

平成 3 年 5 月

総 説

温泉の戦時における利用の試み(II)

小山工業高等専門学校

芦 沢 峻

§ 5 ラジウム

温泉中のラジウム含有量については中井敏夫⁴³⁾の506ヶ所の源泉を調べた94頁に及ぶ英文の報告がある. 小穴進也, 黒田和夫⁴⁴⁾の増富鉱泉の報告にはラドン1200マッヘをのべている. 化学実験学(昭和16年)に中井⁴⁵⁾はそれまでのラジウムについてのデータをほとんど全て記載している. 黒田⁴⁶⁾は増富の強放射能泉について54頁の報告にまとめているがラドンは湧出量の小さい鉱泉に多く7130マッヘ(2.6×10^{-6} Ci/l)を最高とした. 岩崎岩次⁴⁷⁾はドイツのヒンデンブルグ泉のラドン13500マッヘと池田鉱泉第8号泉の4330マッヘをあげており, 最近の温泉中のラジウム含有量については⁴⁸⁾「温泉中のラジウム(^{226}Ra)の分布と強放射能泉の生成機構」という総説に一覧表を示した. 岩崎と中井のデータから主なものを表6に示した. 中井⁴³⁾は, 多量の鉱泉水中のラジウムを少量の試薬で抽出する目的の実験を行っている. 戦時中岩崎のグループは有馬温泉, 池田鉱泉などからラジウムを採取し, 夜光塗料に使用する目的で研究を精力的に行った. 夜光塗料にはモナズ石の濃硫酸処理残渣から回収出来るメソトリウム即ちRa 228を用いていた. 有馬新温泉で昭和18年8月11日に $3.82 \times 10^{-10}\text{g/l}$ Raを測定したが, 平常でも $3 \times 10^{-10}\text{g/l}$ を示

表6 本邦温泉中のラジウム含有量

温 泉 名	泉 温 °C	Ra ($\times 10^{-12}\text{g/l}$)	備 考
有 馬 新 温 泉	60.0	382	1943, 岩崎
有 馬 カ タ 越 鉱 泉	21.0	111	1939, 中井
玉 造 温 泉 松 之 湯	—	97.14	"
有 馬 本 温 泉	46.0	93.8	1943, 岩崎
増 富 和 田 松 葉 鉱 泉	13.0	82.66	1936, 中井
池 田 鉱 泉 第 3 号 泉	20	72.7	1943, 岩崎
増 富 津 金 樓 第 1 号 泉	28.0	64.53	"
池 田 鉱 泉 第 8 号 泉	17.6	58.6	"
湯 抱 温 泉 第 2 号 泉	32.0	48.5	"
三 朝 温 泉 岡 山 医 大 湯	51.5	17.67	1939, 中井
三 朝 温 泉 天 然 岩 窟 湯	79.5	10.06	"

した。昭和14年からの測定によれば 12.2×10^{-12} から 72.7×10^{-12} g Raを含むという。

池田鉱泉では鉱泉中にラジウムが少ないのに沈殿物には 9.5×10^{-10} g/g Raも含まれるのを見出した。水酸化鉄質沈殿物は容易に塩酸に溶解するのでラジウムの採取に適していると判断されたので抽出原料にすることとした。

沈殿物中のラジウム含有量は表7に示した。表8に沈殿物の化学組成を示した。これらの値は岩崎、中井による。表8に産出量は5g位と極めて少量であったが齊藤信房と著者の発見した三朝温泉の二酸化マンガンのラジウムと化学分析値を示した⁴⁹⁾。中井⁴⁵⁾は前出の化学実験学(108頁)にGastein温泉に 5.66×10^{-8} g/g, コネチカット州のアーカンソー温泉の MnO_2 47.2%の沈殿物に 3.8×10^{-9} g/g Raをあげている。

三朝の二酸化マンガンは通称OTR泉と云々われ、昭和23年にトロンの最高値を測定した冷泉である。これは天然岩窟の湯と称する温泉湧出口の2メートル程離れた位置にある。風乾試料0.1gはGM-カウンターでモナズ石(石川山)の0.1gと同じ放射能を示した。約6ヶ月放置後のものからもBi 212 (Th C)の放射能を示し、トリウム系の多いことを示していた。

