

大阪府阪南町の瓦粘土の産状と性質

小村 良二*

On the Mineralogical Character and Geologic Occurrence of the Roofing-Tile Clay in Hannan-cho, Osaka Prefecture

Ryoji KOMURA

Abstract: The roofing-tile clay deposit in Hannan-cho occurs in Pliocene-Pleistocene Osaka group whose stratigraphic sequence is shown as follows:

Holocene	Alluvium
Pleistocene	Terrace deposit
	Osaka group
Pliocene	
	Izumi group
Late Mesozoic	Ryoke granitic rocks
	Sennan acid pyroclastic rocks

The Osaka group is composed mainly of alternation of gravel, sand and clay with basal conglomerate in some places. The clay deposit occurs in the middle horizon and consists of 1.5% coarse sand over 200 μ , 6.2% fine sand from 200 μ to 20 μ , 32.8% silt from 20 μ to 2 μ and 59.5% clay under 2 μ .

The roofing-tile clay has been examined by x-ray diffraction, D.T.A., electron microscope and optical microscope. This clay is composed of kaolinite and other clay minerals, and some quartz, siderite, calcite and feldspars. The clay fraction consists of 43% kaolinite, 17% illite, 13% montmorillonite and 27% quartz as determined by x-ray method.

Under the electron microscope, immature hexagonal plate is most abundant, which is supposed to be disordered kaolinite. Siderite shows gel-like form. The concentrated roofing-tile clay has the chemical composition as follows: SiO₂: 61.66%, Al₂O₃: 16.65%, Fe₂O₃: 3.44%, K₂O: 2.26%, Ig.loss: 10.75%. These values are similar to those of other roofing-tile clays in Japan. Refractoriness of this clay is SK 16.

Heating experiment reveals that the clay has shown hematite phase at 1,000°C, mullite phase at 1,120°C and α -cristoballite phase at 1,200°C. Crystallinity of α -cristoballite increases with increasing temperature above 1,200°C, while that of quartz decreases. Thus α -cristoballite may have been converted from quartz originally contained in the clay bed or excess silica formed by decomposition of the clay minerals to mullite.

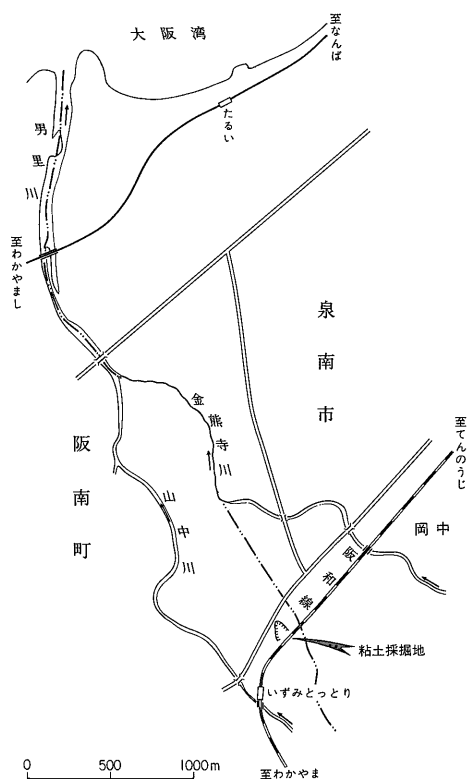
1. ま え が き

大阪府下に広く分布する新生代後期の大阪層群中には、粘土層がいたるところに挟在する。その多くは利用されずに捨て去られているが、一部の地域では種々の粘土を陶器、粘土瓦などの原料として使用している。これらの粘土は現在までなんら詳細な研究がなされていない

ため、必ずしも満足すべき状態で利用されているとはいえない。したがって、これら有用粘土の性質を明らかにすることは、大阪層群中のそのほかの未利用粘土の利用価値を判断するうえでも意義のあることと思われる。

今回、筆者は大阪府下泉南地方で採掘稼行されている瓦粘土(製品名称を「泉州瓦」といい、いぶし瓦の一種)の産状および性質の検討を行ったので、その結果を報告する。この研究をすすめるにあたり、熱分析および電子

* 大阪出張所



第1図 位置図

顕微鏡観察について種々の便宜と懇切な助言を賜った大阪工業技術試験所第四部の小瀬三郎氏、第一部の足立正和氏に心から謝意を表す。また、粘土の耐火度測定は福井県窯業試験場長西元三郎氏にお願いした。粘土試料の採取にあたっては、岡田瓦興業有限会社の岡田三喜男氏の御協力を得た。記して感謝申しあげる。

2. 位置および交通 (第1図)

