広島花崗岩と山陰花崗岩中に細脈として
産する雲母粘土鉱物

北川 隆司・柿谷 悟 (広島大学理学部地質学鉱物学教室)

Modes of occurrence and mineralogy
of mica clay minerals in the Hiroshima
and the San'in granitic complexes

Ryuji Kitagawa and Satoru Kakitani;
*Institute of Geology and Mineralogy, Faculty of Science,
Hiroshima University, Hiroshima*

Abstract

The differences in modes of occurrence and mineralogical habits for mica clay minerals constituting clay veins in the Hiroshima and the San'in granitic complexes have been examined by X-ray powder diffraction, DTA, electron microscopic observation and pH method.

Mica clay minerals in the Hiroshima granitic complexes: The clay veins consist of mica clay minerals with an accessories of kaolin minerals and montmorillonite. The mica clay mineral was identified to be 1Md polytype and were poorly crystallized crystal. The Al/Fe+Mg ratios in octahedral positions of the mica minerals is lower than that of the ones from the San'in granitic complexes. Most DTA curves show double endothermic peaks reduced to the main dehydroxylation: one of the peaks appears at about 500°C and the other is between 650–700°C. Those crystals consist of thin irregular plate and elongated-tabular. The abrasion pH value suggests that the minerals was formed under acidic condition.

Mica clay minerals in the San'in granitic complexes: The clay veins consist of mica clay minerals with an accessories of chlorite, kaolin minerals and montmorillonite. Mica clay minerals are 2M₁, 1M and 1Md polytypes and are well crystallized crystals. The Al/Fe+Mg ratios for most specimens are higher than that of the mica minerals from Hiroshima granitic complexes. The main dehydroxylation reaction of most specimens occurs between 650–700°C. Some hexagonal plates with irregular plates and elongated-tabular forms are observed. The abrasion pH values suggest that some of them were formed under the acidic conditions and the others the alkaline ones.

1. はじめに

花崗岩中にはたくさんの粘土細脈が認められるが、それらの産状や成因についての検討はほとんどなされていない。我々は、ここ数年来広島花崗岩（風化、未風化）中に認められる小さな割れ目（節理を含む）を充てんしている粘土細脈の産状とその構成粘土鉱物（雲母粘土鉱物、モンモリロナイト、雲母/モンモリロナイト混合層鉱物、カオリナイト、ハロイサイト）を風化作用による鉱物学的変化を常に念頭におきつつ検討してきた。そして雲母粘土鉱物はモンモリロナイトに変化し、場合によってはカオリナイトにまで変わっていることを知った（柿谷・北川1977, 北川・柿谷1978-a, 北川・柿谷1978-b）¹⁻³⁾。また島根県下の風化花崗岩中の節理を充てんしている粘土（節理粘土）の構成粘土鉱物については三浦・奏（1970）⁴⁾の報告がある。

これらの粘土細脈を構成している粘土鉱物のなかで、雲母粘土鉱物は、その粘土細脈の産状や周辺の母岩の変質状況からして初生的な熱水生成物ではないかと考えているが、まだ結論を得るまでにはいたっていない。そこで、さらに成因についての検討を押し進めるための一方法として、今回、広島花崗岩と山陰花崗岩中の雲母粘土鉱物を主体とする粘土細脈の産状、雲母粘土鉱物と共生している鉱物、さらに雲母粘土鉱物の鉱物学的違いなどについて比較検討した。

試料採取地点の花崗岩と粘土細脈の産状

広島県と島根県の広域にまたがって分布する花崗岩を吉田（1961）⁵⁾は、島根県邑智郡瑞穂町付近を境として、北部を山陰花崗岩、南部を広島花崗岩とした。柴田・石原（1974）⁶⁾は、K-Ar年代結果に基づいて、広島県山県郡大朝町付近を境にして、北部の岩体は約40 m.y, 南部のものは約80 m.yの値を示し、その間に著しい差のあることを報告した。また、東元（1975）⁷⁾は詳細な地質調査をして、大朝町付近を境として北と南とは岩体の産状、岩質の異なることを指摘し、北部を山陰花崗岩、南部を広島花崗岩としている。以上の点を考慮して試料採取地点における花崗岩体を区分した。