中井⁴³⁾は有馬温泉水を濃縮し、500cc中 35×10^{-12} gから 76.2×10^{-12} gの3種類のラジウム標準溶液を作り、金属の水酸化物、硫酸塩、炭酸塩によるラジウムの共沈についてしらべた。そしてキャリアの多いほど共沈は良く、最良のものはBa, Ca, Srの硫酸塩と炭酸塩である。地球化学的には鉄とマンガンの共沈は重要であると述べている。キャリアの量と共沈率の関係を図2に示した。

岩崎⁴⁸⁾はFe 10mgで全容100ccの時吸着とpHの関係結果を図3に示す。池田鉱泉中のラジウムを鉄と共沈後塩酸に溶解し、これを標準溶液に用い硫酸バリウムによる共沈の研究を行った。この方法から 1×10^{-8} g/gの濃度のラジウムが得られている。有馬新温泉から水酸化鉄でラジウムを共沈させる時の共沈率の悪い

表7 温泉沈殿物中のラジウム含有量

温 鉱 泉	Ra ($\times 10^{-10}$ g/g)
池田鉱泉第1号泉	8.84
〃 〃	9.50
〃 第2号泉	6.87
〃 第4号泉	3.92
増富津金樓下の湯	1.75
有馬新温泉	0.178
湯抱温泉	2.02

表8 沈殿物の組成とラジウム量

組 成	池田第1号泉 昭和19年6月	有馬新温泉 (パイプの中)	三朝OTR泉 昭和25年
			塩酸不溶物 25.3
SiO ₂	4.11	7.34	{ SiO ₂ 13.1 Fe ₂ O ₃ 1.8 Al ₂ O ₃ 10.4
H ₂ O			24.3
Fe ₂ O ₃	} 60.18	63.57	7.3
Al ₂ O ₃			0.85
MnO ₂			41.8
MnO	0.004	0.006	
MgO	0.98	1.76	
CaO	4.68	3.22	
Ra $\times 10^{-10}$ g/g	8.84	0.178	118
最高 Ra	9.50	0.46	

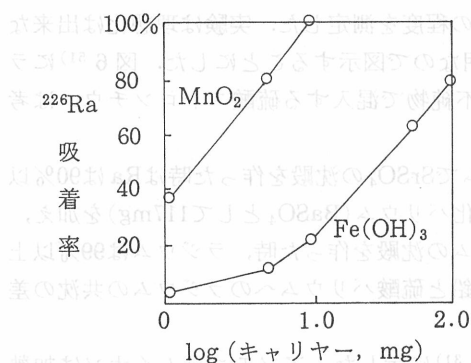


図2 温泉中のラジウムの吸着率とキャリアーの量の関係

中井敏夫(1940)原図Fig. 26に加筆
T. Nakai, Bull. Chem. Soc. Japan 15(1940)
pp. 333-426

理由としては、共存するカルシウムが大きく妨害していることを見出した。カルシウムの影響について図4に示す。有馬温泉はカルシウムを1 l中約3 g含有している。

著者⁵⁰⁾は天然ラジウム同位体の223, 224, 226, 228をGM-カウンターで分析する方法の基礎実験にはRa 224を使用した。高純度の新しい酸化トリウムを塩酸に溶解し、トリブチルリン酸でトリウムを除去して用いた。最終的な測定は一定量のBaSO₄に共沈させ、2~3日後にβ放射能を測定した。水酸化鉄への共沈とpHの関係は図5⁵⁰⁾に示した。硫酸バリウムにはPb, Bi, Po, Ac, Paもよく共沈するのでβ放射能で硫酸バリウムに共沈したRaを測定することは難しい。しかしランタンを10mg添加しpH10にして濾過するとRa以外は全て水酸化ランタンに吸着する。一回の水酸化ランタン処理で実用上十分で

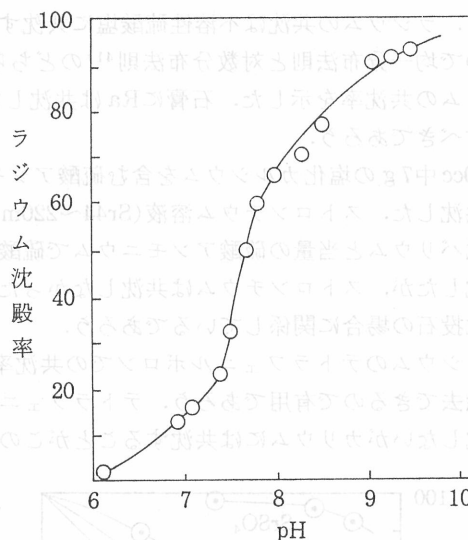


図3 水酸化鉄によるラジウムの吸着
条件: ²²⁶Ra 1.17×10⁻¹⁰g, Fe^{III} 10mg, 全容 100cc
岩崎, 村上(1947)