瓦粘土の採掘地は大阪府泉南郡阪南町和泉鳥取で、泉南市と隣接する地帯である。最寄駅の国鉄阪和線泉鳥取駅までは、南西へ徒歩400mの道程である。

3. 地形

瓦粘土採掘地は大阪平野の最南端に位置し、和泉山脈の山麓丘陵地帯である。丘陵地はほぼ東西に連なり、北方に向かって緩やかに傾斜する。採掘場は丘陵地西端にあり、標高約50mの地点である。丘陵地の東縁を蛇行しながら北流する金熊寺川は、西縁を流れる山中川と下流で合流して大阪湾へ注ぐ。両河川の流域には段丘地形が認められる。

4. 地質

瓦粘土採掘地付近の地質は、傾家花崗岩類および泉南酸性火砕岩類とこれを不整合におおう白亜紀の和泉層群とを基盤として堆積した新生代後期の大阪層群からなる。

傾家花崗岩類は粘土採掘地点の北東の泉南市岡中に愛宕山(標高90m)を形成し、ここでは花崗斑岩よりなっている。

泉南酸性火砕岩類は本地域では主として溶岩類や流紋岩質凝灰岩などで、上述の岡中より東部の一帯に広く分布する。

和泉層群は粘土採掘地点の南部一帯に広く分布し、層理の発達した頁岩が主体であるが、随所で細粒の砂岩・シルト岩・頁岩の互層を伴い、走向、 $N70^{\circ}W$ -東西で、 $30-40^{\circ}$ 南へ傾斜する。頁岩はかなり風化がすすんでいる。

大阪層群はこれらの岩石類を基盤として不整合に堆積しているが、和泉層群をもっとも広く被覆する。大阪層群が和泉層群を不整合に被覆する地帯では、局部的に基底礫層が発達している。基底礫層は東方に厚くなり、最大層厚約10m、礫種は和泉層群起源の砂岩が非常に多く、珪岩もわずかに含まれている。砂岩礫には場所により最大長径30cm以上の角礫が認められる。この上位は砂礫・粘土の互層で、中部に瓦粘土層をはさみ、その直下に白色細粒の薄い火山灰層が挟在している。この火山灰層は原田ほか(1963)によって、 T_1 火山灰層として報告されている。

5. 瓦粘土の産状と性質

5.1 産状

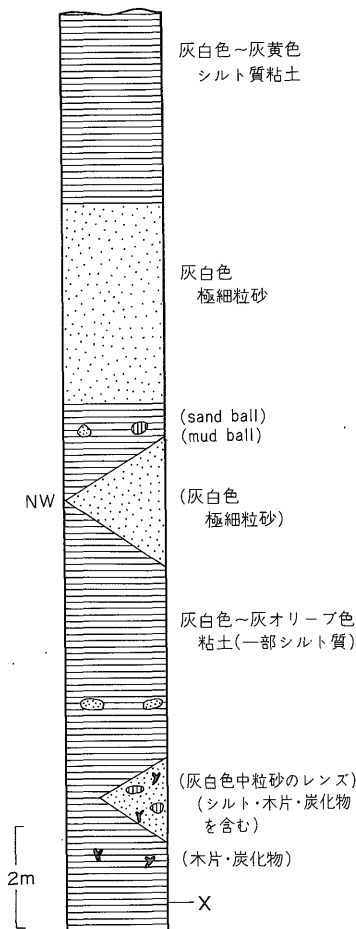
瓦粘土採掘地点の地質柱状図を第2図に示した。上述したようにこの採掘地点の南では、大阪層群が和泉層群を不整合に被覆している。粘土採掘場の崖では和泉層群はみられないが、第2図の地質柱状図下部にみられる粘土層の基底から基盤の和泉層群までの深さは、およそ10mと推定される。地質柱状図の下部の灰色粘土層は粘性が強く、層厚約10m以上、下位には木片や炭化物が含まれており、現在はこの部位を採掘稼行している。

粘土層の基底から2.5m上位には、シルトを含むレンズ状の砂がはさまれている。この砂にも木片や炭質物が認められる。その6m上位には北西方向に尖滅する極細粒砂層が挟在する。また、粘土層の中位と最上位には、和泉砂岩・頁岩の風化した sand ball, mud ball が含まれている。

第2表 瓦粘土の化学分析表

SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	FeO	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O
61.66	0.64	16.65	3.44	2.60	0.03	0.71	0.26	0.56
K ₂ O	P ₂ O ₅	+H ₂ O	-H ₂ O	Total	Ig.loss	耐火度 SK	pH	
2.26	<0.01	6.45	3.38	98.64	10.75	16	5.55	

