

**ベントナイトのイライト化のナチュラルアナログ：
新潟県西頸城半深成岩による接触変成事例**

(研 究 報 告)

2001年4月

核燃料サイクル開発機構
東 海 事 業 所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせ
ください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001

ベントナイトのイライト化のナチュラルアナログ：
新潟県西頸城半深成岩による接触変成事例
(研究報告)

二口克人¹、橋本秀爾¹、桜本勇治¹、三ツ井誠一郎²、亀井玄人²

要 旨

熱によるベントナイトのイライト化のナチュラルアナログとして新潟県西頸城地域における第三紀の泥岩とこれに貫入する第四紀の火成岩（ひん岩）を対象に、この貫入岩周辺の粘土鉱物の変化と、貫入岩及びその周辺の熱履歴について検討した。その結果、泥岩中有の主な粘土鉱物は貫入岩に近づくにつれてモンモリロナイト→イライト/モンモリロナイト混合層鉱物→イライトと変化することが明らかとなった。また貫入岩の冷却史に基づく周辺泥岩の熱的解析の結果、イライト割合75%の条件として、270℃から15℃まで冷却するのに約75万年要したことが明らかとなった。モンモリロナイトからイライトへの反応を一次反応としてその活性化エネルギーを求めると、約103kJ/molの値を得た。この値は、従来の天然事例の調査や室内試験において得られている値の範囲にある。

1) 株式会社 ダイヤコンサルタント

2) 東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部

A Natural Analogue of Illitization of Bentonite: A Contact Metamorphism by The Nishikubiki Hypabyssal Rock in Niigata Prefecture, Japan

K.Futakuchi ¹⁾, S.Hashimoto ¹⁾, Y.Sakuramoto ¹⁾, S.Mitsui ²⁾ and G.Kamei ²⁾

ABSTRACT

As a natural analogue, the authors investigated a Tertiary argillaceous bed and a Quarternary hypabyssal rock (porphyrite) which intruded into the argillaceous rock, distributed in the Nishikubiki district of Niigata prefecture in Japan. We examined the variation of clay mineral species in the argillaceous rock surrounding the intrusive rock and carried out thermal analyses for the argillaceous rock based on the cooling history of the intrusive rock.

The predominant clay mineral varied from montmorillonite to illite through illite/montmorillonite interlayers with approaching to the intrusive rock. The thermal analyses indicated that the temperature descended from 270 to 15°C during the 7.5×10^5 years at a locality of argillaceous rock containing 75% illite in the interlayers. On the assumption that the alteration from montmorillonite to illite was regarded as a first-order reaction, we evaluated the apparent activation energy based on the thermal condition mentioned above; about 103 kJ/mol was obtained for this illitization. This was within the range of values reported previously by laboratory experiments and/or examinations of natural illitizations.

Key words; natural analogue, illitization, illite, monmorillonite, bentonite, Nishikubiki

1) Dia Consultants Co.Ltd,

2) Waste Isolation Research Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Tokai Works

目 次

1	はじめに	1
2	地質	2
3	試料	3
3.1	貫入岩	4
3.2	泥岩	4
4	調査手法	4
5	結果	8
5.1	X線回折分析	8
5.2	放射年代	9
5.3	密度・含水比	9
5.4	化学特性および膨潤度	9
5.5	化学組成	10
5.6	熱伝導率および比熱	10
5.7	微化石	10
6	考察	10
6.1	イライト化変質作用の要因と特徴	10
6.2	貫入岩の冷却史	11
6.3	イライト化変質の熱解析	11
6.4	イライト化の温度時間条件と活性化エネルギー	13
7	おわりに	14
8	参考文献	15

目 次

Figure 1	Geological map of Nishikubiki district in central Japan	18
Figure 2	Distribution of illite, illite/montmorillonite mixed layer minerals and montmorillonite in the study	19
Figure 3	Powder X-ray diffract pattern of each alteration zone.	20
Figure 4	Thermal history of porphyrite	21
Figure 5	Finite element mesh.	22
Figure 6	Thermal history of selected points.	23
Figure 7	Arrhenius plots with fitting lines extrapolated to geological time condition.	24
Figure 8	Results of thermal analysis.	25

