

# 別府温泉の現況

京都大学理学部 山下 幸三郎

(昭和41年9月4日受理)

## Geophysical Aspects of Hot Springs in Beppu

Kosaburo YAMASHITA

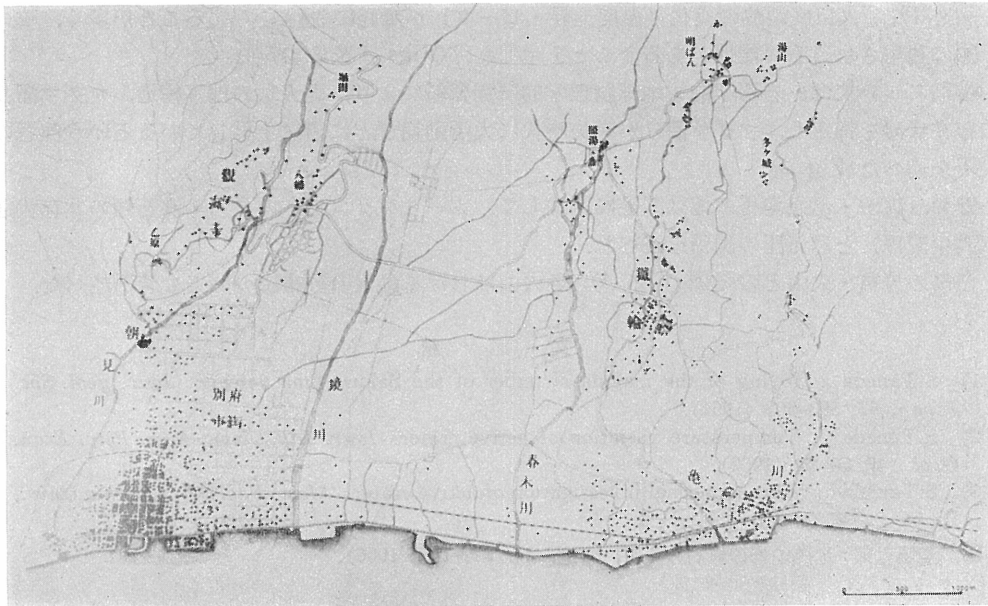
(Geophysical Research Station, Faculty of Science, Kyoto University, Beppu)

### 1. 別府温泉の開発

別府温泉は古くから知られていたらしく奈良時代の「豊後風土記」、また徳川時代には貝原益軒の「豊国紀行」に紹介されている。明治時代になって交通の便がよくなるにつれ温泉利用が盛んになって、今までの自然湧出泉のみでは湯量が不足するようになったので、明治の中期頃より上総掘による温泉ボーリングがはじめられた。特に明治30年以降はボーリングが盛んになって年々百数十口も増加してゆき、温泉口数の増加に伴ない濫掘の弊害が心配されるようになり、明治45年に大分県令による鉱泉取締規則が公布されて一応濫掘は防止された。しかし温泉口数はすでに2千に近い数になっていた。

その後も未開発地帯で幾分増加してきた。戦後昭和30年以降経済の復興とともに、ボーリング技術、揚水技術の進歩によって、今まで主として自然湧出や自然噴気地帯附近の自噴温泉のみ開発していたのが、これらの地帯を遠ざかった温泉水位の地表面より低い、高深度の温泉水層まで開発されて現在のごとき広範囲な温泉分布となった。現在もなお、未開発地帯の温泉開発が続いている。

