

中性子放射化分析による入戸火砕流堆積物の微量元素組成

鈴木 達郎*

(2001年10月15日 受理)

Trace element composition of Ito pyroclastic flow deposit estimated
by instrumental neutron activation analysis

Tatsuo SUZUKI

1. 緒言

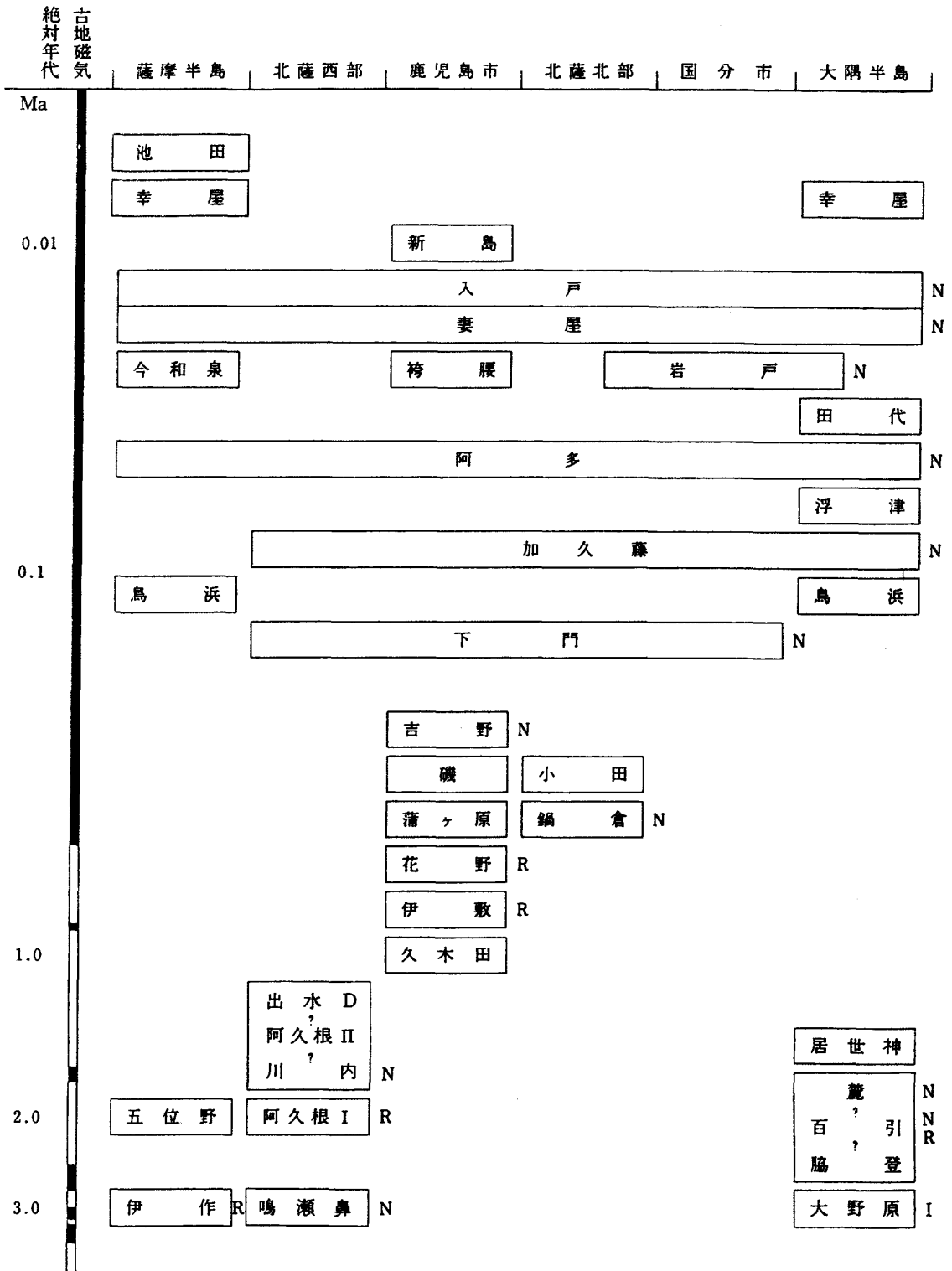
いわゆるシラスは入戸・妻屋火砕流堆積物の非熔結部分であり、鹿児島県全域から南九州地域を広範囲に厚く覆っている。その化学成分・構成要素はどこでも比較的均質なのかあるいは地域的な違いがあるのかは未だ充分明らかにされていない。その微量元素の均質性については未だほとんど報告がない。シラスの工業的利用に関して、とくにセラミックス分野では素材のウラン・トリウムといった天然に存在する放射性核種の影響が近年注意されるようになってきているが、シラスについてはそのような検討をすることのできる基礎データも欠けているのが現状である。そこで南九州に広く分布する大規模火砕流堆積物、とくに入戸・妻屋火砕流堆積物について、試料を採取し、そのバルク試料と一部についてのガラス成分を濃集させた試料について、放射化分析による微量元素成分分析を試みている。また一部のバルク試料については自然状態での放射能分析をおこない、自然放射性核種としてのウラン・トリウム含有量測定も試みている。これらの研究は現在なお継続中であるが、ここに現在までに得ている結果を報告し、それらのデータの意義について検討する。

なお本稿は鈴木 (2001a) にデータを補充し加筆・改訂したものである。

2. 鹿児島県下に分布する火砕流堆積物

いわゆるシラスと呼ばれるものの大半は約25,000年前（最近では29,000年前に補正されるとの見解がある [Kitagawa and van der Plocht, 1998]）に鹿児島湾から噴出した本邦有数の規模を持つ入戸火砕流堆積物の非熔結部分である。鹿児島県下にはFig. 1に示すように、約300万年前の伊作火砕流、100～150万年前の川内火砕流、約20～30万年前（推定）の下門火砕流、約10～20万年前

*鹿児島大学教育学部 Faculty of Education, Kagoshima University, Korimoto, Kagoshima
890-0065, JAPAN



(注) 溶岩および早崎の両火砕流はこの表からは除いた。

N : 正帯磁, R : 逆帯磁, I : 中間帯磁

Ma : 百万年

Fig. 1 鹿児島県下に分布する火砕流堆積物 (鈴木ほか, 1985)

(推定)の加久藤火砕流, 約10万年前(推定)の阿多火砕流, 約25,000年前の入戸・妻屋火砕流などの大規模火砕流堆積物が分布している(鈴木ほか, 1985)。これらの火砕流をもたらした火山活動は現在の鹿児島湾の原型を形成する鹿児島地溝帯に関係していると考えられているが(Aramaki, 1984; など), これらの火砕流に直接関連した噴出口は加久藤火砕流, 阿多火砕流, 入戸・妻屋火砕流についてのみおよそその推定地域があるだけで, その他のものについては全くわかっていない。またこれらの火砕流堆積物の化学組成についての研究は主成分については鹿児島湾周辺についてのデータ(山口, 1975; 山本ほか, 1977)があるだけで未だ不十分であり, 微量成分についての報告はほとんど見られない。