表 目 次

Table 1	Conditions of powder X-ray diffraction	30
Table 2	Methods for chemical characterisation	31
Table 3	Mineral assemblage of argillaceous rock and porphyrite	32
Table 4	Mineral assemblage of each alteration zone	33
Table 5	Results of fission track dating	34
Table 6	Results of fission track dating for argillaceous rock	35
Table 7	Results of K-Ar dating for porphyrite	36
Table 8	Mechanical properties of argillaceous rock	37
Table 9	Results of chemical characterisation for argillaceous rock	38
Table 10	Chemical composition of argillaceous rock	39
Table 11	Thermal conductivity data of argillaceous rock and porphyrite	40
Table 12	Specific heat data of argillaceous rock and porphyrite	41
Table 13	Calcareous nanno fossils extracted from the argillaceous rock sample	42
Table 14	Diatom fossils extracted from the argillaceous rock sample	43
Table 15	Foraminifer fossils extracted from the argillaceous rock sample	44
Table 16	Thermal properties of argillaceous rock and porphyrite	45
Table 17	Time-temperature conditions for the illitization	46

1 はじめに

緩衝材としてのベントナイトに期待される性能のほとんどは、主成分鉱物であるモンモリロナイトの特性に依存する。そのため、ベントナイトの長期安定性の評価を行う際には、このモンモリロナイトの変化を評価する必要がある。天然地質環境におけるモンモリロナイトの変化には、陽イオン交換によるイオン型の変化、カオリナイト化、イライト化、緑泥石化、シリカセメンテーション等があるが、これらのうちで、想定される処分環境での発生と、緩衝材性能の顕著な低下がともに懸念される変化としてイライト化がまず考えられる。この変化はもともと粘土鉱物学や鉱床学の分野で実験的な研究や天然事例の調査が精力的に行われてきているが、以下にこれらの研究例も交えて、地層処分システムの性能評価におけるイライト化の重要性について第2次とりまとめ（核燃料サイクル開発機構、1999）にもとづいて述べる。

イライトはモンモリロナイトと同様の2:1型フィロ珪酸塩であるが、モンモリロナイトに比べて四面体の負電荷が高く、層間にカリウムが固定されているためにイオン交換性能および層間膨張性能がモンモリロナイトより劣る。イライト化は天然の埋没続成作用や熱水変質作用の結果として広く認められる現象であるので、地層処分後のベントナイトの変質シナリオとしても最も注意が払われてきたプロセスである。そのプロセスにはKが必要であり、イライト/モンモリロナイト混合層を経て進み、イライト化率0~50%は不規則型混合層、それ以降は規則型混合層へと変化する。イライト化に伴う緩衝材性能への影響としては、まず、核種の収着に関してイライトは層間陽イオンが固定されており、モンモリロナイトに比べて陽イオン交換容量が低いので、イオン交換性の核種の収着機能は低下する。例えばイライトへのCsの分配係数(Kd)はベントナイトのそれに比べて約20%小さい。核種の拡散についてはイライト化した試料に対する信頼できるデータは見当たらない。しかし、ブームクレイのCs、Tc、Npに対する見掛けの拡散係数がNa型ベントナイト（商標名クニゲルV1、クニミネ工業（株）製）のそれよりも低いことなどから著しい性能劣化は考えにくい。

透水性については注意を要する。乾燥密度 1.2g/cm^3 の条件で新潟県村上産のイライトとクニゲルV1の透水係数を比較するとクニゲルV1が 10^{-12}m/s 程度であるの

に対し、イライトが 10^{-10} m/s 程度であり、約 2 桁高い値を示す。透水係数が 3 桁上昇すると緩衝材領域の拡散支配が担保できなくなる可能性があるため、この変化の程度は重要といえる。