分 析：川野昌樹技官
耐火度測定：福井県窯業試験場
pH：5%泥水中で測定



第2図 瓦粘土採掘地の地質柱状図
×印は粘土試料採取部位

第1表 瓦粘土の粒度分析表

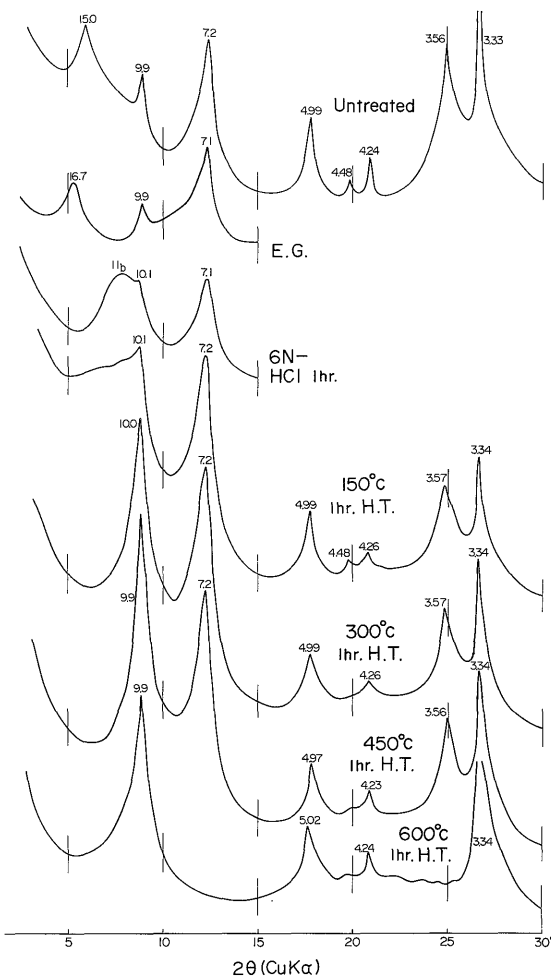
分析法	篩分 70メッシュ		沈降法	
	粗 砂	細 砂	シルト	粘 土
粒 径 (μ)	200	20	2	
粒度区分	粗 砂	細 砂	シルト	粘 土
比 率 (%)	1.47	6.17	32.85	59.51

瓦粘土層の直上には層厚約4mの灰白色極細粒砂層のり、その上部には灰白色-灰黄色シルト質粘土が堆積している。

5.2 性 質

5.2.1 粒度分析

粘土瓦用原料として原土の粒度範囲は重要な要素の1つである。泉州瓦粘土の粒度分析には沈降法と篩分法を併用して行った。沈降法では分散剤を滴下して、泥水を



第3図 瓦粘土のX線回折図 (粒径<2μ)

上から未処理, エチレングリコール処理, 6規定塩酸処理, 150°C, 300°C, 450°C, 600°C加熱処理
回折条件 Target: Cu, Filter: Ni, Voltage: 30 kV, Current: 16 mA, Count Range: 800 c/s, Time Constant: 2 sec., Scanning Speed: 1°/min., Chart Speed: 1 cm/min.

常に pH 9-10 に保持した。結果を第1表に示す。

粘土中のシルト分と粘土分を合算すると 92.3% となり、かなり微粒の粘土である。一般に、瓦用原料として単味で使用できる粘土としては、分級度の悪い粘土は好ましくない。細礫など塊状物が多量に含有されていると、ロールクラッシャーによる粗砕後も残ることがあり、製品過程で亀裂などを生じやすい。一方、微粒部分が多すぎると吸水率や可塑性に難点があり、成形に困難をきたすことがある。

5.2.2 化学組成および耐火度

原土の化学分析および耐火度試験、pH 測定結果は第2表に示す。分析結果を耐火度の高い愛知県瀬戸・猿投木節粘土のそれと比較すると、瀬戸木節粘土の Al_2O_3 平均 23.79%、 Fe_2O_3 平均 1.23%、猿投木節粘土の Al_2O_3 平均 34.59%、 Fe_2O_3 平均 2.27% (粘土ハンドブック、1967, p. 210-211) に対し、この瓦粘土は Al_2O_3 が少なく、 Fe_2O_3 が多く、また、 FeO 、 $(Na, K)_2O$ も多い傾向があり、pH 値は 5.55 とやや酸性を示している。

第3表には泉州瓦粘土と本邦の主な瓦粘土の化学分析値を比較した。化学組成は同一の採掘稼行地域内においてもわずかながら異なった値を示すので、第3表にはできる限りその地域の代表的な分析値をもつ粘土をプロットした。第3表を検討すると、 SiO_2 60% 前後、 Al_2O_3