### 2. 温泉現象と分布



第1図 別府温泉分布図

温泉は市の南部と北部にほぼ東西に亘り集中的に存在する。このような分布状態から温泉は地質構造と深い関係のあることが推察される。別府附近の地質についての研究によれば<sup>1)</sup> 火山活動は大別して2期にわけられ前期火山活動は第三紀の末から第四紀の初頭にかけてこの地域一帯に輝石安山岩を噴出した。この活動の休止期に起った地塊運動により、南部では浜脇—乙原—観海寺—堀田—猪の瀬戸—由布院南部に亘る線、北部では亀川の北部豊岡からほぼ東西に亘る線の中央地帯が沈下した。南部では明瞭な断層崖が見られる。後期の火山活動はこの沈下した中央地帯に起り角閃安山岩を噴出し、この火山活動の末期に由布岳（海拔1,583.5m）、鶴見岳（海拔1,373.5m）が噴出した。温泉は地塊運動によって生じた断層線とこれに伴う2次断層線上に集中している。

温泉掘さくは断層線上にあった自然湧出や自然噴気地帯から始められ、近時ボーリング技術の進歩によって高深度のボーリングが容易になり、断層線を遠ざかった中央部までボーリングが行なわれて温泉の存在が明らかとなった。しかし中央地帯では高深度のボーリングをしなければ所期の温泉はえられない。温泉湧出地帯の大部分は後期火山活動以後の火山爆裂による岩屑、または扇状地堆積物で温泉は断層を通して深部から浅部に流出し、浅部の堆積層中に流入して広範囲の温泉湧出地帯を作っていると推察される。

このような広範囲に多くの温泉が掘られているが、なお未だ自然湧出泉や自然噴気がある。

鉄輪、八幡を結ぶ南北線から以西の山の手は主として噴気や、沸騰泉であり、明礬、湯山地域はほとんどが自然噴気、自然湧出泉で開発は未だ進んでない。これらの地域は別府では地獄地帯と呼ばれ、坊主地獄、海地獄、血の池地獄、竜巻間歇泉等の特殊現象を持つ温泉がある。海岸側では熱水湧出の温泉であるが、亀川南部の一部に海岸近くで沸騰泉がある。

### 3. 温泉口数

明治45年大分県令による鉱泉取締規則ができて温泉が登録されるようになったが、当時すでに2千口近い登録がなされた。その後漸次増加して、昭和23年温泉法の施行当時は2,300口になっていた。昭和30年以降経済の復興により増加しはじめ、特に昭和35年以降は急激に増加しはじめた（第2表参照）。このような多くの温泉口と新しい温泉の開発、密集地帯では既設温泉の埋設導管の閉塞や、破損、湧出量の相互影響等による休止があつて、各温泉の正確な現況を確認することは非常に困難であるが、昭和34~37に亘って調査した結果<sup>2)</sup> にその後の新温泉を加えると第1表のごとくなる。

第1表 温泉口数

|       |        |     |
|-------|--------|-----|
| 全温泉口数 | 活動温泉口数 |     |
| 3,200 | 1,800  |     |
|       | 噴気口数   | 200 |
|       | 沸騰泉    | 35  |
|       | 自噴井    | 68% |
|       | 揚水井    | 32% |

第2表 温泉掘さく許可数

|        |     |     |     |     |     |     |
|--------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| 年次(昭和) | 35  | 36  | 37  | 38  | 39  | 40  |
| 新掘さく   | 73  | 70  | 80  | 75  | 145 | 108 |
| 増掘又は改掘 | 110 | 157 | 144 | 187 | 130 | 95  |
| 計      | 183 | 227 | 224 | 267 | 275 | 203 |

現在活動している温泉口数は全口数の約56%に当り残余は休止している。休止の主な原因は温泉の密集地帯、例えば南部の別府市街地において主要湧出地帯の開発により温泉伏流の末端地帯での湧出が停止し、高深度のボーリングを行なわなければ湧出の見込がなく経済的な理由から放置されているもの、調査時にたまたま湧出が停

止していたもの、現在利用の必要がなく休止のままに放置してあるなどである。

#### 4. 温泉の利用種別口数

活動温泉口数を温泉の利用方法により分類すると第3表の如くなる。各地の温泉地ではほとんどの温泉が旅館その他の公衆浴用に利用されているのに反し、別府温泉では大部分が個人の浴用に利用されている。現在温泉掘さく申請の多くは個人の浴用利用者である。