広島花崗岩中に認められる雲母粘土鉱物を主とする粘土細脈の産状については、すでに柿谷・北川（1977）¹⁾、北川・柿谷（1978-a）²⁾が報告しているように、ほとんどの粘土細脈において、粘土鉱物は節理のような小さな割れ目をうめて存在する。脈幅は1 mm 程度のものからせいぜい20~30 mm 程度のもので、周辺の母岩はほとんどの場合、雲母粘土鉱物に変質していることは少ない。しかし、周辺の母岩が著しく変質して雲母粘土鉱物が生成し、割れ目を充てんした粘土細脈と合わせると、脈幅20~30 cm もあるような粘土脈も数例観察された。広島花崗岩中の35地点の粘土細脈から70試料を採取した。

山陰花崗岩中にある粘土細脈は、広島花崗岩中のものとほとんど同様の産状を呈す

Fig. 1. Sampling localities of mica clay minerals.

るもののほかに、脈周辺の母岩が脈状に著しく雲母粘土鉱物化しているものがある。この母岩の脈状変質は、小さいものでは脈幅1 cm 程度のものから、大きいものでは脈幅数十m程度のものまでである。特に島根県飯石郡三刀屋町付近では、このような産状のセリサイトを主体となす粘土脈を採掘している。このセリサイト鉱床についてはすでに岩生(1953)⁸⁾の報告がある。また、もう一つの産状として、断層による破碎帯の部分が雲母粘土鉱物に変質し、脈状に認められるものがある。脈幅は、ほとんどが数10 cm から1~2 m 程度のものである。特に飯石郡三刀屋町付近と浜田市付近(雲城花崗岩体)の粘土細脈から約50個の試料を採取した。

広島花崗岩中にみられる粘土細脈は、柿谷・北川(1977)¹⁾、北川・柿谷(1978-a)²⁾が報告しているように、緑色を呈する粘土細脈は、雲母粘土鉱物(雲母粘土鉱物から風化によりできたと考えられるモンモリロナイトを含む)を主体とし、また白色を呈するものはカオリン鉱物を主とするものである。しかし、山陰花崗岩中の雲母粘土鉱物よりなる粘土細脈には、緑色を呈するものと白色を呈するものとの2種が存在する。

Fig. 1 に試料採取地点を示す。北川・柿谷(1978-a)²⁾で報告したように、脈の上下で構成鉱物に変化が認められるが(風化作用によると考えられる)、今回の試料採取には上下の構成鉱物変化について特に考慮しなかった。

2. 実験方法と実験結果

2.1 X線回折

採取した試料を超音波により蒸留水中に分散、懸濁させ、約20分間放置した後、上部の懸濁液を取り出し、遠心分離器にかけ粘土試料を取った。それをガラス板上に塗付したものについてX線回折を行なった。また、雲母粘土鉱物のポリタイプの検討に際しては、粘土試料をガラス板にうめ込んだものを使用した。使用装置は島津ディフラクトメーターで、使用条件は、CuK α , 30 kV, 20 mA, シンチレーションカウンター、時定数2 sec, 走査速度2°/min, スリット系0.8—0.2—1 mm である。

1) 構成粘土鉱物

広島花崗岩中の粘土細脈の試料において、雲母粘土鉱物の示すピーク以外に非常に弱い7 Å 付近にピークが認められる。これは600℃, 12時間の加熱処理によって消失することから、カオリン鉱物と考えられる。また、採取した一試料において14 Å と7 Å にシャープな反射が認められ、600℃, 12時間加熱処理によっても変化がないことから、緑泥石によるものであろう。また、同様に14~16 Å 付近のブロードな反射は、E.G処理により17~18 Å に移動し、新しく8.3~8.8 Å にピークが出現する。これはモンモリロナイトの(001)と(002)反射に相当するものと考えられる。また、500℃, 1時間の加熱処理によって、雲母粘土鉱物の反射に類似する10.0 Å, 4.7~4.9 Å,

Fig. 2. X-ray powder diffraction patterns of 15 Å specimens after various treatments.