3. 分析試料

鹿児島県下に広く分布する大規模火砕流堆積物(Fig. 1)のうち, 下門火砕流から, 下門(鹿児島市河頭)・樋脇(樋脇町阿母)・轟橋(国分市後川内), 加久藤火砕流から, 地久里(隼人町西光寺)・新川(隼人町湯田)・萩ノ元(国分市見帰)・犬迫(鹿児島市名突), 阿多火砕流から, 蒲生(蒲生町迫)・重久(国分市重久)・春山(松元町春山), 妻屋火砕流から妻屋(国分市岩戸), 入戸火砕流から入戸(国分市入戸・岩戸)・田上(鹿児島市田上)・轟木(宮崎県北諸県郡三股町轟木)の試料を採取し分析試料とした。

4. 中性子放射化分析

中性子放射化分析では原子炉で中性子を照射して試料を放射化し核種ごとに特徴のあるガンマ線を測定し半減期による減衰などを補正し, 同時に照射した標準試料の測定値と比較して目的元素を定量するものである。現在ではゲルマニウム半導体検出器を用いて測定するのが普通である。ゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロメトリーについてはGilmore and Hemingway (1995)などに, 中性子放射化分析法についてはPary (1991)などにその一般的解説がある。

中性子放射化分析法は, 感度が高く一般に試料の前処理などの必要がない簡便な微量元素分析法であり, その特徴として, (1)試料が極少量で良い, (2)非破壊分析が可能である, (3)多元素同時分析が可能である, (4)大量のデータ処理が可能である, などといった利点がある。一方原子炉での中性子照射が必要であり, 照射に際してのマシンの制約を受け, 測定に際しても半減期に制約を受けて実験のタイムスケジュールに自由度が少ない, というだけでなく放射性廃棄物が生成される, などといった欠点もある。

5. 測定方法

中性子放射化分析法による元素定量のための実験の手順をFig. 2まとめて示した。以下に具体的に述べる。

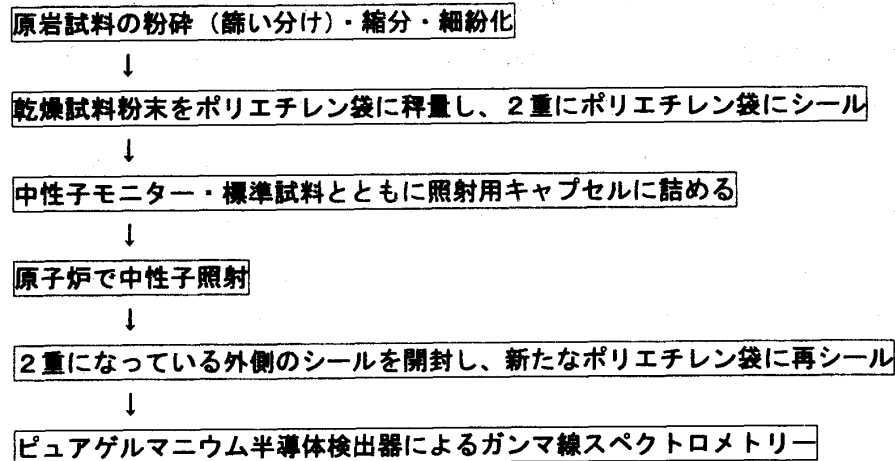


Fig. 2 中性子放射化分析（実験方法）

採取したそれぞれ数kg以上の原岩試料は、非熔結部分のときパミスが含まれれば篩いわけしてパミスを取りだし、また熔結部分であればそのままを数cm大にしたものを、ジョークラッシャーで粉碎し数mm大にする。これを縮分器で縮分して数100g程度にする。放射化分析のためにはさらに縮分して数g程度にしたものをメノウ製ポットミルで微粉末とする。自然放射性核種定量のためには100g程度を縮分して取り分け、コーヒーミル型粉碎機で60メッシュ以下の粒径にする。

放射化分析のためには、110℃ 1晩乾燥した粉末試料をポリエチレン製の薄手の袋に100mgから200mg程度を秤量して照射試料とする。目的試料20個から30個にUSGS（アメリカ合衆国地質調査所）の標準岩石試料のG-2・AGV-1およびGSJ（通産省工業技術院地質調査所、現 産業技術総

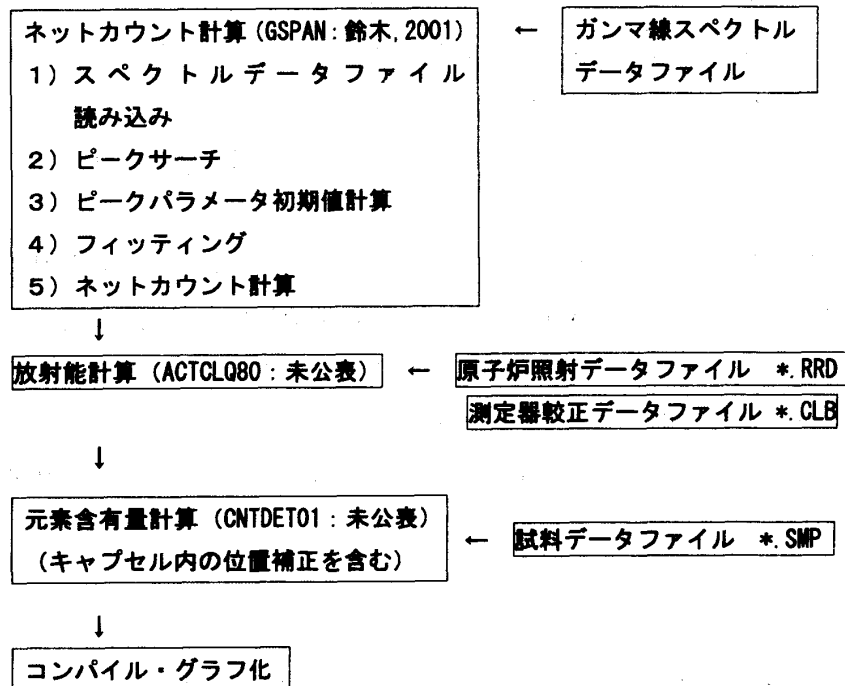


Fig. 3 中性子放射化分析（データ解析の手順）

合研究所)の標準岩石試料のJR-1・JB1aを加えて順序をチェックして照射用キャプセルに詰める。日本原子力研究所東海研究所の研究用原子炉JRR-3M・JRR-4あるいは立教大学原子力研究所のTRIGA Mark IIで中性子フルエンスに合わせて時間を調節して目的に適した照射施設(鈴木, 1994)で中性子照射をおこなう。3日ないし1週間程度冷却後, 中寿命核種定量のため, また2週間ないし1ヶ月後に長寿命核種の定量のための測定をおこなう。

ガンマ線スペクトロメトリーは, フロッピーディスクに保存したスペクトルデータを用いて, まずネットカウント計算(GSPAN:鈴木, 2001b), ついで放射能計算(ACTCLQ80:鈴木, 未公表), 元素定量計算(CNTDET01:鈴木, 未公表)の計算プログラムを使用しておこなった。その解析に必要な計算プログラムとデータファイルをフローチャートとしてFig. 3に示した。中性子照射1ヶ月後に長寿命核種を測定して得た入戸火砕流堆積物のガンマ線スペクトルの1例をFig. 4に示した。この1ヶ月後の段階ではScとTh・Rbといった核種の放射能が強くスペクトル