第3表 温泉の利用種別口数(%) 昭和41年4月 別府保健所調査

| 自家浴用 | 旅館、貸問寮、その他 | 給湯用 | 公衆又は共同浴用 | 温熱栽培 | 観覧用 | 湯の花、その他の製造業 |
|------|------------|-----|----------|------|-----|-------------|
| 56   | 28         | 25  | 6        | 1.5  | 2   | 4           |

給湯用とは山の手にある噴気を利用し地下水又は川水を加熱して温泉のない地域に引湯利用している温泉、または、高温多量に湧出する沸騰泉などであり、最大引湯距離は約6kmある。噴気による加熱温泉の泉源温度は65~75°C、1日の温泉量は約13,000klで、別府温泉の全温泉量の約1/4に当る。

温熱栽培、観覧用、湯の花その他の製造業では主として噴気が利用されている。

#### 5. 温泉の埋設管種及び口径

掘さく温泉井の埋設管は昔時70°C以下の温泉では大部分が竹管を用い、これ以上の高温では鉄管が用いられていたが、現在は70°C以下の温泉では耐蝕性の塩化ビニール管やその他の合成管が用いられている。しかし高温な温泉や、高深度の温泉ではこの種の管は耐熱性が乏しいためと挿入の技術的な問題とから鉄管が用いられている。特に高温な酸性の温泉ではこれに適する特種管を用いた温泉もある。

掘さく温泉の口径は大分県令による鉱泉取締規則により噴気口径は75%以下、その他は50%以下に制限された。戦後温泉法が制定されてからもこの制限を採用している。

#### 6. 温泉の深度

一般に断層線の附近温泉密集地帯で深度は浅く、この地域を遠ざかるにしたがって深くなる。別府市街地では中央の温泉密集地帯が浅く60m前後であるが、この地帯を遠ざかるにしたがって漸次深くなり、特に北部が深く境川附近では350~400mにも達するものがある。亀川地区では中央温泉密集地帯および北部で浅く自然湧出泉もあり、大部分が60m以下であるが、南部に行くにしたがって深くなり200~350m掘られている。鉄輪地区では深度が不同で自然噴気の附近で300mも掘られたものもあるが、概して温泉密集地帯で浅く南部に行くにしたがって深くなる。

別府市街地では開発により温泉口数の増加とともに自然湧出泉や浅層からの温泉は湧出量が減少し、温度も低下してゆくの増掘によって復活を行ない、この結果この温泉深度以浅の温泉に影響をおよぼし、再び増掘が行なわれ、かくして深度は時とともに増深の傾向にある。過去の調査結果によれば1924年平均深度は47mあったが1959年には99mと2倍以上の深度になった<sup>3)</sup>。

亀川、鉄輪の温泉密集地帯でも同様な現象により深度は年々深くなる傾向にある。

#### 7. 温度および湧出量

噴気および沸騰泉の温度は大部分が95~100°Cで100°C以上の噴気は全体の10%以下、最高温度は133°Cである<sup>4)</sup>。海岸部の温泉は南北の温泉密集地帯で高く中央部にいくにしたがっ

て深度は深くなるが温度はかえって低くなる。

別府のごとく多くの温泉があると、ある時点における湧出量あるいは地下よりの採湯量の総量の測定は非常に困難で、測定が長期に亘る時は降雨影響、潮汐影響、老朽温泉の湧出停止や新温泉の増加などがあって正確な測定を一層困難にしている。近時主要温泉湧出地帯から離れた温泉水圧の低い地域が開発されてポンプ揚水井が多くなり、また自噴井地帯でも近時の観光ブームにより湯量の不足から採湯量の増加によって水圧が降下して自噴が停止し、したがってポンプ揚水を行なう温泉が増加しつつある。昭和24年の調査時<sup>5)</sup>には全活動口数の3%程度しかなかった揚水井は現在では32%と10倍以上に増加しているの、これらの揚水井からの揚水量の見積は総温泉量の見積に大きく影響する(第1表参照)。ポンプ揚水井の1日の揚湯時間は個々の温泉の利用目的、日々の利用状況によって長短があって、正確な調査は困難であるが、一部の温泉について調査した結果から概算し、これに自噴井の湧出量を加えると次表のごとくなる。