3.2~3.3 Åとなる (Fig. 2)。

山陰花崗岩中の粘土細脈にある雲母粘土鉱物以外のもののうち、7 Åと3.5 Å付近にある反射は、600°C、12時間の加熱処理で消え去ることからカオリン鉱物と考えられ、また同様に、14 Å、7 Å、3.5 Å付近のピークは、600°C12時間の加熱処理により変化しないことから緑泥石によるものと考えられる。その他、14~16 Å付近に認められるややブロードな反射は、E.G 処理により17~18 Åに移動し、別に8.4~8.7 Åにピークが出現する。これはモンモリロナイトの(001)と(002)によるものと考えられる。これは500°C12時間加熱処理により、10.0 Å、4.7~4.9 Å、3.2~3.3 Åの反射となり、雲母粘土鉱物の反射に類似する。

両花崗岩中の雲母粘土鉱物は、Fig. 3 で明らかなように、10~11.5 Åの底面間隔を持ち、一般の雲母粘土鉱物に比較してやや大きく、混合層鉱物を形成しているものと考えられる。しかし、鉱物学的特徴は雲母粘土鉱物のそれに類似していることから初生鉱物は雲母粘土鉱物と考える。Fig. 4 に試料採取地点における粘土細脈の構成粘土鉱物を示す。広島花崗岩には緑泥石はほとんど伴なわないが、山陰花崗岩には緑泥石を伴う粘土細脈が多い。また、モンモリロナイト、カオリン鉱物は両花崗岩中の試料ともしばしば伴う。

2) 10 Å 付近の底面間隔

Fig. 3. The halfwidth of 10 Å peak and it's basal spacings.

- : mica clay mineral in the Hiroshima granitic complexes
- : mica clay mineral in the San'in granitic complexes.

広島花崗岩中の多くの試料においての雲母粘土鉱物の $10\text{\AA}$ 付近の反射として $10.0\sim 10.3\text{\AA}$ の値を示すが、山陰花崗岩中の雲母粘土鉱物では、 $9.9\sim 10.1\text{\AA}$ のものが多く、

Fig. 4. The distribution for kinds of clay minerals with mica clay mineral.

- : chlorite and mica clay mineral
- ⊙: kaolin minerals and mica clay mineral
- : mica clay mineral.

これ以上の面間隔の値を持つものは、層間にかなりの水を含んでいるものと考えられる。

3) 10 Å と 5 Å 反射の半価幅

ピークの半価幅は、主として結晶度と結晶粒の大きさによるとされている。雲母粘土鉱物の10 Å と 5 Å 反射の半価幅 (2θ で示す) をX線装置と条件を同じにして、Shirozu and Higashi (1972)⁹⁾ の方法により測定した。Fig. 5 に示す W_1 と W_2 は、そ

Fig. 5. W_1 (10 Å)– W_2 (5 Å) plots for mica clay minerals.

● : mica clay mineral in the Hiroshima granitic complexes

○ : mica clay mineral in the San'in granitic complexes.

れぞれ10Å反射と5Å反射の半価幅を示す。両花崗岩中の雲母粘土鉱物の半価幅をFig. 5に示す。広島花崗岩中のそれは W_1 が0.5以上、 W_2 は0.3以上を示すのに対し、山陰花崗岩中のものは、 W_1 が0.2~0.5、 W_2 は0.2~0.4に集中している。これらの W_1 半価幅は、混合層鉱物になると大きくなり、モンモリロナイト様層が増すにつれてひろがる傾向がある。しかし、モンモリロナイト様層がほとんどない雲母粘土鉱物では W_1 、 W_2 がほとんど同じ値を示し、Fig. 5に点線で示した45°傾斜の線上にのる(Shirozu and Higashi 1972)⁹⁾。上述の結果に示されるように、ほとんどの試料が45°傾斜線上、あるいはその近くに位置する。線上からかなり離れる試料については、混合層鉱物としての影響を強く受けていると考えられる。そこで線上近くにプロットされる試料について広島・山陰花崗岩の雲母粘土鉱物の値を比較すると、山陰花崗岩中の方がかなり小さい値を示す。このことは、山陰花崗岩中の雲母粘土鉱物の方が広島花崗岩中のそれよりも結晶度あるいは、結晶粒の大きさが大きいことを示しているものと考えられる。

4) 化学組成の検討

Fig. 6. The $I(5\text{Å})/I(10\text{Å})$ ratio and the halfwidth of 10 Å peak.

●: mica clay mineral in the Hiroshima granitic complexes

○: mica clay mineral in the San'in granitic complexes.