図3は岩崎岩次, 温泉工学7 (1969)p. 22, Table 36から芦沢が作成

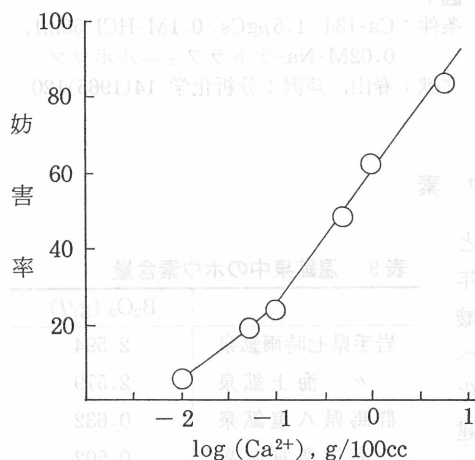


図4 ラジウムの水酸化鉄吸着に対するカルシウムの妨害

条件: ²²⁶Ra 1.17×10⁻¹⁰g, Fe^{III} 10mg, pH 9.0
岩崎, 村上(1947)

図4は図3と同じ文献のTable 42から芦沢が作成

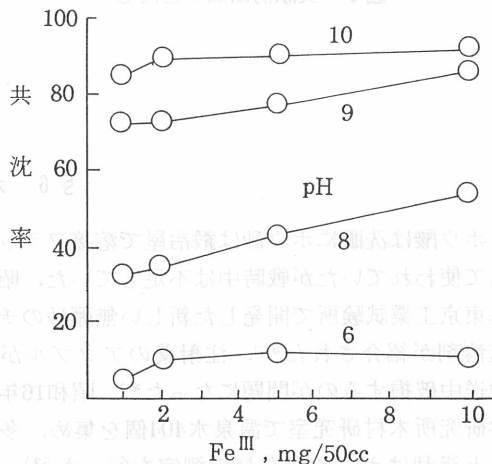


図5 水酸化鉄によるRa224の共沈

条件: ²²⁴Ra 1,000~10,000cpm
文献: 芦沢 峻; 小山高専紀要(1970),

No.2, p.55

ある。ラジウムの共沈は不溶性硫酸塩に共沈するがその程度を測定した。実験は理想化は出来ないで均一分布法則と対数分布法則⁴¹⁾のどちらか不明なので図示することにした。図6⁵¹⁾にラジウムの共沈率を示した。石膏にRaは共沈しない。不純物で混入する硫酸ストロンチウムは考慮すべきであろう。

50cc中7gの塩化カルシウムを含む硫酸アンモニウムでSrSO₄の沈殿を作った時はRaは90%以上共沈した。ストロンチウム溶液(Sr44~220mg)に塩化バリウム(BaSO₄として117mg)を加え、塩化バリウムと当量の硫酸アンモニウムで硫酸バリウムの沈殿を作った時、ラジウムは99%以上共沈したが、ストロンチウムは共沈しなかった。硫酸鉛と硫酸バリウムへのラジウムの共沈の差は北投石の場合に関係しているであろう。

セシウムのテトラフェニルボロンでの共沈率を図7³¹⁾に示した。アンモニウムイオンは加熱で除去できるので有用であろう。テトラフェニルボロンでない場合もナトリウムにはセシウムは共沈しないがカリウムには共沈することがこの図から推定できるかもしれない。