第4表 別府温泉の総温泉量 (m<sup>3</sup>/日)

| 平均泉温 | 推定総温泉量 | 噴気による加熱温泉量 | 合計     |
|------|--------|------------|--------|
| 56°C | 39,000 | 13,000     | 52,000 |

別府では前述のごとく噴気による加熱温泉がありこの量を合算すると1日約52,000klになり、この量は別府の水道使用量の約1.5倍に相当する。

噴気の流量は測定の大困難から資料は少ないが<sup>6,7)</sup>、近時湯原の測定資料に新たに掘られた噴気の量を推算しますと、全熱量は $2.0 \times 10^6 \text{kcal/min}$ となり、温泉水によって放出される総熱量の約2倍に当る。

別府では前述のごとく未開発地における温泉開発が進められる一方別府市街地、亀川地区など温泉の密集地帯がある。これらの地域の温泉について過去数回の一斉調査が行なわれ<sup>8)</sup>、その結果によれば、近時の調査では温泉口数は増加し平均深度も漸次増大して、深部の温泉が開発されたにもかかわらず湧出量は増大してない。この結果は温泉水層が特殊な構造を持つことを暗示し、また温泉開発が極限に達したことを示すと思われる。近時新温泉の掘さくを制限した地域もある。

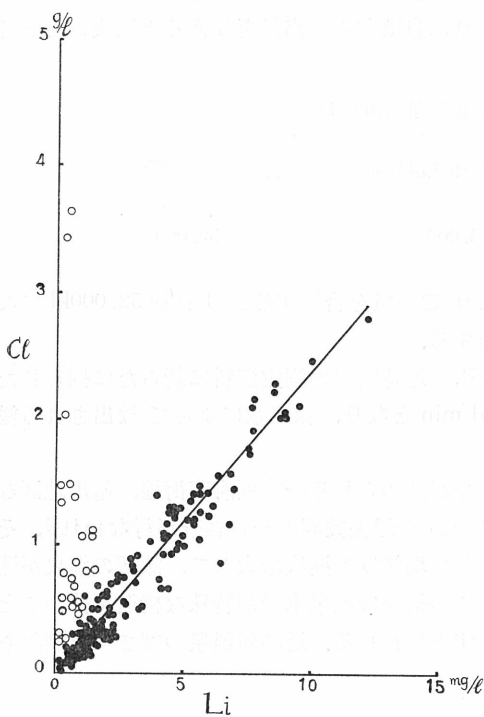
#### 8. 別府温泉の水系

別府温泉は全般的に見ると温泉水圧は山の手で高く、海岸に行くにしたがって低くなっている<sup>9,10)</sup>。しかも山の手には噴気や沸騰泉などの高温な蒸気や熱水が噴出している。従来海岸部の温泉は山の手の高温な地熱地帯の地下において生成され流下し広範囲な温泉湧出地帯ができたと考えられていた。しかし化学成分からの水系の考察<sup>11,12)</sup>では各地域ごとに行ない、その地域の温泉水の詳細な化学成分の特性から地域ごとに別系統の温泉水系として、これと地下水の混合湧出であると説明した。しかし山の手にある沸騰泉水のごとき高温熱水と明確な関連性は見出せなかった。瀬野は沸騰泉水が食塩泉であり、その化学組成が海水と相似していることから、Cl源は海水の混入によると説明した<sup>13)</sup>。近時山の手温泉と海岸部の温泉の中間地帯に多くの温泉が掘られ、温泉伏流の状態から両温泉水間に関連のあることが予想されるようになった。