さて、天然の事例で温度、時間履歴、化学環境等を明らかにしたナチュラルアナログ研究として、Pusch(1983) の Kinnekule ベントナイト鉱床や、Kamei et al.(1990, 1992)の村上粘土鉱床の例がある。前者によれば、ベントナイトが 100~150℃の条件で変質することなく数百年間存在していた。また後者の研究によれば、海水類似の地下水環境で、240℃から 100℃まで 300 万年かかって冷却した条件においてイライト/モンモリロナイト混合層中のイライト層成分は 40%程度であり、160℃から 100℃まで 200 万年かかって冷却した条件においてはイライトは見られなかった。モンモリロナイトのイライト化に関する kinetics については Eberl and Hower(1976) の 1 次反応モデルがあるが、これにもとづき、この後者のイライト化事例の活性化エネルギーを求めるとおよそ 113kJ/mol となる。この値は海水類似溶液中での室内実験で得られた活性化エネルギーの値 (126kJ/mol, Roberson and Lahann,1981) に近いといえる。このことは天然環境での数百万年に及ぶモンモリロナイトのイライト化変質も一次反応モデルによって近似できることを示唆している。この一次反応モデルにもとづく石川ほか(1994)および柴田・亀井(1992)の計算結果によれば、100℃を越える期間が数十年におよび、かつ、最高温度が 130℃程度になる場合であっても著しいイライト化は示さないと考えられる。

しかしながら、このような長期予測をより確かなものとするためには、天然環境で数万年以上にわたって継続したナチュラルアナログ事例の調査のさらなる蓄積がもっとも効果的であると考え、火成岩の貫入にともなうモンモリロナイトのイライト化変質事例を調査した。

2 地質

調査地域およびその周辺の地質図を Figure 1 に示す。調査地域はフォッサマグナの最北部に位置し、フリッシュ型互層を主とする新第三系が分布する。西田ほか(1966)にもとづき、調査地域内新第三系の地質を述べる。

この地域は下位から新第三紀の久比岐 (くびき) 層群、能生谷 (のうだに) 層、

川詰（かわづめ）層、名立（なだち）層、谷浜（たにはま）層が分布し、さらにこれらを覆って、第四紀の段丘堆積層、焼山（やけやま）火山噴出物、沖積層等が分布している。

久比岐層群は新第三系の下半分を占める地層で、主に黒色泥岩と細粒砂岩の互層からなっている。また、スランピング構造が観察される。この久比岐層群の上位に黒色泥岩で特徴づけられる能生谷層が整合関係で累重する。能生谷層の上部は塊状の泥岩からなるが、下部は砂岩との互層となっている。能生谷層を整合関係で被覆する川詰層は凝灰質砂岩を主として礫岩や泥岩を挟在する。川詰層を整合関係で被覆する名立層は泥岩を主とし、火砕岩を挟在することがある。これらを不整合関係で被覆する谷浜層は礫岩や火砕岩を主とし、泥岩を挟在する。

これらの新第三紀層は西頸城半深成岩類とよばれる石英閃緑ひん岩～閃緑ひん岩にところどころで貫入されている。この貫入時期については西田ほか(1966)および赤羽・加藤(1989)は能生谷層堆積後、川詰層堆積前と考え、茅原ほか(1984)は谷浜層の火砕岩がこれらの貫入岩類の噴出相であるとみなし、すなわち谷浜層堆積時がこれら半深成岩類の貫入時期と考えた。

渡辺・佐藤(1986)、佐藤・渡辺(1989)および佐藤ほか(1991)は、久比岐層群、能生谷層、川詰層の泥岩および砂岩中の粘土鉱物や沸石を調査し、モンモリロナイトが能生谷層上部層以上の地層群にのみ認められ、それより下位の地層群にはイライト／モンモリロナイト混合層鉱物が認められること、そしてこの混合層鉱物のイライト割合が下位ほど大きくなることを見出し、この粘土鉱物の変化は続成作用に起因するものと結論づけている。