16.6-28.5%、 Fe_2O_3 3-3.5% および 6-7.2%、 K_2O 1.5-2.5%、Ig. loss 主として 10% 前後などの限られた領域に集中し、化学組成がほぼ類似している。このことは、前述の木節粘土との分析値比較結果ともかなり合致している。

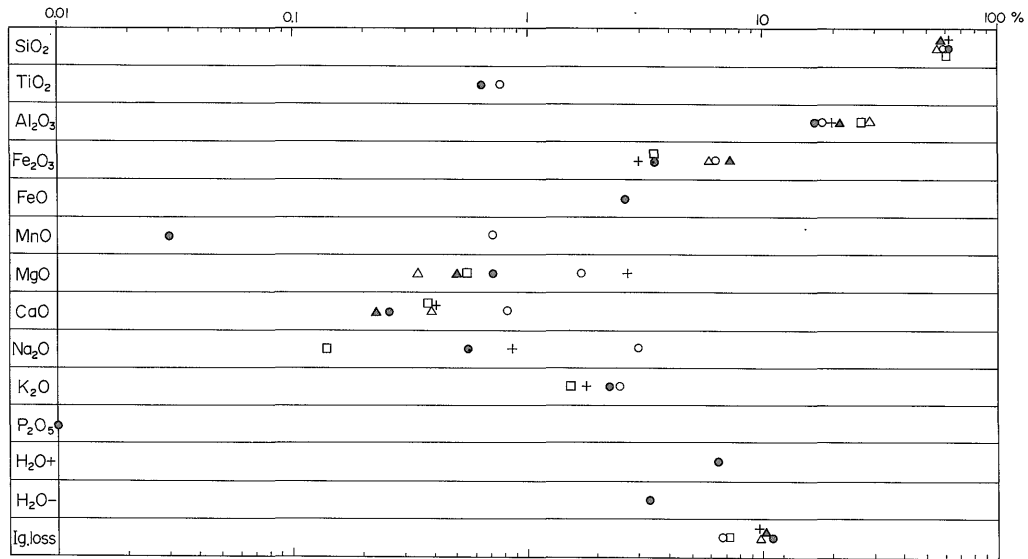
一方、これら瓦粘土の耐火度は淡路瓦粘土の SK 7 (溶倒温度 1230°C) を最低として、泉州瓦粘土の SK 16 (同 1460°C)、越前瓦粘土の SK 28+ (同 1630°C) まではつきがある。化学組成と耐火度との関係は不明な点が多いが、第3表でみる限り (Ca, Mg)O、(Na, K)₂O 成分が多いほど溶倒温度が低下する傾向があるらしい。

5.2.3 X線回折

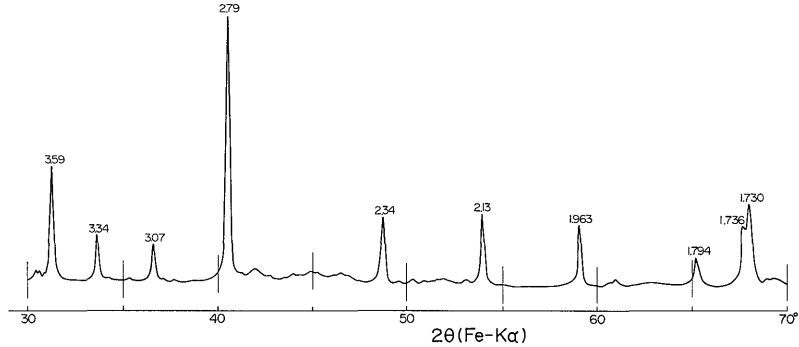
X線回折により泉州瓦粘土の鉱物組成を検討した。試料は粒度分析によって分離した粒径 2 μ 以下の粘土分および原土のままの定方位試料、不定方位試料を用いた。これらの試料には別途薬品処理、加熱処理も行った。第3図に < 2 μ 粘土部分の X線回折図を示す。

回折図にみられる 9.9 Å、4.99 Å の反射は、エチレングリコールおよび 150~600°C 加熱処理によっても変化しないので、イライトによるものである。15 Å の反射はエチレングリコール処理によって 16.7 Å に移動し、300°C 加熱により消失、10 Å 反射の増加がみられるのでモンモリロナイトによる反射と考えられる。7.2 Å 反射は塩酸

第3表 本邦の主な瓦粘土の化学分析値比較表



- 泉州瓦(大阪府阪南町)
- 淡路瓦(鳥飼粘土・兵庫県五色町)兵庫県、1964
- ▲ 三州瓦(三河粘土・愛知県豊田市)下坂、1978
- 越前瓦(桜谷粘土・福井県織田町)西元ほか、1971
- △ 三州瓦(三河粘土・愛知県安城市)近藤、1975
- 十 八幡瓦(八幡粘土・滋賀県近江八幡市)兼松ほか、1966



第4図 瓦粘土中の鉄のX線回折図

回折条件 Target: Fe, Filter: Mn, Voltage: 30 kV, Current: 10 mA, Count Range: 2000 c/s, Time Constant: 2 sec., Scanning Speed: 1°/min., Chart Speed: 1 cm/min.