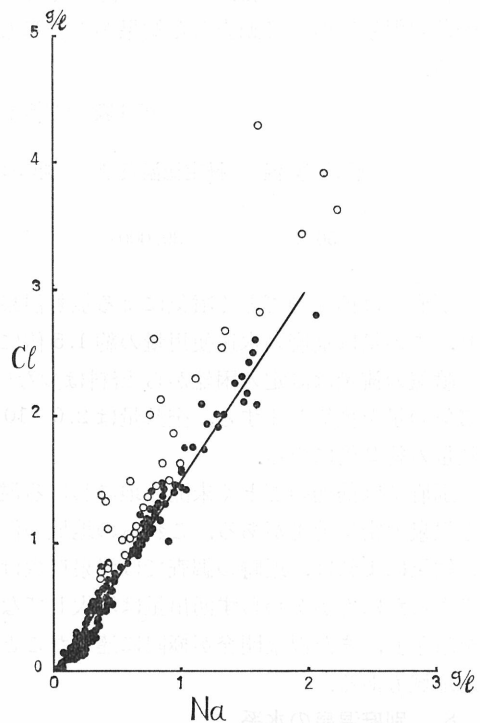
筆者は別府における沸騰泉の化学成分の特性を調べた結果、沸騰泉は地域的に散在している

がその化学成分の組成はいちじるしく相似している<sup>14)</sup>。特にアルカリ金属イオンである  $\text{Li}^+$  がいちじるしく多量に含まれ、(最大 12.3 mg/l) しかも  $\text{Cl}^-$  およびアルカリ金属イオン相互間には密接な相関関係があることを見出した。川上、古賀の研究においても高温熱水中には微量成分である Ge, As, Zn, Ti などが著しく多く含まれていることが見出された<sup>15,16)</sup>。これらの成分からすれば海水成分とは著しき相違がある。またこの高温熱水の特徴は別府以外の地熱地帯の高温熱水にも見出されている。このような特性が海岸部の温泉に現われているか否かを調べた。

第2図は  $\text{Cl}^-$  と  $\text{Li}^+$  の関係であるが大部分の温泉(黒丸)は  $\text{Cl}^-$  の多い温泉ほど  $\text{Li}^+$  も多く両者の間にはほぼ一次関係が成立し両イオンを多量に含む温泉は沸騰泉である。



第2図  $\text{Cl}^-$  と  $\text{Li}^+$  との関係



第3図  $\text{Cl}^-$  と  $\text{Na}^+$  との関係

この関係と離れて  $\text{Cl}^-$  は多いが  $\text{Li}^+$  の少ない温泉(白丸)があり、これらの温泉は別府市街地の南部海岸および亀川の北東部海岸にある温泉で既に多くの研究者によって海水の混入があることを指摘している<sup>17,18)</sup>。これらの地域は別府温泉全体からみればわずかな地域である。なお温泉水圧からみてもまた、成分分布からしても海水の混入が認められる地域であり、第2図の関係は  $\text{Cl}^-$  が多く  $\text{Li}^+$  の少ない海水が直接混入していることを示していると推察される。

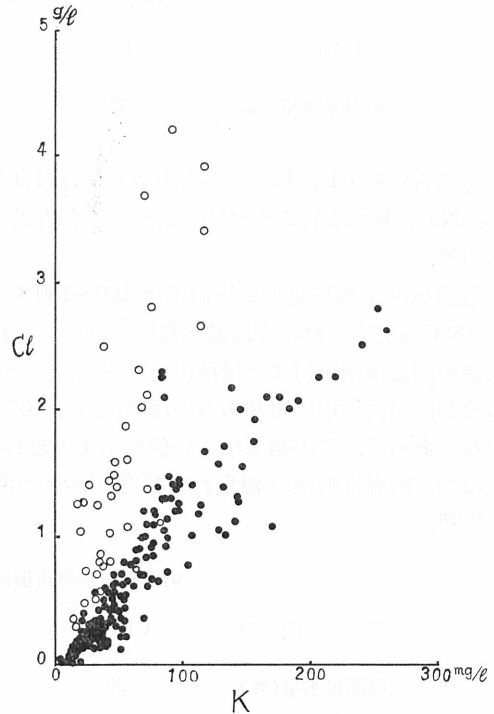
第3図  $\text{Cl}^-$  と  $\text{Na}^+$  との関係では黒丸の温泉は両者間にはほぼ一次関係が成立する。白丸の温泉の  $\text{Na}/\text{Cl}$  は黒丸の値より小さく海水の比に近いが、両者の違いは明確でない。