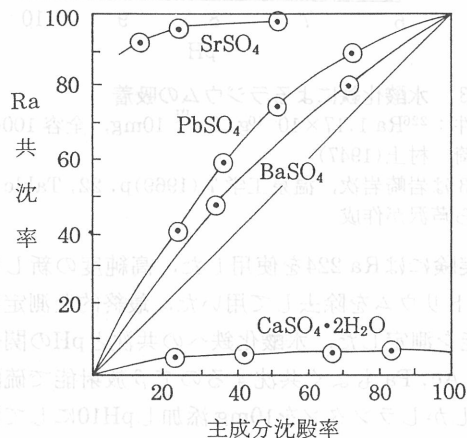


図6 文献前出図5と同じ

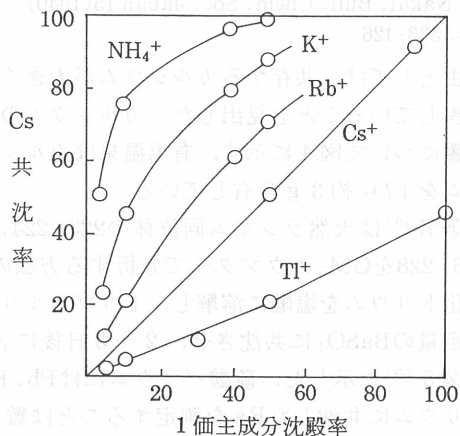


図7

条件：Cs-134, 1.5 μ gCs, 0.1M-HCl 50ml,
0.02M-Na-テトラフェニルボロン
文献：春山, 芦沢; 分析化学 14(1965)120

§ 6 ホウ素

ホウ酸は洗眼にホウ砂は鍛冶屋で溶接フラックスとして使われていたが戦時中は不足していた。昭和18年に東京工業試験所で開発した新しい無硼砂のチタン酸塩溶剤が紹介された⁵²⁾。注射薬のアンプルが戦地へ輸送中破損するのが問題になった*1。昭和16年に理化学研究所木村研究室で温泉水404個を集め、多賀谷健夫と浅利はホウ酸含有量の測定を行った⁵³⁾。昭和16年8月に黒田、多賀谷は東北地方の温泉の現地調査を行いその結果を報告した⁵⁴⁾。その中からホウ酸の多い温泉を表9に示す。

表9 温鉱泉中のホウ素含量

	B ₂ O ₃ (g/l)
岩手県七時雨鉱泉	2.594
〃 海上鉱泉	2.579
群馬県八塩鉱泉	0.632
北海道豊富温泉	0.502
群馬県原市町温泉	0.486
〃 磯部温泉	0.367

HBO₂ × 0.7946 → B₂O₃

七時雨鉱泉は七時雨山(1060m)の頂上に近い谷川の崖から湧出している。海上(カインヨ)鉱泉

は七時雨山の北の山麓の安比川の近くに湧出している。湧出量は少なかったが今はポンプで給湯している。最近ボーリングで見出された安比温泉保戸沢の湯はホウ酸を多量に含む53℃の温泉である。今までホウ酸含有量最高は群馬県嶺鉱泉の5.5g HBO₂であったが幻の鉱泉になっている。戦時中も探しました最近も探したが不明である。嶺鉱泉⁵⁵⁾と安比温泉⁵⁶⁾の分析表を表10に示す。

表10 ホウ酸含有量最高泉の比較

成分	昭和62年6月 安比保戸沢の湯	明治20年頃 嶺鉱泉前畑中
蒸発残留物(g/l)	27.73	27.86
Na	8.658	9.4812
K	0.244	0.2126
Cl	11.74	12.2320
HBO ₂	5.467	5.5435
SO ₄	0.1825	0.0027
文献	岩手県衛生研	東京衛生試報12号

硫酸イオン含有量を除いては極めてよく似ている。石油カン水などの硫酸イオンについては硫黄バクテリアなどを考えることもできる。硫酸イオンの鉄による除去も可能性がある。水酸化鉄による硫酸イオンの吸着に対する硫酸イオンの濃度とpHの関係について求めた結果⁵⁰⁾を図8に示す。硫酸イオンは塩化バリウムで検出されない程度まで除去される。

著者は昭和18年8月から七時雨鉱泉を含めて東北地方の温泉の調査をし、昭和19年7月には七時雨鉱泉を蒸発してホウ酸カリウム(KB₅O₈・4H₂O)を発見した*2。つづいて海上鉱泉からはホウ砂の大きい結晶を採取した。昭和19年8月1日には「白色凍豆腐、海綿状」のホウ酸マグネシウムを検出したが組成は決定しなかった。昭和20年から有馬温泉と同じ平鍋4枚を用いて七時雨鉱泉の現地で蒸発をはじめた。当初は田中実、石崎石興と共に行った。戦後は著者一人で蒸発を行った。原生林の中であるが燃料も不自由でホウ酸カリウムの採取量は4kgであった。盛岡市の鍛冶屋で溶接に使用されたほど高純度であった。ホウ酸カリウムは含密開宗⁵⁷⁾に次のように書かれている。「鎔金三葉とは硼酸ソーダ、硼酸カリ、炭酸ソーダの三物質である」*3。