処理で変化がみられず、600°C加熱により消失するので、カオリン鉱物による反射であろう。7 Åカオリン鉱物は d (001) 7.28 Å, d (002) 3.56 Åであり、粉末回折による I (002)/I (001) は約1.11, d (020) 反射と d (002) 反射強度はほぼ等しく、また、40-35° の領域に数本の反射が認められることなどから不良結晶質のカオリナイトである可能性が高い。このほか4.24 Å, 3.33 Åに石英の反射がみられる。原土の粉末回折ではこのほかにカリ長石、斜長石、鉄鉱物の弱い反射がみられるが、< 2 μ粘土部分では認められない。

次に小林・生沼 (1962) の方法に準拠して、10 Å・15 Å・7 Åの各反射強度から粘土鉱物の存在量を求めた。石英は4.2 Åの検量線によって求めた。その結果、< 2 μ粘土部分の鉱物組成比はイライト17%、モンモリロナイト13%、カオリナイト43%、石英27%であった。一方、粒度分析によって得られた粒径 200 μ以上の粗砂部

分には、多量の鉄が含まれているので、マグネティック・セパレーターを用いて鉄のみを回収し、乳鉢で粉砕のちX線回折を行って鉄の組成を明らかにした。第4図にその回折図を、第4表にX線回折表を示す。これらの結果からわかるように、泉州瓦粘土の粗砂部分に含まれる鉄は菱鉄鉱であることが明らかになった。粗砂部分にはほかに石英、方解石も含まれている。菱鉄鉱の2.79 Åの最強線は、原土の粉末回折図でもごく弱い反射が認められた。

次に高温域における鉱物組成の変化を調べるため、原土を電気炉中で1000°C30分および1時間、1120-1200-1300°C各1時間焼成した試料について、粉末回折を行った。これはいぶし瓦の場合、原料粘土を通常900-1000°Cで焼成・燻化する（いわゆる仕上げ焼き）、粘土の組成鉱物の焼成変化も検討する必要があると考えたからである。第5図にそのX線回折図を示す。各温度における焼成物の鉱物組成について以下にまとめる。

1) 1000°C30分間焼成

粘土鉱物は完全に消失している。菱鉄鉱の2.79 Åの最強線もみられないが、赤鉄鉱の3.69 Å, 2.69 Å, 2.51 Å, 1.69 Åの弱い反射が認められる。加熱によって菱鉄鉱は分解され、CO₂を放出して赤鉄鉱が生成されたものである。肉眼的にも焼成物の色調は淡橙色（標準土色帖による5 YR 8/4）を呈する。ほかに石英の鋭い反射がみられ、カリ長石の3.23 Å反射が残っている。

