これまでの繰り返し測定作業には、佐藤十一、高橋裕二、浦島寿仁、松島功、伏谷祐二、加藤幸司、谷口正実（以上、札幌管区气象台）、堀裕貴、長谷川貴彦（以上、苫小牧測候所）、一柳昌義（北海道大学）および大津直（北海道立地質研究所）の諸氏が参加されました。これらの方々にはここに記して心より感謝申し上げます。

## 文 献

- 石川俊夫・横山泉・勝井義雄, 1972. 樽前山, 火山地質・噴火史・活動の現況および防災対策, 北海道における火山に関する研究報告書第2編, 北海道防災会議, 124 pp.
- 勝井義雄・大沼晃助・新井田清信・鈴木建夫・近堂祐弘, 1979. 樽前山 1978年5月の噴火, 火山, **24**, 31-40.
- 気象庁気象研究所, 2002. 樽前山の地殻変動(1999年7月~2000年10月), 火山噴火予知連絡会会報, **79**, 20-22.
- Matsushima, N., H. Oshima, Y. Ogawa, S. Takakura, H. Satoh, M. Utsugi and Y. Nishida, 2001. Magma prospecting in Usu volcano, Hokkaido, Japan, using magnetotelluric soundings, *J. Volcano. Geotherm. Res.*, **109**, 263-277.
- 宮村淳一・田島義美・山内義敬・田村憲次, 1995. 樽前山の自然電位測定, 駿震時報, **58**, 79-90.
- 宮村淳一, 2000. 樽前山の最近の火山活動について, 札幌管区气象台技術時報, **135**, 38-40.
- Nishida, Y., N. Matsushima, A. Goto, Y. Nakayama, A. Oyamada, M. Utsugi and H. Oshima, 1996. Self-potential studies in volcano areas(3)-Miyake-jima, Esan and Usu-, *J. Fac. Sci. Hokkaido Univ.*, Ser VII, **10**, 63-77.
- 札幌管区气象台, 1999. 樽前山・恵山・北海道駒ヶ岳・雌阿寒岳, 北海道地域火山機動観測実施報告, **20**, 118 pp.
- 札幌管区气象台, 2001. 十勝岳・樽前山, 北海道地域火山機動観測実施報告, **21**, 110 pp.
- 札幌管区气象台, 2002. 樽前山・北海道駒ヶ岳, 北海道地域火山機動観測実施報告, **22**, 86 pp.
- 札幌管区气象台・苫小牧測候所, 2002. 樽前山の火山活動 —2000年2月~2001年5月—, 火山噴火予知連絡会会報, **79**, 16-19.
- 札幌管区气象台, 2003. 火山活動解説資料 (2003年10月).
- 札幌管区气象台・苫小牧測候所, 2003. 樽前山の火山活動 —2001年5月~2002年5月—, 火山噴火予知連絡会会報, **82**, 1-6.
- 渡辺秀文・岡田弘・前川徳光・鈴木敦夫, 1984. 樽前火山山頂部における電気抵抗測定 (1983年), 主要活火山の集中総合観測報告, 有珠山第2回 (1982年)・樽前山第1回 (1983年), 177-183.
- 山下済・岡田弘・鈴木敦夫・前川徳光・渡辺秀文・横山泉, 1984 a. 樽前火山の地震活動 (1980年2月~1984年1月), 主要活火山の集中総合観測報告, 有珠山第2回 (1982年)・樽前山第1回 (1983年), 147-156.
- 山下済・鈴木敦夫・岡田弘・東宮英文, 1984 b. 樽前火山山頂部の熱的活動状態 (1983年), 主要活火山の集中総合観測報告, 有珠山第2回 (1982年)・樽前山第1回 (1983年), 185-190.
- Zablocki, C. J., 1976. Mapping thermal anomalies on an active volcano by the self-potential method, Kilauea, Hawaii, *Proc. 2nd U. N. Symposium on the Development and Use of Geothermal Resources*, San Francisco, 1975, **2**, 1299-1309.