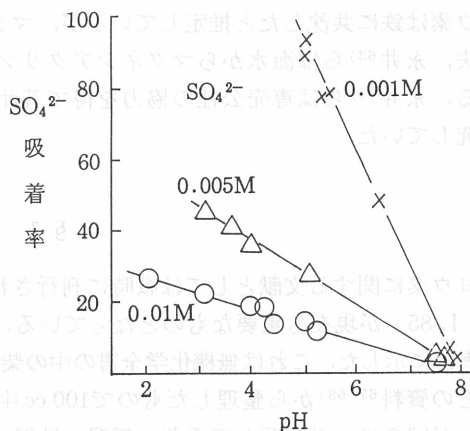


図8 SO₄²⁻の鉄による吸着；pHとSO₄²⁻濃度の関係
条件：Fe(NO₃)₃ 0.01M, 100cc
文献：芦沢 峻；小山高専紀要(1981), No.13, p.105

*1 製薬工場でサルファ剤などの500 ccのアンプルが蒸気滅菌中に破損するのを著者も体験している。

*2 当時はK₂0.5B₂O₃・8H₂Oと書いた。試薬としては販売されていないが、現在は工業用にU.S. Borax社が発売している。

*3 群馬県八塩鉱泉は昭和6年では浄法寺鉱泉となっている。海上鉱泉は明治34年では青森県浄法寺鉱泉となっている。浄法寺町の青森と岩手の県境が決定したのは数年前のことである。浄法寺は中尊寺と同じ天台宗である。

七時雨鉱泉水を1/30に濃縮すると食塩は晶出しなくてホウ酸カリウムのみが結晶として出る。海上鉱泉水を1/40に濃縮すると食塩は晶出しなくてホウ砂のみがとれる⁵⁸⁾。

北海道豊富温泉からホウ砂を採取することは西村雅吉他⁵⁹⁾により行われた。ホウ素の含有量は海上鉱泉より低いので操作は少し異なり、天然ガスで1/65に濃縮して40%の食塩を析出、除去後、冷却しホウ砂の結晶をとる。その母液からは炭酸ナトリウムの結晶を採取する。最後はヨウ素も採取している*4。

最近になって七時雨鉱泉からホウ酸(Sassolite, $B(OH)_3$)、小藤石(Kotoite, $Mg_2B_2O_5$)およびX線回折のみからの推定でMacallisterite, $Mg_2B_{12}O_{20} \cdot 15H_2O$ とHungchaoite, $MgB_4O_7 \cdot 9H_2O$)、長野市松代温泉からホウ酸とホウ酸カリウム(Santite, $KB_5O_8 \cdot 4H_2O$)を得た⁶⁰⁾。

「試薬研究」は昭和20年2月号に「硼酸」特輯号をくみ、永井彰一郎⁶¹⁾は朝鮮黄海道遂安郡笏洞鉱山の小藤石、満洲東辺道各地に産するサイベリー石からのホウ酸の製造試験が行われていると述べている。桜井欽一²⁶⁾は「朝鮮にはルードウィヒ石、ザイベリ石、弗硼石、小藤石、遂安石、上八洞石等の産出が知られ殊に小藤石、遂安石は渡辺武男氏が黄海道笏洞(ホルゴル)金鉱にて、また上八洞石は岩瀬栄一氏が咸鏡北道上八洞にて発見せられた新鉱物である」とのべている。

山県登⁶²⁾らは八塩鉱泉1 lを140 ccに濃縮した時生成した黄色コロイド質沈殿にホウ素の多いことを見出し、組成はFe 1.6%, Na 16.5%, Ca 3.2%, Mg 8.9%, B 0.2%, SiO_2 0.2%と与えた。ホウ素は鉄に共沈したと推定しているが、マグネシウムではないだろうかと推測している。荒井康夫、永井⁶³⁾らは海水からマグネシアクリンカーを製造する時にX線回折で小藤石を検出している。永井⁶⁴⁾らは専売公社の協力を得て苦汁からホウ酸をアミルアルコールで抽出する方法を研究していた。