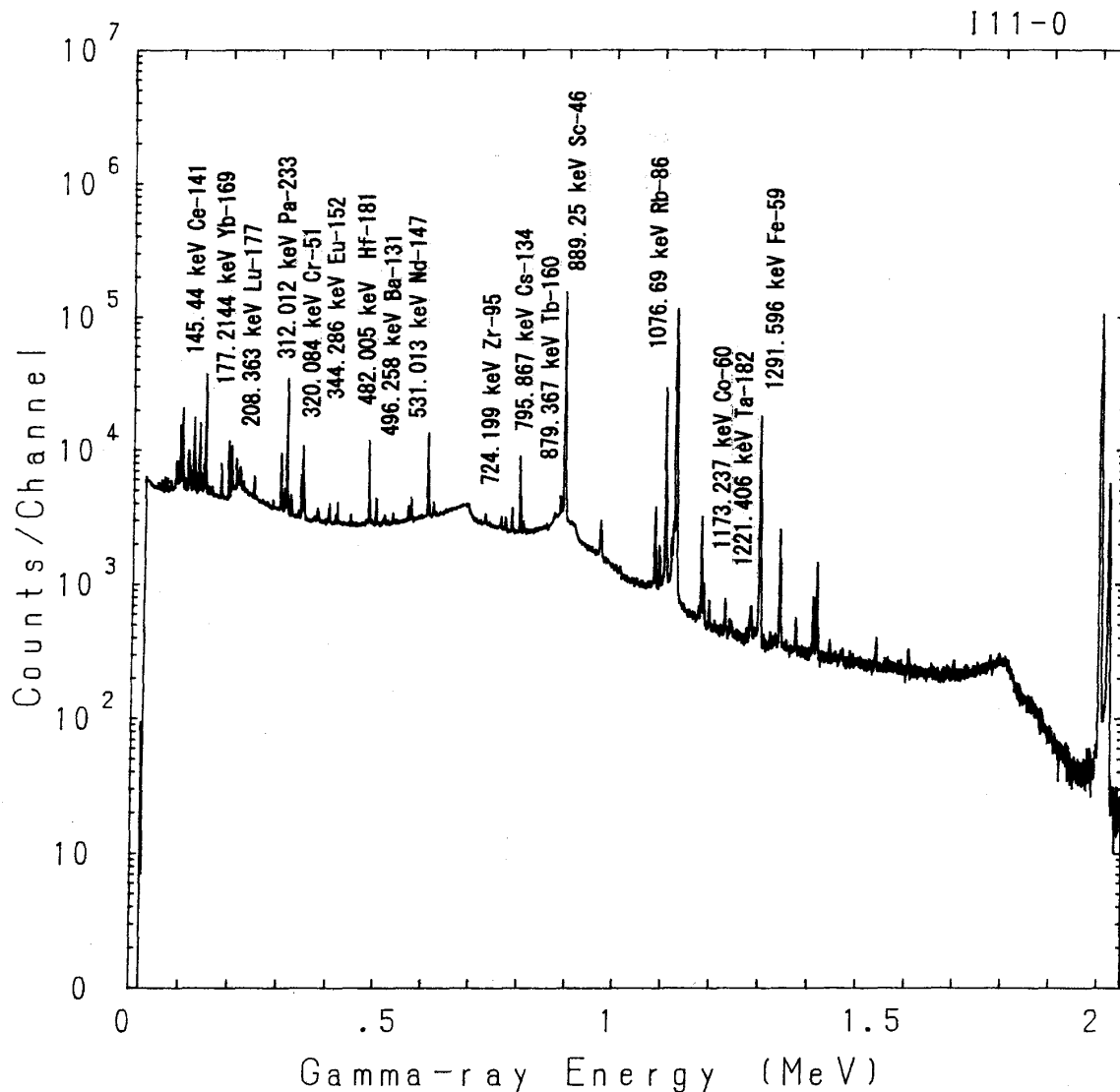


Fig. 4 ガンマ線スペクトルの1例(長寿命核種:入戸火砕流堆積物)

に現れている。これらのスペクトルからのネットカウント計算出力の1例をFig. 5に、放射能計算出力の1例をFig. 6・Fig. 7に示した。

```

** Fitting : GSFIT91A (digital) **                (2001-04-23 20:22:07)

I11-0.LLN (KD3: 0 cm)          DATE= 2001/ 3/ 2  TIME= 13: 51: 51
LIVE TIME = 10000 sec.        TRUE TIME = 10418 sec
TOTAL COUNT = 1.015372E+07
TOTAL COUNT = 1.051819E+07 [0 - 55 ch : QUADRATIC ]

```

PEAKCH	PEAK	AREA	FWHM	SUMCOUNT	BGCOUNT	NETCOUNT	SIGMA
57.55	56.0 -	60.5	1.533	93554	89757	3797	306
63.28	61.5 -	65.0	0.967	52845	50020	2825	230
67.86	66.5 -	69.5	0.934	52770	50210	2560	230
75.41	74.0 -	77.0	1.343	88266	85969	2297	297
84.19	83.0 -	106.0	0.890	42942	40641	2301	207
86.96	83.0 -	106.0	1.144	74280	65802	8478	273
91.40	83.0 -	106.0	1.152	79113	70728	8385	281
94.98	83.0 -	106.0	1.262	109833	80832	29001	331
98.79	83.0 -	106.0	1.256	122889	75780	47109	351
104.07	83.0 -	106.0	1.608	120173	116196	3977	347
110.98	108.5 -	113.0	2.054	209081	191976	17105	457
122.36	120.5 -	126.0	1.223	110124	67949	42175	332
131.07	129.5 -	139.0	1.301	82410	77656	4754	287
133.73	129.5 -	139.0	1.521	134658	101924	32735	367
137.07	129.5 -	139.0	1.332	86479	82510	3969	294
143.37	141.5 -	149.0	1.231	75771	67732	8039	275
146.20	141.5 -	149.0	1.178	151513	62894	88619	389
160.21	159.0 -	162.5	0.803	34296	32462	1834	185
178.19	176.5 -	182.5	1.146	67997	57634	10363	261
193.46	191.0 -	195.5	1.212	81385	62047	19338	285
199.06	196.5 -	201.5	1.380	100920	83736	17184	318
209.59	207.5 -	211.5	1.279	86404	76890	9514	294
217.27	215.5 -	220.0	1.309	90234	83360	6874	300
246.16	244.5 -	248.0	1.302	81412	76058	5354	285
301.59	298.5 -	304.5	2.394	206595	180829	25766	455
309.63	308.0 -	317.0	1.274	55388	50050	5338	235
313.80	308.0 -	317.0	1.327	150732	56723	94009	388
321.95	320.0 -	324.5	1.211	49644	45430	4214	223
337.03	335.5 -	338.5	1.316	44479	43064	1415	211
342.55	340.5 -	350.5	1.476	74613	64517	10096	273
346.28	340.5 -	350.5	1.949	142486	107529	34957	377
375.59	374.0 -	376.5	1.530	64726	63016	1711	254
398.57	397.0 -	403.0	1.184	34012	31614	2398	184
401.03	397.0 -	403.0	1.115	34210	31614	2596	185
418.32	416.5 -	420.5	1.274	49601	45952	3649	223
485.20	482.5 -	488.0	1.510	90669	60365	30304	301
499.51	497.5 -	501.5	1.642	74951	69490	5461	274
534.39	532.5 -	536.0	1.388	52712	51394	1318	230
566.93	565.0 -	568.5	2.205	134631	131164	3467	367
572.98	571.0 -	575.0	1.521	71445	67265	4180	267
608.51	605.0 -	611.0	1.675	119655	83545	36110	346
618.97	617.5 -	621.0	1.942	112297	109038	3259	335
728.53	726.5 -	730.5	2.000	99602	97240	2362	316
761.57	759.5 -	763.5	2.037	96888	94557	2331	311
770.41	768.5 -	772.5	1.541	57055	54683	2372	239
783.76	781.0 -	787.0	1.780	76533	71645	4888	277
800.85	798.0 -	804.0	1.820	97608	71370	26238	312
806.99	805.0 -	809.5	1.680	68060	65907	2153	261
884.83	883.0 -	887.0	2.030	125263	120879	4384	354
894.84	889.5 -	899.0	1.915	715703	99960	615743	846