2) 1000°C1時間焼成

30分焼成物と比較してほとんど変化はみられない。ともにγ-アルミナの反射は不明である。

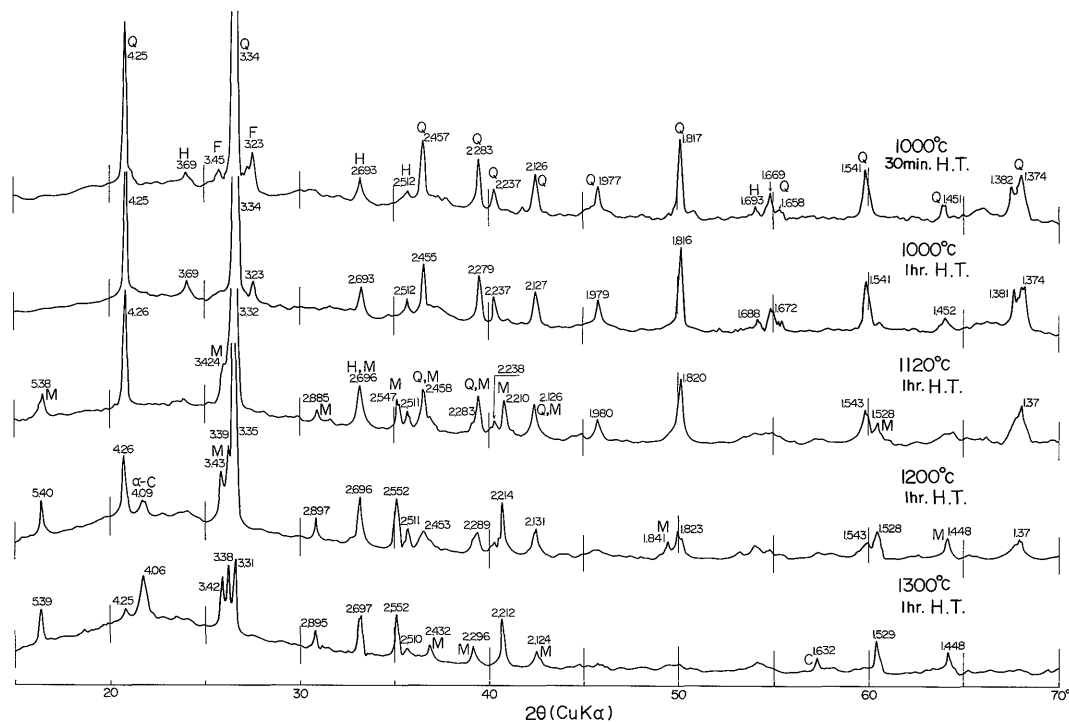
3) 1120°C1時間焼成

カリ長石の反射が消失し、ムライトの反射が認められるようになった。しかし、この段階ではムライトの3.42

第4表 菱鉄鉱のX線回折表

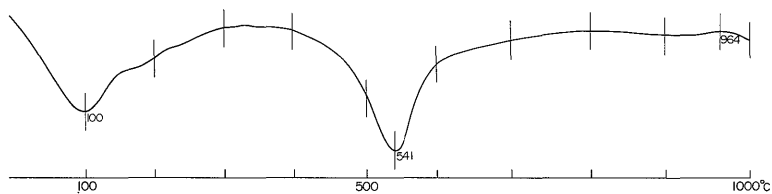
瓦粘土の粗砂部分 (200 μ<) 中の鉄		Pure Siderite (A.S.T.M. 8-133)	
d (Å)	I	d (Å)	I
3.59	43	3.59	60
3.34*	18		
3.07**	14		
2.79	100	2.79	100
2.34	26	2.35	50
2.13	28	2.13	60
1.963	24	1.963	60
1.794	11	1.795	50
1.736	23	1.734	80
1.730	31		

* 石英
** 方解石



第5図 瓦粘土の焼成物のX線回折図(原土)

回折条件は第3図と同じ。Q:石英, F:カリ長石, H:赤鉄鉱, M:ムライト, α-C:α-クリストバライト



第6図 瓦粘土の示差熱分析結果(粒径<2μ)

測定条件 Heating Rate: 20°C/min., D.T.A. Sensitivity: ±50μV, Standard Sample: Al₂O₃, Thermocouple: pt-pt 13% Rh, Sample Weight: 0.04g, Chart Speed: 8 mm/min.

Å反射は石英の3.32Å反射との分離が悪い。石英の4.26Å反射は強度をやや減じている。その他、赤鉄鉱の3.69Å, 1.69Å反射が消失しているが、2.69Å, 2.51Å反射は残っている。

4) 1200°C 1時間焼成

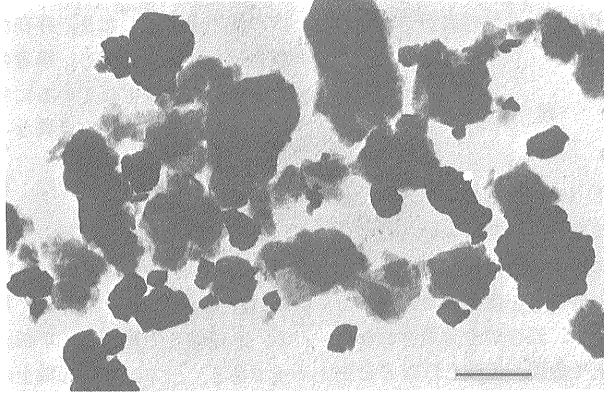
ムライトは石英の反射との分離がよくなり、明瞭な反射がみられるようになった。ほかに、4.09Åにα-クリストバライトの弱い反射が認められるようになった。一方、石英の4.26Å反射は強度が半減し、赤鉄鉱はそのまま残っている。焼成色がにぶい橙ないしにぶい赤褐色(2.5 YR 6/3-2.5 YR 5/3)に変化した。