Nagelschmidt (1937)¹⁰⁾ は、雲母粘土鉱物の 5 Å 反射強度は、白雲母のような二一八面体雲母では、黒雲母や金雲母のような三一八面体雲母よりも相対的に強いことを示した。また、Klingediel and Latouche (1962)¹¹⁾, Dunoyer (1970)¹²⁾ は 5 Å と 10 Å の強度比を測定し、アルミニウム、鉄、マグネシウムの相対的量比の検討に利用した。5 Å が 10 Å ピークに対して相対的に強くなることはアルミニウムの多い二一八面体型の雲母粘土鉱物であるとしている。

今回、この方法を雲母粘土鉱物の 5 Å/10 Å 強度比からアルミニウムと鉄・マグネシウムの相対的量比の比較に使った。その結果を Fig. 6 に示す。広島花崗岩中の試

Fig. 7. The distribution for polytypes of mica clay minerals.

○: 1Md, ●: 1M, ●: 2M₁.

料は、 $5 \text{ \AA}/10 \text{ \AA}$ 強度比が全体では $0.2 \sim 0.5$ であるが特に $0.2 \sim 0.3$ と小さい値を示すものが多く、一方、山陰花崗岩中の試料は、 $0.3 \sim 0.4$ と少し大きい値を示すものが多く、なかには $0.55 \sim 0.7$ のかなり大きな値を示すものが存在する。これは Dunoyer (1970)¹²⁾によると白雲母の値に相当するものである。このような結果は一般的に広島花崗岩中の雲母粘土鉱物が山陰花崗岩中のそれに比べて鉄・マグネシウムがやや多くフェンジャイト的なものであらうと考えられる。

5) ポリタイプ

広島花崗岩中の雲母粘土鉱物のポリタイプは、すべて 1 Md である。ところが山陰花崗岩中の雲母粘土鉱物は 2 M_1 からなる試料が多い (Fig. 7)。

2.2 示差熱分析

示差熱分析は、理学電機マイクロ示差熱分析器を使用し、試料約 30 mg 、感度 $\pm 25 \mu\text{V}$ 、昇温率 $10^\circ/\text{min}$ で行なった。

広島花崗岩中の雲母粘土鉱物の構造水脱水反応について比較検討した。

広島花崗岩中の雲母粘土鉱物の構造水脱水反応は、ほとんど二段の吸熱反応が認められる。この二段の吸熱反応において、低温側の反応は、 $500 \sim 550^\circ\text{C}$ 前後で、特に 500°C 付近で起こるものが多い。また高温側の吸熱反応は、 $550^\circ \sim 700^\circ\text{C}$ 付近までかなりのばらつきがあるが、多くは $650 \sim 700^\circ\text{C}$ に集中する (Fig. 8)。一段の吸熱反応においては、一部に $600 \sim 650^\circ\text{C}$ 付近で反応を示すものが認められるが、ほとんど 500°C 前

Fig. 8. The peak temperature of main dehydroxylation and basal spacings.

- : mica clay mineral in the Hiroshima granitic complexes
- : mica clay mineral in the San'in granitic complexes.

Fig. 9. The temperature of single endothermic peak for main dehydroxylation and halfwidth of 10 Å peak.

- : mica clay mineral in the Hiroshima granitic complexes
- : mica clay mineral in the San'in granitic complexes.

後を示し、二段の吸熱反応の低温側の温度とほとんど同じである (Fig. 9)。

一方、山陰花崗岩中の雲母粘土鉱物においては、ほとんど一段の吸熱反応を示し、550～750℃の間でばらつくが、その多くは650～700℃付近に集中する (Fig. 8)。

Tapoadele and Ferranpis (1957)¹³⁾、下田 (1971)¹⁴⁾の示した雲母粘土鉱物の構造水脱水温度と比較すると、広島花崗岩中のものは、イライトあるいはセリサイトの吸熱温度に類似し、山陰花崗岩からのものは、細粒の白雲母の吸熱温度に類似している。また、東・白水 (1975)¹⁵⁾によると、雲母粘土鉱物の吸熱反応において、二段を示すものは、八面体中の鉄、マグネシウムが相対的に多いフェンジャイト組成をもつ雲母粘土鉱物、一段の吸熱反応を示すものは白雲母のようなアルミニウムの多い雲母粘土鉱物に限られることを示している。このことは、広島花崗岩中の雲母粘土鉱物は相対的にアルミニウムが多く白雲母に近いことを示すものと考えられ、X線回折から出した相対的化学組成結果と一致する。

2.3 電子顕微鏡観察

透過電子顕微鏡観察は、日本電子、JEM・T-7型を使用し、加速電圧 60 kV で観察した。

Fig. 10. Electron micrographs (TEM) for mica clay minerals.