(continue)

Fig. 5 ネットカウント計算出力の1例 (長寿命核種: 入戸火砕流堆積物)

** Fitting : GSFIT91A (digital) ** (2001-04-23 20:22:07)

111-0.LLN (KD3: 0 cm) DATE= 2001/ 3/ 2 TIME= 13: 51: 51

LIVE TIME = 10000 sec. TRUE TIME = 10418 sec
 TOTAL COUNT = 1.015372E+07
 TOTAL COUNT = 1.051819E+07 [0 - 55 ch : QUADRATIC]

(No. 2)

PEAKCH	PEAK	AREA	FWHM	SUMCOUNT	BGCOUNT	NETCOUNT	SIGMA
970.74	967.0 - 976.0	4.085	239447	229197	10250	489	
1083.46	1080.5 - 1087.0	2.091	50211	37760	12451	224	
1092.52	1090.0 - 1095.0	1.895	34953	31152	3801	187	
1106.07	1101.5 - 1110.5	2.116	167462	42820	124642	409	
1118.85	1116.5 - 1120.0	2.478	62656	58567	4089	250	
1122.24	1121.0 - 1123.0	0.931	19907	18045	1862	141	
1127.51	1124.0 - 1134.0	2.105	532701	29610	503091	730	
1180.52	1177.5 - 1183.0	2.039	33938	22718	11220	184	
1185.64	1184.0 - 1187.5	1.825	16794	15353	1441	130	
1196.45	1194.5 - 1199.0	2.044	19230	17911	1320	139	
1228.98	1227.5 - 1231.0	2.150	20917	19614	1303	145	
1299.53	1294.5 - 1303.5	2.311	100538	15984	84554	317	
1340.72	1337.0 - 1344.0	2.327	27996	16977	11019	167	
1408.91	1406.5 - 1411.5	2.484	18993	16555	2438	138	
1416.62	1413.5 - 1420.0	2.384	20615	14910	5705	144	
2004.14	1997.5 - 2008.0	3.734	1169200	536497	632702	1081	
2021.40	2015.5 - 2026.0	3.104	36832	2028	34804	192	

No of peaks = 67

Fig. 5 (続) ネットカウント計算出力の1例 (長寿命核種：入戸火砕流堆積物)

(2001-04-21 18:51:36)

R1817 (JRR3M PN2)
 Irradiation = 15.0000 min T(i) = 2001/ 2/ 1 14: 0: 0

111-2W.FLA
 111 (R1817) TK4(Whole) (2 cm)
 Coolig Time = 7.0054 days T(w) = 2001/ 2/ 8 14: 22: 43
 Live Time: 1000 sec True Time: 1094 sec
 Pile Up Factor = 1.00000 ± 0.00000
 Corrected Total Counts = 1.708633D+06

Nuclide	Energy(keV)	Netcounts	A(w)*cps	A(0)*cps	A(inf)*cps
Na-24	1368.598	102488 ± 327	1.0323E+02 ± 3.2905E-01	2.9262E+05 ± 9.3276E+02	2.4901E+07 ± 7.9375E+04
K-42	1524.588	506 ± 56	5.1060E-01 ± 5.6343E-02	6.3516E+03 ± 7.0087E+02	4.5622E+05 ± 5.0342E+04
Rb-86	1076.690	730 ± 92	7.2968E-01 ± 9.2251E-02	9.4653E-01 ± 1.1967E-01	2.4469E+03 ± 3.0936E+02
La-140	1596.540	13603 ± 127	1.3639E+01 ± 1.2689E-01	2.4633E+02 ± 2.2919E+00	5.7370E+04 ± 5.3378E+02
Nd-147	531.013	-	-	-	-
Sm-153	103.181	26779 ± 202	2.6839E+01 ± 2.0229E-01	3.2525E+02 ± 2.4514E+00	8.7843E+04 ± 6.6206E+02
Yb-175	396.329	2550 ± 89	2.5525E+00 ± 8.8745E-02	8.1311E+00 ± 2.8270E-01	4.7237E+03 ± 1.6423E+02
Lu-177	208.363	2439 ± 110	2.4402E+00 ± 1.1012E-01	5.0312E+00 ± 2.2704E-01	4.6788E+03 ± 2.1114E+02
Pa-233	312.012	3864 ± 107	3.8641E+00 ± 1.0677E-01	4.6252E+00 ± 1.2780E-01	1.7304E+04 ± 4.7816E+02
Np-239	228.186	-	-	-	-

Fig. 6 放射能計算出力の1例 (中寿命核種：入戸火砕流堆積物)

R1817 (JRR3M PN2)
Irradiation = 15.0000 min T(i) = 2001/ 2/ 1 14: 0: 0

I11-0.LLA
I11 (R1817) KD3 (0 cm)
Coolig Time = 28.9854 days T(w) = 2001/ 3/ 2 13: 53: 55
Live Time: 10000 sec True Time: 10418 sec
Pile Up Factor = 1.00000 ± 0.00000
Corrected Total Counts = 1.051819D+07