$\text{Cl}^-$  と  $\text{K}^+$  との関係では黒丸の温泉は両者の関係が幾分乱れているが前図同様にはほぼ一次関係が成立すると見られる。しかるに白丸の温泉では  $\text{Cl}^-$  量に比して  $\text{K}^+$  量は少なく明らかに黒丸の温泉とは別系統の  $\text{Cl}^-$  の混入を示し、海水の混入を示唆している。

以上のいずれの関係直線も原点近くを通ることから、別府温泉の大部分の温泉は山の手の高温熱水が伏流の途中において地下水と混合し湧出していると推察される。従来考えられていた地域的な多くの温泉水系は沸騰泉水のごとき組成を持つ熱水が流下の途中において溶出やイオン交換等によって局地的な特性の相違が生じたと推察される。

9. 別府温泉の原温泉水

別府のみならず火山地域にある各地の高温温泉では温泉水が岩漿からの水であるか否か、あるとしたら何パーセントが岩漿起源であるかを知ることは温泉の生成機構を探求する上に重要かつ興味ある問題である。別府温泉でこの問題に関し野満、瀬野<sup>18)</sup>は別府市街地の温泉湧出量の長年に亘る観測資料から、降雨による湧出量の変化の統計的研究を行ない、両者の相関関係を求め、降雨の影響がまったく無くなったと仮想した時の湧出量を岩漿起源による温泉水であると見做して、この水量と雨水による水量との割合を求め55:45



第4図 Cl<sup>-</sup> と K<sup>+</sup> との関係

であるとの結論をえた。えられた岩漿起源の温泉水量は多量であり、市街地の山の手の高温熱水は地下200m程度で180°C以上の高温であるから、これ以深の地下深部ではさらに高温であると考えられ、したがって温泉水によって運ばれる熱量も大きく、市街地の温泉によって放出される熱量の2倍以上である。このような多量の熱の放出を証拠づける事実は見出されてない。従来研究された化学成分の分布や相互間の関係から地下水の混入は認められたが、原温泉水の組成を明確にしえなかつたので両者の混合割合は求められなかつた。

前述のCl<sup>-</sup>、Li<sup>+</sup>、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>の相互間の関係から原温泉水は沸騰泉のごとき化学組成であり、各温泉が同じ湧出量を持つと仮定すれば、地下水の化学成分および全温泉の平均化学成分とから原温泉水と地下水との混合割合を求めることができる。まず原温泉水の化学成分を別府における沸騰泉水の平均値とし、別府の地下水の実測値および実測した全温泉の平均値は次表のごとくなる。

第5表に示す化学成分から求めた原温泉水量は第6表のごとくなる。もっとも保存的である

第5表 各水系の化学組成 (mg/l)

| 水 系     | Cl <sup>-</sup> | Li <sup>+</sup> | Na <sup>+</sup> | K <sup>+</sup> |
|---------|-----------------|-----------------|-----------------|----------------|
| 原 温 泉 水 | 1,540           | 6.90            | 1,000           | 120            |
| 地 下 水   | 10              | 0.02            | 9               | 1.8            |
| 別府温泉の平均 | 448             | 1.96            | 328             | 46             |

第6表 各成分から求めた原温泉水量

| 算出化学成分   | Cl | Li | Na | K  |
|----------|----|----|----|----|
| 原温泉水量(%) | 29 | 28 | 32 | 37 |

と考えられる  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Li}^+$  量から求めた値はほぼ等しく,  $\text{Na}^+$   $\text{K}^+$  量からはこれらの値より大きい.  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$  は前2イオンに比較して保存的でなく伏流の途中において溶出増加する傾向がある<sup>20)</sup>.