§ 7 ヨウ素

ヨウ素に関する文献としては戦時に刊行された柴田雄次監修⁶⁵⁾の「無機化学全書, III, F, Cl, Br, I, 85」が現在も重要なものとなっている。ヨウ素を含有する千葉県のカン水などの化学組成を表11に示した。これは無機化学全書の中の柴田執筆の「地球化学及び存在」と日本鉱泉分析表⁶⁶⁾などの資料^{67~68)}から整理したもので100 cc中のmgで表示し有効数字は調整した。福田理⁶⁷⁾は「わが国のヨード資源」で千葉、新潟、沖縄、北海道のカン水について述べている。沖縄では昭和34年に兼島清がヨウ素の調査を始め、琉球政府と日本政府が調査をはじめたと書いている。現

表11 千葉県カン水の化学組成(mg/100cc*)

成分	大多喜	茂原	茂原	茂原	白子
Na	494	804	101	103	114
K	14	18	50	3	36
Ca	13.9	12.2	19.6	21.2	26
Mg	13.3	28.2	46.8	37.9	49
Cl	780	1349	1834	1724	1950
Br	0.34	1.1	6.0	8.0	14
I	4.0	6.5	10	10.5	10

*有効数字は調整した。1 l中ではない。

*4 豊富温泉化学工業株式会社が1ヶ月にホウ砂500kgを生産した。戦後の北海道の鍛冶屋での必要量は全てまかなった。(西村氏私信)

在1 l中ヨウ素100 mg位含有するカン水も見出されている*5.

戦争中のヨウ素の主な用途は消毒用のヨウドチンキと外傷血止め用のヨードホルムであった*6.

資源不足の日本ではあるが、ヨウ素に関して世界の大半を産出している。ヨウ素の戦時中の製法は石川鉄彌⁶⁵⁾が詳細に述べており、また「温泉」に戦時中の「沃度工業秘話」⁶⁹⁾を書いている。方法にはデン粉吸着法、硫酸銅法、活性炭法があった。活性炭法は1963年からアニオン交換樹脂法に変わり、現在年間数百トンのヨウ素を生産している*7。現在は塩素ガスを用いるブローアウト法が主で、酸化生成したヨウ素を空気中で追出し、亜硫酸に吸収させて濃厚溶液を作り、再び酸化してヨウ素を生成させる方式である。

昭和60年の世界のヨウ素生産量⁷⁰⁾は13,100トンで、日本が7,251, チリー2,750トン, ソ連250トン, アメリカ1,300トン, その他250トンである。千葉県は6,300トンを産出し、世界最大は伊勢化学工業の1,976トンである*7。

ヨウ素の用途については「ヨウ素とその化合物」⁷¹⁾に商品名898語と化合物341がおさめられている。ヨウ素資源については福田⁷²⁾の「ヨウ素資源・工業問題」がある。アメリカの地質調査所は「Iodine」⁷³⁾を発行している。オクラホマ州の北西部にあるWoodwardのカン水から1977年から大量生産がはじまっている*8。

文 献

- 43) T. Nakai, Bull. Chem. Soc. Japan, 15, 333 (1940)
- 44) S. Oana, K. Kuroda, Bull. Chem. Soc. Japan, 15, 485 (1940)
- 45) 中井敏夫, 化学実験学, 12巻地球化学(放射性元素)(昭和16年)河出書房
- 46) K. Kuroda, Bull. Chem. Soc. Japan, 19, 33 (1944)
- 47) 岩崎岩次, 火山の化学, 105頁(1970)講談社
- 48) 岩崎岩次, 温泉工学, 6, 18, 112, 165 (1968), 7, 16 (1969)
- 49) 斉藤信房, 日本化学会大会(京都)講演(1950)
芦沢 峻, 岡山大温研報, No.4, 8 (1951), No.6, 4 (1952)
- 50) 芦沢 峻, 小山高専紀要, No.13, 105 (1981)
- 51) 芦沢 峻, 小山高専紀要, No.2, 53 (1970)
- 52) 内田章五, 科学画報, 昭和18年8月号, 16頁
- 53) 多賀谷健夫, 理研彙報, 21, 165 (1942)
- 54) 黒田和夫, 多賀谷健夫, 理研彙報, 21, 181 (1942)
- 55) 日本鉱泉分析表 衛生試験所彙報 第12号(1900)
- 56) 岩手県衛生研究所 昭和62年7月13日
- 57) 宇田川裕庵, 舎密開宗, 田中実編(1975)講談社
- 58) 田中 実, 石崎石興, 芦沢 峻, 日本化学会講演, 昭和21年4月13日
- 59) 太秦康光, 西村雅吉, 豊福多美男, 石油技術, 17, 374 (1952)