Nuclide	Energy(keV)	Netcounts	A(w)*cps	A(0)*cps	A(inf)*cps
Sc-46	889.250	615743 ± 846	6.1605E+01 ± 8.4641E-02	7.8289E+01 ± 1.0756E-01	9.0900E+05 ± 1.2489E+03
Cr-51	320.084	4214 ± 223	4.2202E-01 ± 2.2315E-02	8.7153E-01 ± 4.6083E-02	3.3445E+03 ± 1.7684E+02
Fe-59	1291.596	84554 ± 317	8.4633E+00 ± 3.1737E-02	1.3293E+01 ± 4.9850E-02	8.1930E+04 ± 3.0724E+02
Co-60	1173.237	11220 ± 184	1.1220E+00 ± 1.8423E-02	1.1338E+00 ± 1.8616E-02	3.0232E+05 ± 4.9638E+03
Rb-86	1076.690	12451 ± 224	1.2479E+00 ± 2.2458E-02	3.6620E+00 ± 6.5906E-02	9.4669E+03 ± 1.7038E+02
Zr-95	724.199	2362 ± 316	2.3633E-01 ± 3.1580E-02	3.2345E-01 ± 4.3223E-02	2.8681E+03 ± 3.8326E+02
Cs-134	795.867	26238 ± 312	2.6239E+00 ± 3.1244E-02	2.6948E+00 ± 3.2088E-02	2.8117E+05 ± 3.3480E+03
Ba-131	496.258	5461 ± 274	5.4804E-01 ± 2.7474E-02	2.9992E+00 ± 1.5036E-01	4.9114E+03 ± 2.4621E+02
Ce-141	145.440	88619 ± 389	8.8733E+00 ± 3.8975E-02	1.6465E+01 ± 7.2319E-02	7.4121E+04 ± 3.2557E+02
Nd-147	531.013	1318 ± 230	1.3233E-01 ± 2.3047E-02	8.2460E-01 ± 1.4362E-01	1.2545E+03 ± 2.1849E+02
Eu-152	344.286	34957 ± 377	3.4958E+00 ± 3.7748E-02	3.5102E+00 ± 3.7904E-02	2.3677E+06 ± 2.5567E+04
Tb-160	879.367	4384 ± 354	4.3867E-01 ± 3.5413E-02	5.7915E-01 ± 4.6753E-02	5.8012E+03 ± 4.6832E+02
Yb-169	177.214	10363 ± 261	1.0376E+00 ± 2.6110E-02	1.9433E+00 ± 4.8898E-02	8.6194E+03 ± 2.1689E+02
Lu-177	208.363	9514 ± 294	9.5738E-01 ± 2.9578E-02	1.9110E+01 ± 5.9040E-01	1.7772E+04 ± 5.4905E+02
Hf-181	482.005	30304 ± 301	3.0334E+00 ± 3.0141E-02	4.8724E+00 ± 4.8413E-02	2.8612E+04 ± 2.8430E+02
Ta-182	1221.406	1303 ± 145	1.3034E-01 ± 1.4468E-02	1.5521E-01 ± 1.7229E-02	2.4726E+03 ± 2.7447E+02
Pa-233	312.012	94009 ± 388	9.4155E+00 ± 3.8884E-02	1.9810E+01 ± 8.1813E-02	7.4117E+04 ± 3.0609E+02

Fig. 7 放射能計算出力の1例 (長寿命核種: 入戸火砕流堆積物)

(2001-04-21 19:11:09)

R1817

Element or Constituent	Nuclide	I11-2W I11	I12-2W I12	Average
Na2O (%)	Na-24	3.05 ± 0.01	3.02 ± 0.01	3.03 ± 0.015
Rb (ppm)	Rb-86	122.85 ± 15.87	106.31 ± 16.01	114.58 ± 22.73
La (ppm)	La-140	24.37 ± 0.23	24.11 ± 0.23	24.24 ± 0.328
Nd (ppm)	Nd-147	- -	- -	- -
Sm (ppm)	Sm-153	3.87 ± 0.03	3.80 ± 0.03	3.83 ± 0.042
Yb (ppm)	Yb-175	2.05 ± 0.09	2.04 ± 0.09	2.04 ± 0.128
Lu (ppm)	Lu-177	0.451 ± 0.029	0.423 ± 0.028	0.437 ± 0.040
Th (ppm)	Pa-233	10.67 ± 0.30	10.87 ± 0.30	10.77 ± 0.425
U (ppm)	Np-239	- -	- -	- -

Standard = G2-2

Fig. 8 元素含有量計算出力の1例（中寿命核種：入戸火砕流堆積物）

定量計算ではSiO₂成分として試料の岩質の比較的近いUSGS（アメリカ合衆国地質調査所）のG-2のデータ（Potts et al., 1992）を標準値としGSJ（工業技術院地質調査所，現産業技術研究所）のJR1・JB1aを位置補正のためのワーキングスタンダードとして使用している。定量計算の出力例をFig. 8・Fig. 9に示した。

(2001-04-08 22:08:53)

R1817

Element or Constituent	Nuclide	I11-0 I11	I12-0 I12	Average
Sc (ppm)	Sc-46	9.13 ± 0.03	9.13 ± 0.03	9.13 ± 0.037
Cr (ppm)	Cr-51	6.16 ± 0.40	7.63 ± 0.47	6.89 ± 0.615
Fe ₂ O ₃ (%)	Fe-59	2.54 ± 0.01	2.60 ± 0.01	2.57 ± 0.020
Co (ppm)	Co-60	3.41 ± 0.07	3.79 ± 0.07	3.60 ± 0.100
Rb (ppm)	Rb-86	134.83 ± 3.18	134.66 ± 3.21	134.75 ± 4.52
Sr (ppm)	Sr-85	- -	- -	- -
Zr (ppm)	Zr-95	149.84 ± 21.73	174.81 ± 22.24	162.33 ± 31.31
Cs (ppm)	Cs-134	7.85 ± 0.40	7.48 ± 0.39	7.67 ± 0.560
Ba (ppm)	Ba-131	586.21 ± 30.83	563.63 ± 29.33	574.92 ± 42.54
Ce (ppm)	Ce-141	51.63 ± 0.26	74.85 ± 0.37	63.24 ± 0.446
Nd (ppm)	Nd-147	17.92 ± 3.30	22.41 ± 4.65	20.17 ± 5.60
Eu (ppm)	Eu-152	0.742 ± 0.009	0.722 ± 0.008	0.732 ± 0.012
Tb (ppm)	Tb-160	0.738 ± 0.090	0.744 ± 0.089	0.741 ± 0.126
Yb (ppm)	Yb-169	2.83 ± 0.30	2.61 ± 0.28	2.72 ± 0.408
Lu (ppm)	Lu-177	0.462 ± 0.076	0.454 ± 0.075	0.458 ± 0.107
Hf (ppm)	Hf-181	3.91 ± 0.04	3.92 ± 0.05	3.91 ± 0.064
Ta (ppm)	Ta-182	0.555 ± 0.069	0.716 ± 0.073	0.636 ± 0.102
Th (ppm)	Pa-233	11.84 ± 0.06	12.00 ± 0.06	11.92 ± 0.084

Standard = G2-1, G2-2

Fig. 9 元素含有量計算出力の1例 (長寿命核種: 入戸火砕流堆積物)