Fig. 11. Scanning electron micrographs for mica clay minerals.

Fig. 12. The variation of abrasion pH for mica clay minerals.

広島花崗岩と山陰花崗岩中の雲母粘土鉱物の形態は共に短冊状と板状形態が認められる。まれではあるが、山陰花崗岩中の雲母粘土鉱物のなかには、Fig. 10に示すように六角板状と六角形の外形を示す短冊状形態をもつものがある。一方、広島花崗岩中のものは、すべて不定形である。

また、走査電子顕微鏡観察は、日本電子、JSM・T-20型を使用した。それによると両花崗岩中の雲母粘土鉱物は 10μ 程度の結晶をもつものが多いが、山陰花崗岩中のものには、 $20\sim 30\mu$ 程度のものが認められ、特に三刀屋町周辺の試料に大きなものが多い (Fig. 11)。

2.4 pH 測定

pH 測定は、採取した試料をX線回折の場合と同様の方法で粘土鉱物のみ集め、一度蒸留水で洗浄した後、風乾し、 0.8 g の試料をとり 20 cc の蒸留水中で懸濁させ、一時間放置した後、その上ずみ液にガラス電極をそう入して測定した。使用したpHメーターは、東亜デジタル pH メーター HM-20 B である。

その結果を Fig. 12に示す。広島花崗岩中の雲母粘土鉱物の pH 値は 5.0 から 7.0 の範囲にはいり、酸性を示す。一方、山陰花崗岩中の雲母粘土鉱物は三刀屋町周辺では $4.5\sim 9.1$ と酸性からアルカリ性まで広範囲の値をとる。また浜田市付近 (通称、雲城花崗岩) では、 $4.5\sim 7.0$ と酸性を示す。

このような粘土鉱物の pH はある程度その生成に関与した水の pH に類似する (Hayashi 1973¹⁶⁾, 林・山崎1975)¹⁷⁾。それによると、雲母粘土鉱物の生成環境として、広島花崗岩中のものでは、すべて酸性条件で、山陰花崗岩中のものは、酸性あるいはアルカリ性環境下で生成したものと推定され、生成環境がかなり変化に富むもののようである。

3. ま と め

広島花崗岩と山陰花崗岩中にみられる粘土細脈を構成する雲母粘土鉱物の産状と鉱物学的違いを検討した。

広島花崗岩中の雲母粘土鉱物の産状は、すべて緑色を呈し、小さな割れ目を充てんし、周辺の母岩はほとんど雲母粘土鉱物に変質していない。雲母粘土鉱物に伴う鉱物として、少量のカオリン鉱物とモンモリロナイトがある。また、雲母粘土鉱物のポリタイプはすべて1Mdである。またX線回折から導いた八面体化学組成は、相対的にFe, Mgが多く、フェンジャイトの組成に類似していると考えられる。形態は $1\sim 10\mu$ の短冊状、不定形板状を呈する。示差熱分析による構造水脱水反応は二段を示すものが多く、低温側は 500°C 前後、高温側は $650\sim 700^{\circ}\text{C}$ に反応が集中する。この二段の吸熱反応は、X線結果と同様にFe, Mgの多い雲母粘土鉱物のそれに類似している。またpHは $5.0\sim 7.0$ で酸性を示し、酸性条件下での生成が推定される。

一方、山陰花崗岩中の雲母粘土鉱物は、その産状として三種類認められる。その一つは、広島花崗岩中の産状と同様、小さな割れ目（節理など）を充てんしているが周辺の母岩はあまり変質が認められないもの、また、同様に割れ目を充てんして、その周辺母岩が著しく雲母粘土鉱物に変質しているもの、もう一つは、断層破碎帯に沿って花崗岩が著しく雲母粘土鉱物に変質しているものである。前者二つの産状を示すものは、カオリン鉱物や緑泥石、モンモリロナイトを少量伴う場合がある。雲母粘土鉱物のポリタイプは、 $2M_1$ を持つものが比較的多く、他に $1Md$, $1M$ が認められる。X線回折から検討した化学組成は、一部に白雲母のそれに近いものも認められる。雲母粘土鉱物の形態の多くは、短冊状と不定形板状を示すが、一部に六角板状の形態を持つものがある。結晶の大きさは、一般に $1 \sim 10 \mu$ 程度であるが、一部には $20 \sim 30 \mu$ の比較的大きな結晶がある。示差熱分析による構造水脱水反応は、ほとんど一段で、 $550 \sim 750^\circ\text{C}$ にあり、その多くは $650 \sim 700^\circ\text{C}$ に集中している。これらの反応は白雲母に近い組成の雲母粘土鉱物の反応に類似している。また、pH 値は $4.5 \sim 9.1$ と酸性からアルカリ性となかなり変化に富んでおり、酸性からアルカリ性のかなり広い条件下での生成が推定される。