5) 1300°C 1時間焼成

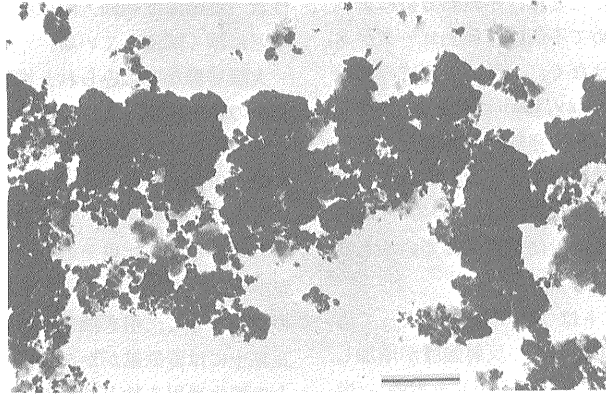
α-クリストバライトの反射が強度を増した反面、石英の4.25Å反射は極めて弱くなっている。また、X線回折パターンからみて、非晶質シリカが多くなっていると推定される。焼成色調は灰白色(7.5 Y 7/2)に変化した。1000°Cから1300°Cに至る焼成色調の違いは、その多くが鉄の酸化状態に起因するものであろう。

5.2.4 示差熱分析

示差熱分析の結果を第6図に示す。使用した試料は<2μ粘土である。分析結果から特徴的にいえることは、カオリン鉱物が含有されているにもかかわらず、960°C



第7図 瓦粘土の電子顕微鏡写真（粒径 $<2\mu$ ）
スケールは 1μ



第8図 菱鉄鉱の電子顕微鏡写真
スケールは 1μ

付近の発熱ピークが極めて不明瞭で温度も低く、また 540°C 付近の吸熱温度もやや低いことである。この要因としてはカオリン鉱物が disorder 型カオリナイトであることや、種々の組成鉱物の干渉によるものと考えられるが、詳細は後述する。モンモリロナイトの吸熱ピークは $150-250^{\circ}\text{C}$ 付近にそれらしい反応が認められるが定かではない。

5.2.5 電子顕微鏡による観察

$<2\mu$ 粘土試料の電子顕微鏡観察を行い、粘土鉱物の特徴をしらべた。観察条件は 50 kV 加速電圧下である。第7図にみられる組成鉱物の形態は、板状、薄片状などを示している。板状の結晶は、不完全な六角形を示すので、disorder 型のカオリナイトと考えるのが妥当である。これはX線回折結果と一致する。薄片状を呈する結

晶は極めて薄く、先端がカールしていると思われる針状形状が認められ、イライトと考えられる。モンモリロナイトに特徴的な薄膜状の形態は認められない。第8図は菱鉄鉱の電子顕微鏡写真である。菱鉄鉱は微細なゲル状のものと同径 1μ 程度の不定形板状のものが観察される。

5.2.6 光学顕微鏡による観察

顕微鏡下で原土の薄片を観察した結果では、組織は概して均質、緻密で空隙に乏しく、粘土鉱物の集合体が樹枝状、羽毛状を呈しているのが特徴である。斑晶状に散点する石英は一般に細粒で角ばっている。有色鉱物は大部分が菱鉄鉱であるが、非常に大きい複屈折を示すものがあり、それらは方解石に変わっているものと考えられる。菱鉄鉱の粒子は不定形ないし不規則な楕円状であり、その外縁は幾分凹凸に富んでいる。色は半透明、黄

褐-淡褐色で粒子の中心部から酸化のすすんでいるものが多い。そのほか少量のくずれかかった珪岩が含有されている。

6. 考 察

1) 粒度組成

泉州瓦粘土は粒径 20μ 以下(シルト部分, 粘土部分)の範囲が92.3%であり, 微粒部分が非常に多い。このことは吸水率や可塑性, 凍結に対する抵抗性などに影響する。したがって他の原料土や砂などを混合して瓦用坯土とすることが望ましい。しかし, 混合が十分なされないと製品過程で曲げ強度の低下や亀裂, 焼成むらなどを生じやすい。

2) 焼成物の鉱物相変化

1000°Cまでの焼成によって粘土鉱物は完全に破壊されたが, γ -アルミナの反射は不明で, 1120°C焼成によってムライトが生成された。このことは, 示差熱分析によってみられた960°C付近の極めて不明瞭な発熱ピークがムライトの形成によるものではなく, ムライト形成の前段とされる γ -アルミナ(BRINDLEY, 1961はシリカ-アルミナスピネル相としている)による発熱反応であることを示唆している。しかし, 前述のように1000°C焼成物のX線回折からは γ -アルミナの反射がみられないので, 量的に少ないかまたは残留石英の反射に重複されているものと考えられる。