Table 1 放射化分析による入戸・妻屋火砕流堆積物の元素組成（中・長寿命核種）

元素 または成分	核種	入戸		妻屋		田上			轟木			入戸・妻屋 (非磁性成分)		
		I1	I3	T1	T2	G1	G2	G3	D1	D2	D3	I2	T3	
Na ₂ O	(%)	Na-24	3.03 0.015	3.6 0.019	2.82 0.019	1.01 0.006	3.01 0.015	3.26 0.017	3.07 0.017	2.68 0.015	3.31 0.018	3.2 0.019	4.17 0.014	1.24 0.007
Sc	(ppm)	Sc-46	9.13 0.037	8.25 0.035	11.44 0.047	9.29 0.038	7.58 0.032	6.43 0.029	7.5 0.032	7.77 0.033	6.24 0.027	7.42 0.032	3 0.01	4.55 0.02
Fe ₂ O ₃	(%)	Fe-59	2.57 0.02	2.42 0.02	3.06 0.024	2.4 0.02	1.91 0.017	1.85 0.017	1.85 0.017	2.05 0.017	1.54 0.014	1.86 0.017	0.757 0.006	0.984 0.008
Co	(ppm)	Co-60	3.6 0.1	2.87 0.09	3.51 0.111	2.19 0.088	2.12 0.079	1.95 0.079	2.07 0.083	2.48 0.083	1.16 0.064	1.69 0.075	0.643 0.035	0.587 0.042
Rb	(ppm)	Rb-86	134.75 4.52	110.61 4.35	85.45 4.65	113.39 4.43	93.39 3.89	82.73 3.86	86.99 3.93	97.62 3.9	90.66 3.61	110.66 4.3	59.21 1.81	86.92 2.5
Sr	(ppm)	Sr-85		172.89 31.01						133.87 22.12	158.38 18.62		335.5 19.34	175.96 18.99
Zr	(ppm)	Zr-95	162.33 31.31	147.42 23.4	202.22 36.56	175.51 35.1	127.47 26.64	134.14 31.9		128 18.62	104.41 15.93		103.34 14.68	120.23 19.96
Cs	(ppm)	Cs-134	7.67 0.56	6.14 0.455	5.51 0.422	7.47 0.549	7.46 0.544	6.5 0.479	7.55 0.553	4.58 0.345	6.4 0.469	7.64 0.559	3.37 0.18	5.52 0.29
Ba	(ppm)	Ba-131	574.92 42.54	523.63 47.24	737.66 60.4	628.27 50.85	356.2 42.05	340.13 51.67	279.3 40.99	516.95 43.25	379.44 39.06	434.32 45.79	370.16 18.43	380.83 26.61
La	(ppm)	La-140	24.24 0.328	19.76 0.338	24.79 0.387	17.94 0.192	21 0.32	20.61 0.342	21.54 0.347	17.42 0.288	20.26 0.329	22.23 0.362	13.98 0.202	12.2 0.184
Ce	(ppm)	Ce-141	63.24 0.446	40.56 0.345	66.72 0.482	67.29 0.477	38.57 0.331	36.54 0.337	37.72 0.343	38.36 0.317	37.84 0.318	43.36 0.365	27.2 0.18	36.8 0.23
Sm	(ppm)	Sm-153	3.83 0.042	3.1 0.041	4.72 0.052	3.07 0.025	3.17 0.041	2.94 0.045	3.2 0.042	2.84 0.036	2.99 0.038	3.46 0.044	1.68 0.023	1.84 0.022
Eu	(ppm)	Eu-152	0.732 0.012	0.648 0.011	1.01 0.017	0.823 0.014	0.803 0.011	0.625 0.011	0.599 0.011	0.608 0.011	0.599 0.01	0.63 0.013	0.794 0.007	0.684 0.008
Tb	(ppm)	Tb-160	0.741 0.126	0.658 0.125	0.918 0.162	0.783 0.135	0.537 0.096	0.458 0.092	0.523 0.103	0.417 0.09	0.534 0.101	0.601 0.109	0.276 0.042	0.488 0.064
Yb	(ppm)	Yb-175	2.04 0.128	1.59 0.122	2.44 0.148	1.9 0.078	1.66 0.118	1.45 0.122	1.68 0.126	1.45 0.104	1.47 0.112	1.72 0.122	0.759 0.064	1.01 0.064
Lu	(ppm)	Lu-177	0.437 0.04	0.358 0.036	0.548 0.047	0.433 0.026	0.372 0.037	0.326 0.036	0.38 0.039	0.29 0.03	0.34 0.034	0.366 0.037	0.185 0.021	0.271 0.02
Hf	(ppm)	Hf-181	3.91 0.064	3.37 0.062	5.07 0.083	4.33 0.071	3.24 0.059	3.21 0.061	3.2 0.062	3.4 0.058	2.88 0.054	3.4 0.063	1.55 0.03	2.49 0.04
Ta	(ppm)	Ta-182	0.636 0.102	0.632 0.104	0.939 0.132	0.867 0.115	0.664 0.096	0.594 0.095	0.615 0.097	0.716 0.104	2.63 0.23	0.652 0.103	0.319 0.038	0.51 0.059
Th	(ppm)	Pa-233	11.92 0.084	9.78 0.08	15.77 0.111	13.47 0.096	9.03 0.075	8.4 0.075	8.49 0.076	9.88 0.076	8.95 0.073	10.55 0.084	5.45 0.04	8.35 0.05