Table 1. Mineralogical habites for mica clay minerals

		Hiroshima G. C.	San'in G. C.
X-ray	* $10\text{\AA}$ basal spacing	$10.0 \text{\AA} <$	$9.9 \text{\AA} <$
	* halfwidth of $10\text{\AA}$ peak (W_1) and $5\text{\AA}$ peak (W_2) (2θ)	$0.5 < (W_1)$ $0.3 < (W_2)$	$0.2 - 0.5 (W_1)$ $0.2 - 0.4 (W_2)$
	* $I(5\text{\AA})/I(10\text{\AA})$	$0.2 - 0.5$	$0.3 - 0.7$
	* polytype	$1Md$	$2M_1, 1M_1, 1Md$
DTA	* main dehydroxylation	double endothermic peaks	single endothermic peak
	* temperature of peak	$500 - 550^\circ\text{C}$ $550 - 700^\circ\text{C}$	$550 - 750^\circ\text{C}$
TEM SEM	* morophology	irregular plate elongated-tabular form	irregular plate elongated-tabular form hexagonal plate
pH	* abrasion pH	$5.0 - 7.0$	$4.5 - 9.1$

以上のような両花崗岩中の雲母粘土鉱物の鉱物学的特徴を Table 1 に示す。

このように、広島花崗岩と山陰花崗岩中の雲母粘土鉱物からなる粘土細脈において、その産状、雲母粘土鉱物の鉱物学的差が明瞭に認められる。このことは、山陰花崗岩中にはセリサイト鉱床、モリブデン鉱床が特徴的に存在し、広島花崗岩中にはタングステン鉱床が特徴的であるように、鉱床の賦存状態が明らかに異なっており、これは、花崗岩本来の性質の差に起因する（木野崎1952）¹⁸⁾ ことに対比して非常に興味ある事実である。

文 献

- 1) 柿谷 悟・北川隆司 (1977) 鉱雑, **13**, 特別号187-196.
- 2) 北川隆司・柿谷 悟 (1978-a) 粘土科学, **18**, 1-10.
- 3) 北川隆司・柿谷 悟 (1978-b) : 粘土科学, **18**, 31-39.
- 4) 三浦 清・秦 明德 (1970) 応用地質, **11**, 40-72.
- 5) 吉田博直 (1961) 広大地学研究報告, **8**, 1-39.
- 6) 柴田 賢・石原舜三 (1974) 地質雑, **80**, 431-433.
- 7) 東元定雄 (1975) 地調月報, **26**, 513-519.
- 8) 岩生周一 (1953) 地調月報, **4**, 223-238.
- 9) Shirozu, H. and Higashi, S. (1972) Clay Science, **4**, 137-142.
- 10) Nagelschmidt, G. (1937) Z. Krist., **97**, 514-521.
- 11) Klingebiel, A. and Latouche, C. (1962) Compt. Rend, **255**, 142-144.
- 12) Dunoyer de Segonzac, G. (1970) Sedimentology, **15**, 281-346.
- 13) Muñoz Taboadela, M. and Aleixandre Ferrandis, V. (1957) The differential thermal investigation of clay (R. C. Mackenzie ed.) 165-190, Mineralogical Society London.
- 14) 下田 右 (1971) 粘土科学, **11**, 174-191.
- 15) 東 正治・白水晴雄 (1975) 粘土科学, **15**, 78-85.
- 16) Hayashi, M. (1973) 地熱, **10**, 9-46.
- 17) 林 正雄・山崎達雄 (1975) 須藤俊男教授退官記念論文集, 48-53.
- 18) 木野崎吉郎 (1952) 広大地学研究報告, No. 3, 61-77.

(1978, 11, 10 受理)