一方, α -クリストパライトは1200°C焼成によって形成され, 1300°C焼成によって 4.09\AA の反射強度が増加した。そこで α -クリストパライトのd(101)反射の(半価幅)/(ピークの高さ)の比率を比較してみると, 1200°C=0.24, 1300°C=0.14となり, 焼成温度の上昇に伴って減少している。このことは, α -クリストパライトの結晶度が焼成温度の上昇に伴ってよくなっていることを示している。他方, 石英のd(100)についてみると, 1000°C=0.017, 1120°C=0.026, 1200°C=0.055, 1300°C=0.118となり, α -クリストパライトとは逆に焼成温度の上昇に伴って増大していることがわかり, 結晶度が低下していくことが示された。

これらの事実は, 瓦粘土中の石英が1200°Cを転移点として, α -クリストパライトに転移しつつあることを物語っている。しかし, 1120°Cでムライトが晶出していることは, この時点でカオリナイトなど粘土鉱物から遊離したシリカが α -クリストパライトを形成したことも考えられるので, さらに詳細な結晶構造の検討を要する。クリストパライトの晶出に関しては奥田ほか(1963)が, カオリン粘土に適量のアルカリあるいはアルカリ相

当量の長石を添加した結果, クリストパライトの晶出温度の低下をきたしたり, 存在が認められなくなった, と報告している。しかし, 筆者の扱った瓦粘土では, これらの成分も含有されているにもかかわらず, 上述のように奥田らの実験結果とは異なった結果がみられた。

7. む す び

泉州瓦粘土を含む本邦の主な瓦粘土の化学組成を比較すると, SiO_2 60%前後, Al_2O_3 16.6-28.5%, Fe_2O_3 3-7.2%, K_2O 1.5-2.5%, Ig. loss 10%前後に集中しており, 木節粘土と比較して不純成分がかなり多い低級の粘土である。一方, 泉州瓦粘土の鉱物組成は, 粘土鉱物としてdisorder型のカオリナイトを主成分とし, イライトとモンモリロナイトからなり, ほかに石英, 菱鉄鉱, 方解石, 長石を随伴している。鉱物組成とその量比は, 粘土瓦の成形に重要な要素である可塑性・乾燥性能・焼成性状(焼結温度範囲・耐火度・収縮率など)・粒度組成, などに深く関連している。

大阪層群などにみられる堆積性粘土の鉱物組成は, 供給源の後背地の地質に影響されていることが多い。泉州瓦粘土層中には, 野外において後背地の和泉層群起源のsand ball, mud ballが含まれているのが観察された。この事実は, 瓦粘土層が和泉層群の碎屑物であることを示唆しているように思えるが, なお, 不明な点が多い。したがって, 瓦粘土層とその挟在層の供給源の問題は今後の課題として, 引き続き検討の予定である。また, 泉州瓦粘土には菱鉄鉱がかなり多く含まれており, これは粘土の風化過程や粘土鉱物の成因を解明するうえで, 重要な手掛りになるとと思われる。

文 献

- BRINDLEY, G. W. (1961) 若干の窯業原料の結晶構造と加熱性状。窯業協会誌, vol. 69, p. c 189-194.
- 原田哲朗・石田志朗・大西郁夫・徳岡隆夫(1963) 近畿地方の新期新生代層の研究Ⅲ—大阪南方, 和泉地域の大阪層群。地球科学, no. 66, p. 1-8.
- 兵庫県商工労働部(1964) 淡路島鑄物砂及び窯業原土埋蔵状況調査報告書, 63 p.
- 兼松四郎ほか5名(1966) 瓦の粘土。地学研究, vo. 17, no. 10・11・12, p. 82-88.
- 小林和夫・生沼 郁(1962) 海底堆積物中の粘土鉱物の研究。海洋地質, vol. 1, no. 1, p. 13-23.

大阪府阪南町の瓦粘土の産状と性質 (小村良二)

近藤善教(1975) 東海地方の窯業原料—とくに陶磁器原料について. セラミックス, vol. 10, p. 867-875.

日本粘土学会(1967) 粘土ハンドブック. 技報堂, 東京, p. 210-211.

西元三郎ほか(1971) 原土調査とその基礎性状. 福井県窯業試験場研究報告, no. 8, p. 37-57.

奥田 博・加藤修三・伊賀武雄(1963) カオリン質粘土の高温相変化について. 窯業協会誌, vol. 71, p. 119-128.

下坂康哉(1978) 東海北陸地方の窯業原料. 地質ニュース, no. 283, p. 50-62.

(受付: 1979年1月10日; 受理: 1979年3月5日)