泉温からは沸騰泉の地下温度は  $160\sim 180^\circ\text{C}$  であり, 全温泉の平均温泉は  $56^\circ\text{C}$ , 地下水温を  $18^\circ\text{C}$  (別府における地温不易層の温度) とすれば, 原温泉水量は  $24\sim 27\%$  となる. しかし泉温の測定は湧出口または湧出口から引湯した湯溜りにおける測定であるから, ケーシング中の冷却, 引湯管中の冷却あるいは伏流の途中における冷却等があり, 測定泉温は低く示されているであろう. この結果小さい値を示すと思われる.

なお, 別府市街地の温泉および亀川地区の温泉群について求めた値は次表のごとくとなった<sup>21, 22)</sup>.

第8表 別府市街地温泉の原温泉水量

| 算出成分     | Cl | Li | Na | 泉温 |
|----------|----|----|----|----|
| 原温泉水量(%) | 20 | 22 | 31 | 21 |

第9表 亀川地区温泉の原温泉水量

| 算出成分     | Cl | Li | Na | K  | 泉温 |
|----------|----|----|----|----|----|
| 原温泉水量(%) | 27 | 27 | 26 | 26 | 26 |

原温泉水として沸騰泉水を仮定したが, この沸騰泉水はいかにして生成されたか. 高温な火山ガス中には塩化水素が含まれていることから<sup>23)</sup> Cl 源は岩漿起源であることも考えられる.

原温泉水がすべて岩漿起源と考え, 地下深部の温度を  $800^\circ\text{C}$  として, 第7表で示される水量で運ばれる熱量は別府温泉の全放出熱量 (噴気を含む) の3倍近い熱量となる. また沸騰泉水の  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Li}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$  の相互間には一次関係が成立し, この関係直線は全温泉についての関係直線とほぼ一致する. これらのことから沸騰泉水にはなお地下水の混入があると推察される.

湯原は別府の地熱地帯に噴出する蒸気は地下の熱水から蒸発したとしてその可能性を指摘している<sup>24)</sup>. したがって沸騰泉水は地下水の地熱による蒸発濃縮した熱水であるとの考え方である. 噴気地帯のボーリングから噴気または高温熱水の存在する地層に  $\text{CaCO}_3$ ,  $\text{SiO}_2$  の沈積層<sup>25)</sup> が見られることから, 地下の高温熱水は蒸発濃縮が行なわれているのではないかとの疑いがある. また高温噴気で塩化水素を含むものは見いだされてない.

一方化学成分から沸騰泉水の Li 量は地下水の蒸発濃縮により同量の  $\text{Cl}^-$  量になった時の Li 量に比して2倍以上の量である. 火山岩では Li 含有量は少なく, 地下の層中でたえず蒸発濃縮と流入流出が行なわれていて  $\text{Li}^+$  が多量に溶出できるかは疑問である.  $\text{Li}^+$  は一般に花崗

岩類に多く含まれているが<sup>26)</sup>花崗岩中より湧出する温泉について分析した結果  $\text{Li}/\text{Na}=1.3 \times 10^{-3}$  程度でこの値は別府で地下水、流水の  $\text{Li}/\text{Na}=1.0 \sim 2.0 \times 10^{-3}$ 、また火成岩の  $1.15 \times 10^{-3}$  と大差ない<sup>27)</sup>。また沸騰泉水中には  $\text{Cs}^+$  が多く (最大  $1.2\text{mg/l}$ ) 一般に  $\text{Li}^+$  の多いほど  $\text{Cs}^+$  も多い傾向があるが測定精度の問題もあって明確な相関は求められなかった。