表中の数値は上段：測定値，下段：標準偏差。

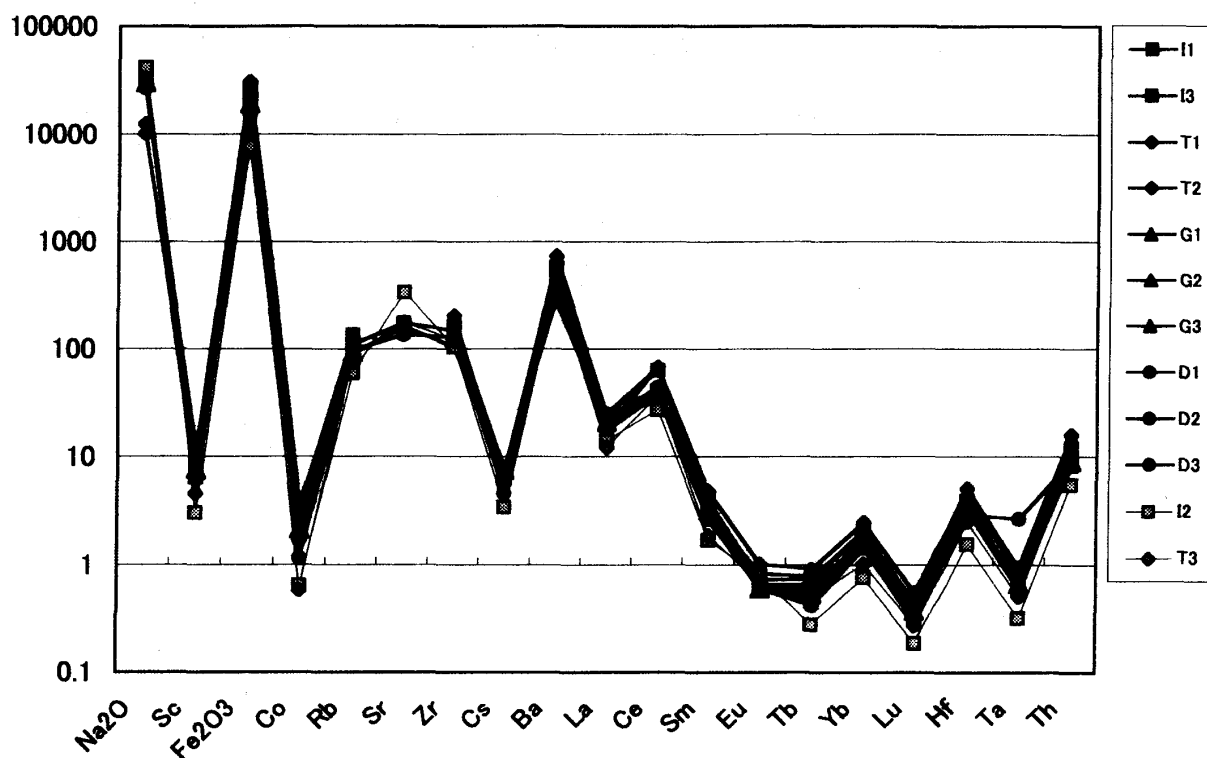


Fig.10 入戸・妻屋火砕流堆積物の元素組成パターン

6. 分析結果と討論

入戸・妻屋火砕流堆積物の放射化分析で中・長寿命核種に関して得たデータを Table 1 に示した。また元素組成の傾向を検討するためにグラフ化して示したのが Fig. 10 である。ここで I3・D1 は熔結凝灰岩であり、その他は非熔結堆積物中に含まれるパミスを篩い分けして得た試料である。熔結凝灰岩では肉眼的な異質岩片の認められない部分を使用している。この分析に用いた試料は、すべて日本原子力研究所東海研究所の JRR-3M 炉の PN2 気送管で照射したものである。12 試料から 19 元素を定量したが、それぞれ同一試料を 2 個ずつ測定しており、ここに示すデータはその平均値である。放射化分析による Sr・Zr の定量精度は岩石試料ではあまりよくないので、試料によっては検出されなかったものもある。これらの元素定量データの全体を見る限りでは、入戸・妻屋両火砕流堆積物では、試料の採取地での違いも大きくなくそれぞれの元素組成の傾向は比較的良く似ているといえる。これらのデータのうち Na・Fe の主成分元素については、湿式分析による山口 (1975) や、蛍光 X 線分析による山本ほか (1977)・Aramaki (1984) のデータがあるが、それらを示す入戸火砕流堆積物の全岩試料の分析値とおおよそ一致した値である。

一方異質岩片やマフィック鉱物をアイソダイナミックセパレーター (高精度電磁分離機) で除いた試料、I2 (入戸)・T3 (妻屋) では全岩試料と比べて多くの元素の含有量は大きく減少している。しかしこの場合もその傾向は試料による大きな違いはないように見られる。これらの試料は単に磁性物質 (弱磁性も含む) を除いただけのものであり、含鉄鉱物の包有物を含まない長石類など

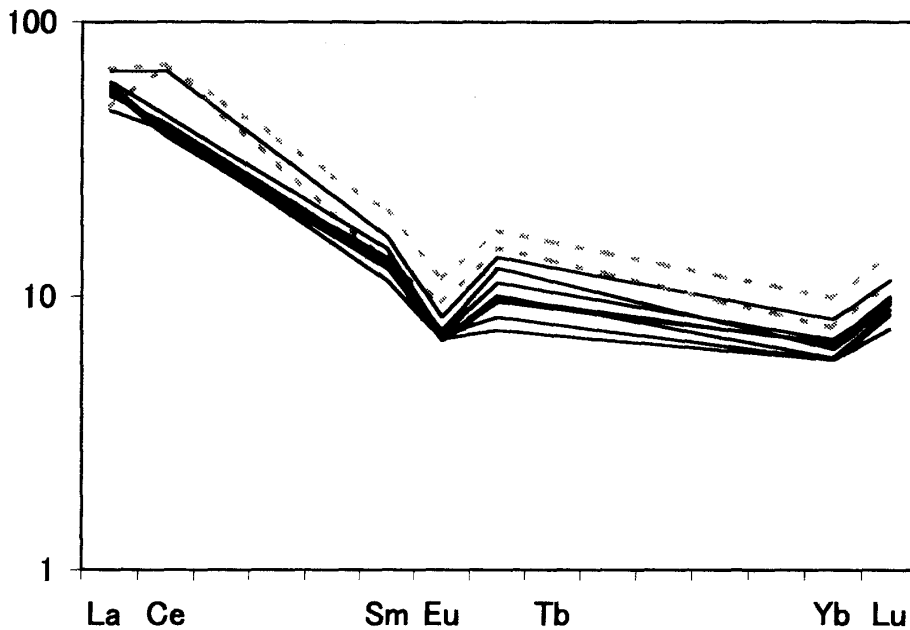


Fig.11 コンドライトで規格化したランタノイド組成パターン (Masuda-Coryellプロット)
非磁性試料I2・T3のデータは除いた。

も含まれており必ずしもガラス成分だけではないがかなりガラス成分の濃集したものである。今回の試料についてのNa・Feの主成分元素の分析値はガラス成分についてのAramaki (1984) や宮地 (1987) の示す値と比較的良く似ている。

今回得られた分析値のランタノイドについて平均コンドライトの含有量 (Henderson, 1984) で規格化したパターンを図示 (Masuda-Coryellプロット) したのがFig. 11である。非磁性成分のみとした試料は除いてあるが、他はおおよそ良く似たパターンとなっている。そのデータは荒牧・増田 (1984) の示すデータと良く一致している。

JRR-3M炉では熱中性子成分に富み、熱外中性子の反応による大きなウランなどの核種は検出しにくい。そのことから岩石試料中のウラン・トリウム定量のため立教大学原子力研究所のTRIGA Mark II炉の回転試料棚RSRを用いる放射化分析もおこなった。鹿児島県下に広く分布する大規模火砕流堆積物のうち、入戸火砕流・妻屋火砕流・阿多火砕流・加久藤火砕流・下門火砕流から採取した試料のウラン・トリウムについてのその分析結果をTable 2とFig. 12に示した。これらのデータを見ると同一火砕流では採取地の違いによらずそのウラン・トリウムの含有量はかなり良く似た値を示すことがわかる。入戸・妻屋火砕流堆積物ではウランは2.3~3.4ppm, トリウムでは11~18ppm含まれていることがわかった。この値はここで検討したどの火砕流堆積物よりも大きな値であり、鹿児島県下の火砕流堆積物のなかではウラン・トリウムはかなり多いということになる。下門火砕流は加久藤火砕流に先立つ火山活動によるものであるが、加久藤火砕流堆積物のウラン・トリウム含有量が下門火砕流堆積物のウラン・トリウム含有量よりも多い。入戸・妻屋火砕流

Table 2 鹿児島県下に分布する火砕流堆積物のウラン・トリウム含量

試料名	Th (ppm)	U (ppm)
入戸火砕流		
入戸 (国分市入戸)	10.71 ± 0.14	2.39 ± 0.22
(国分市岩戸)	13.85 ± 0.17	3.36 ± 0.26
妻屋火砕流		
妻屋 (国分市岩戸)	17.65 ± 0.19	3.10 ± 0.26
	16.25 ± 0.18	3.10 ± 0.23
	11.01 ± 0.15	2.39 ± 0.25
阿多火砕流		
蒲生 (蒲生町迫)	8.60 ± 0.15	2.41 ± 0.30
重久 (国分市重久)	8.19 ± 0.15	2.67 ± 0.33
春山 (松元町春山)	9.03 ± 0.15	1.90 ± 0.30
加久藤火砕流		
地久里 (隼人町西光寺)	13.47 ± 0.17	3.50 ± 0.31
新川 (隼人町湯田)	12.07 ± 0.16	2.94 ± 0.29
萩ノ元 (国分市見掃)	13.13 ± 0.17	3.56 ± 0.31
	13.66 ± 0.17	3.36 ± 0.26
犬迫 (鹿児島市名突)	11.95 ± 0.15	2.96 ± 0.29
下門火砕流		
下門 (鹿児島市河頭)	5.69 ± 0.11	1.69 ± 0.21
	7.19 ± 0.12	1.73 ± 0.27
	7.05 ± 0.13	2.30 ± 0.25
樋脇 (樋脇町阿母)	4.73 ± 0.12	1.79 ± 0.28
轟橋 (国分市後川内)	6.36 ± 0.12	1.36 ± 0.24