*5 文献65の黒田和夫(未発表)について;昭和17年著者は黒田と数個の茂原のカン水のヨウ素などの分析を行った。

*6 著者はアセチレン自動車の感温塗料に黄色のヨウ化銀・水銀が使用されていたのを見ている。

*7 伊勢化学は千葉, 新潟, 宮崎, オクラホマ州で操業している。

*8 チリーでは一部ヨウ素酸塩で産出するので, 計算量の亜硫酸を加えて単体のヨウ素を析出させている。1954年に著者はアーカンソーで黒田とU238の自発核分裂で生成するヨウ素を研究していた。数種のヨウ素同位体で, I⁻, IO⁻, IO₃⁻, IO₄⁻の相違があるので酸化還元を繰返した。アーカンソー州のMagnoliaはイスラエルと臭素の生産量を競うようになってきている(日宝化学KKからの私信)

- 60) 芦沢 峻, 梅津芳生, 温泉科学会第41回大会(1988)
- 61) 永井彰一郎, 試薬研究, No.2, 1 (1945)非凡聞
- 62) 山県 登, 武藤 覚, 山県頼子, 北爪良男, 温泉科学, 6, 67 (1955)
- 63) 荒井康夫, 永井彰一郎, 日本塩学会誌, 15, 123 (1961)
- 64) 永井彰一郎, 川澄義彰, 塩技術研究, 163 (1948)
- 65) 柴田雄次監修, 無機化学全書Ⅲ, F, Cl, Br, I, 85 (1945) 丸善
- 66) 日本鉱泉分析表 衛生試験書彙報54号 (1940)
- 67) 福田 理, 地質ニュース, 199号 (1971)地質調査書
- 68) 中島邦雄, 化学と工業, 34, 593 (1981)
- 69) 石川鉄弥, 温泉, 昭和25年8月号24頁, 日本温泉協会
- 70) 千葉商工労働部(昭和61年10月)
- 71) 日本輸出ヨウド工業組合(昭和49年5月)
- 72) 福田 理, 化学経済, 1987年6月号, 85頁
- 73) Iodine, Bulletin 675, U. S. Bureau of Mines (1985)

論文

43) T. Nakai, Bull. Chem. Soc. Japan, 15, 333 (1940)

44) S. Onna, K. Karoda, Bull. Chem. Soc. Japan, 15, 485 (1940)

45) 中井敏夫, 化学実験室, 12巻地味化学(放射性元素)(昭和16年)河出書房

46) K. Karoda, Bull. Chem. Soc. Japan, 19, 33 (1944)

47) 岩崎岩次, 火山の化学, 102頁(1970)講社

48) 岩崎岩次, 温泉工学, 9, 18, 112, 165 (1968), 7, 16 (1969)

49) 齊藤信賢, 日本化学会(会大)雑誌(1980)

50) 岩崎岩次, 岡山大岡山誌, No.4, 8 (1951), No.6, 1 (1952)

51) 岩崎岩次, 岡山高専紀要, No.13, 105 (1981)

52) 岩崎岩次, 岡山高専紀要, No.3, 58 (1970)

53) 内田章五, 科学画報, 昭和18年8月号, 16頁

54) 多賀谷善夫, 地質雑誌, 21, 165 (1942)

55) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

56) 日本鉱泉分析表 衛生試験書彙報第54号(1940)

57) 岩手県衛生研究所, 昭和62年7月13日

58) 宇田川忠雄, 化学経済(1975)講社

59) 田中 実, 石塚正典, 岩崎岩次, 日本化学会雑誌, 昭和21年4月18日

60) 太田孝典, 岩崎岩次, 地質雑誌, 17, 374 (1928)

61) 文部省(未)岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

62) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

63) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

64) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

65) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

66) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

67) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

68) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

69) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

70) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

71) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

72) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

73) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

74) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

75) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

76) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

77) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

78) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

79) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

80) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

81) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

82) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

83) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

84) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

85) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

86) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

87) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

88) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

89) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

90) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

91) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

92) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

93) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

94) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

95) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

96) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

97) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

98) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

99) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)

100) 岩田邦夫, 地質雑誌, 21, 181 (1942)