高温熱水の生成機構の解明は別府温泉に供給される全熱量がわかり、したがって温泉の開発保護対策の有力な資料にもなる。今後に残された重要かつ興味ある問題である。

#### 文 献

- 1) 鈴木政達：別府附近の地史と温泉脈，地球物理，**1** (1937)。
- 2) 佐藤光一，矢野行雄：別府市内温泉の現況調査(5)，大分県温泉調査研究会報告，No.14, (1963)。
- 3) Yamashita, K. : Pumping Effects in Multiple-Flowing Wells System, *Mem. College Sci., Univ. Kyoto, Series A*, **31**. (1966)。
- 4) 湯原浩三：別府周辺噴気孔の噴出熱量と熱力学的性質，大分県温泉調査研究会報告，No. 15 (1964)。
- 5) 山下幸三郎：別府温泉の調査の結果について，地球物理，**8** (1950)。
- 6) 山下幸三郎：別府市鉄輪温泉調査報告，大分県温泉調査研究会報告，No. 8 (1957)。
- 7) 4) に同じ
- 8) 2) に同じ
- 9) 瀬野錦蔵：別府市街地の温泉水頭分布，地球物理，**2** (1938)。
- 10) 山下幸三郎，森忠敬：別府市亀川温泉の水系，大分県温泉調査研究会報告，No. 17 (1966)。
- 11) 後藤巳興治：別府亀川温泉における  $\text{Cl}'$ ， $\text{SO}_4''$ ， $\text{HCO}_3'$  分布について，地球物理，**7** (1943)。
- 12) 吉川恭三：化学二成分より見た別府市街地温泉の水系，大分県温泉調査研究会報告，No. 2 (1951)。
- 13) 瀬野錦蔵：別府市鉄輪地域の温泉群について，大分県温泉調査研究会報告，No. 13 (1962)。
- 14) Yamashita K. : The Chemical Character of the Boiling Springs in the Beppu Hydrothermal Field, *Special Contributions, Geophys. Inst., Kyoto Univ.*, **5** (1965)。
- 15) 川上弘泰：別府温泉の化学的研究(33)，別府温泉の微量成分(16)，ゲルマニウムの分布，大分県温泉調査研究会報告，No. 15 (1964)。
- 16) Koga A. : Chemical Studies on the Hot-Spring of Beppu (1), Trace Elements in the Beppu Hot-Spring *Bull. Inst. Balneotherapy, Kyushu Univ.*, **13** (1960)。
- 17) 瀬野錦蔵：温泉水中の塩分源としての海塩，地球物理，**7** (1943)。
- 18) Kawabata H, Shiga S. : Correlation among Tide, Discharge, Temperature and Chemical Contents at Kamegawa, Beppu City, *Special Contribution, Geophys. Inst. Kyoto Univ.*, **5** (1965)。
- 19) Nomitu, T, Seno K : Rainfall and Juvenile Water as the Feeding Origins of the Hot Springs in Beppu, *Mem. College Sci., Kyoto Univ.*, Series A, **23** (1940)。
- 20) 山下幸三郎：別府旧市内温泉の  $\text{Li}^+$  量の分布と水系について，大分県温泉調査研究会報告，No. 16 (1965)。
- 21) 20) に同じ
- 22) 10) に同じ
- 23) Iwasaki I, Ozawa T, Yoshida M, Katsura T, Iwasaki B, Kamada M, Hirayama M, : Volcanic gases in Japan, *Bull. Tokyo Inst. Technology*. **47** (1962)。
- 24) 4) に同じ
- 25) 森山善蔵，川西博：別府市内および湯布院町の温泉孔における岩芯調査報告，大分県温泉調査研究会報告，No. 15 (1964)。
- 26) Goldschmidt : "Geochemistry" (1954)。
- 27) 三宅泰雄：“地球化学”(1954)。