堆積物と阿多火砕流堆積物とでも同じような関係にあるのは興味深いことに思われる。鹿児島地域での古期大規模火砕流の大野原火砕流と百引火砕流との間でも、放射化分析でなく自然放射線分析によって得たウラン・トリウム含有量の分析であるが、同様な関係を得ており、この地域における火山活動のマグマ成分の変化を示すものとして有益なデータになると考えられる。

7. まとめ

本研究から得られた結果は以下のようにまとめられる。

- (1) 入戸・妻屋火砕流堆積物の12試料から放射化分析で中・長寿命核種に関して得た19元素の定量

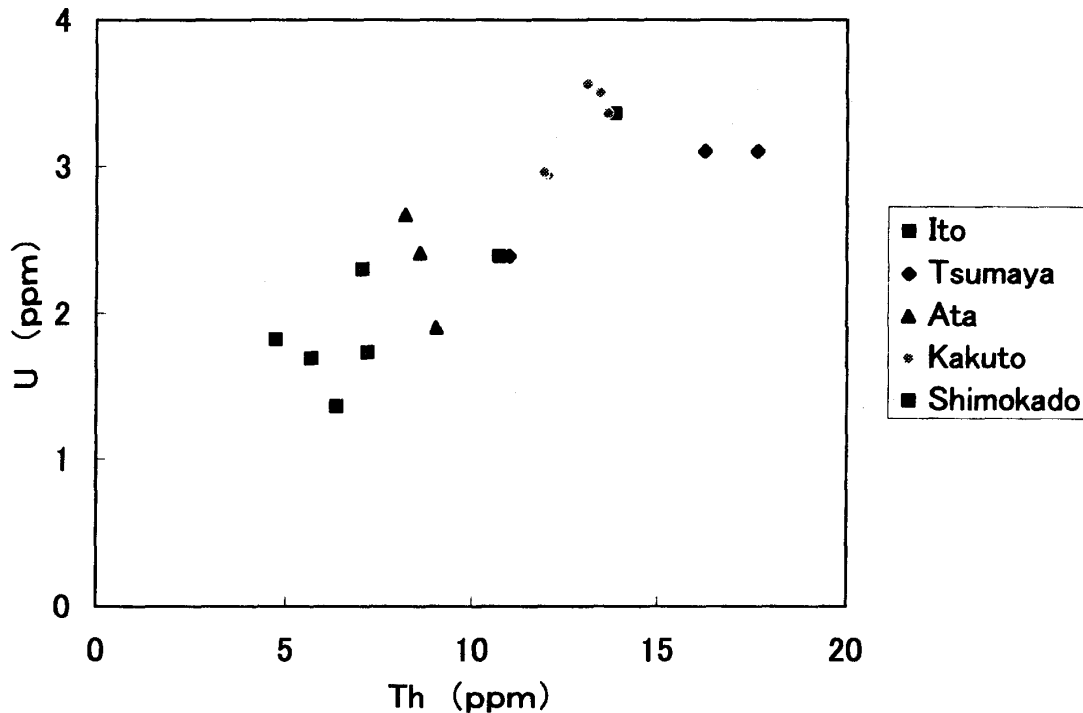


Fig. 12 鹿児島県下に分布する火砕流堆積物のウラン・トリウム含量 (U-Thプロット)

値からは、この火砕流の微量元素含有量の値は比較的均一でありその組成の傾向も比較的似たようなものである。

- (2) 入戸・妻屋火砕流堆積物のウラン含有量は2.3~3.4ppm、トリウム含有量は8.4~18ppmであり、鹿児島県下の大規模火砕流堆積物のなかでは比較的ウラン・トリウムに富む。

本研究では入戸・妻屋火砕流堆積物についてごく一部を見たに過ぎない。ここで得られた傾向が火山活動のステージを更に細かく見た場合でも同様であるかはなお今後の課題である。そのためにはさらに純粋にガラスのみを分離した試料を作成して分析する必要がある。同時にそれはこれらの火山活動による遠隔地における降下火砕堆積物の対比にも必要である。

[謝 辞]

本研究にあたって鹿児島県資源開発協議会（現 鹿児島県新技術開発推進協議会）、東京大学原子力研究総合センター東海分室、同旧横須賀分室、立教大学原子力研究所、鹿児島大学郡元地区共同利用RI実験室のご助力を得た。ここに記して謝意を表す。

引用文献

- Aramaki, S. (1984) : Formation of the Aira Caldera, Southern Kyushu, ~22,000 Years ago. *Jour. Geophys. Res.*, Vol.89, No.B10, p.8485~8501.
- 荒牧重雄・増田暁夫 (1982) : 桜島火山噴出物の化学組成 - 特に希土類元素分布の特徴 - . 第4回桜島火山の集中総合観測. p.103~106.
- Gilmore, G. and Hemingway, J.D. (1995) : *Practical gamma-ray spectrometry*. John Wiley & Sons, 314pp.
- Henderson, P. (ed.) (1984) : *Rare Earth Element Geochemistry*. Elsevier. 510pp.
- Kitagawa, H. and van der Plicht, J. (1998) : Atmospheric radiocarbon calibration to 45,000 BP: late glacial fluctuations and cosmogenic isotope production. *Science*, Vol.279, p.1187~1190.
- 宮地六実 (1987) : 南九州火砕流堆積物の対比について. 九州大学教養部地学研究報告, No. 25, p.9~38.
- Pary, S. J. (1991) : *Activation spectrometry in chemical analysis*. John Wiley & Sons, 243pp.
- Potts, P.J., Tindle, A.G. and Webb, P.C. (1992) : *Geochemical reference material compositions*. Whittles Publishing. 313pp.
- 鈴木達郎 (1994) : 国内研究用原子炉の照射場の特性. *RADIOISOTOPES*, Vol. 43, No. 1, p. 45~47.
- 鈴木達郎 (2001a) : 中性子放射化分析によるシラスの微量元素組成. 鹿児島県新技術開発推進協議会調査研究報告 No. 38, p. 17~26.
- 鈴木達郎 (2001b) : GSPAN : ガンマ線スペクトル解析プログラム. 鹿児島大学教育学部研究紀要 (自然科学編), Vol. 52, p. 33~44.
- 鈴木達郎・山本温彦・大木公彦・小林哲夫・根建心具 (1985) : 鹿児島県火砕流分布図 1 : 200,000. 鹿児島大学特定研究「南九州における火砕流堆積物の時空分布に関する研究」鹿児島大学.
- 山口鎌次 (1975) : 桜島火山の研究 - 鹿児島湾周辺地域及び櫻島火山の地質学並びに岩石学的研究. 日本地学教育学会. 128pp.
- 山本温彦・大木公彦・早坂祥三 (1977) : 鹿児島市地域の熔結凝灰岩の鉱物組成および化学組成. 岩石鉱物鉱床学会誌, Vol. 72, No. 2, p. 67~74.