能生谷層から名立層までは、深海から浅海への堆積環境の変化を示している。名立層の堆積時期に後背地の隆起部が陸化している。その上位にあって傾斜不整合に被覆する谷浜層も浅海の堆積物であり、この谷浜層の分布域が現在の海岸付近に限られることから、この時期には調査地域一帯は陸化していたものと考えられる。

3 試料

試料はイライト化の熱源となった貫入岩と、モンモリロナイトからイライト／モンモリロナイト混合層鉱物への変化を追跡できる貫入岩周囲の能生谷層上部層

の泥岩である。試料採取地点を Figure 2 に示す。調査対象としたひん岩の岩体露出面積は約 15 km² である。

3.1 貫入岩

イライト化の熱源である西頸城半深成岩類に属する貫入岩（ひん岩）の貫入時期と温度履歴（冷却速度）を見積もるために、K-Ar およびフィッシュトラック（FT）法による年代測定用鉱物として Figure 2 の SW-1 および SW-3 で示す地点からひん岩の試料を採取して持ち帰り、粉碎洗浄、ふるい分けによって # 60 以下の粒子を集め、重液分離と電磁分離によってジルコン、アパタイト、角閃石、斜長石の分離を試みた。FT 用試料としてアパタイトが、K-Ar 法に対しては全岩および斜長石が確保できた。

ひん岩については年代測定に供する試料につき、薄片試料を偏光顕微鏡にて観察した。斑晶としては斜長石、普通角閃石、不透明鉱物を、石基として、細粒石英、斜長石、不透明鉱物を、さらに間隙を充填する鉱物として方解石を認めた。斜長石はいずれも新鮮で自形を呈し、普通角閃石は粒径 1mm 以下のものはほとんど他鉱物に変質していた。

3.2 泥岩

イライト化の及んだ範囲と程度を把握するため上記ひん岩に貫入された能生谷層上部層に属する泥岩を対象とした。調査地に関する渡辺・佐藤(1986)、佐藤・渡辺(1989)および佐藤ほか(1991)の文献を参考に、ひん岩の能生谷層に対する接触面と直交し、泥岩およびひん岩の露出が期待できるルートとして能生川支流の島道川を選定した。これらの露出する場所（露頭）を Figure 2 に示す。これらの露頭から得た試料を X 線回折分析に供した。また、泥岩の堆積年代を把握する目的で、微化石分析用の試料と FT 年代測定のためのジルコンを抽出するために、能生谷層と同一層準とされる（赤羽・加藤、1989）金谷凝灰岩層から試料を採取した（採取位置は上越市高田西部の平山）。

4 調査手法

X線回折分析、放射年代測定のほか、泥岩についてはベントナイトとの物理化学特性の比較の目的で、密度・含水比、化学特性（陽イオン交換容量；CEC、メチレンブルー吸着量；MBC、浸出陽イオン濃度；EC）、膨潤度の測定と化学組成分析を行った。また、貫入岩周辺の熱履歴計算の入力データとして必要な熱伝導率および比熱の測定と、泥岩の堆積年代および堆積環境推定のための微化石分析をおこなった。以下に各々の手法について概略を述べる。

4.1 X線回折分析

採取した試料（Figure 2 に示す泥岩試料のすべて）を風乾した後、ステンレス乳鉢で粗砕し、さらに自動めう乳鉢で指にざらつきを感じない程度に粉碎して粉末試料とした。この粉末試料を蒸留水とともにシリンダー（容積1L）中に分散させ、8時間放置した後上澄み液（上部から10cm、容積で334mL）を回収して、遠心分離器によって粘土分を沈澱させた。この沈殿物をスライドガラスに塗布して定方位試料とした。X線回折分析の条件をTable 1に示す。同分析には日本電子（株）製JDX-11PA型X線回折装置を用いた。

4.2 放射年代測定

凝灰岩の堆積年代を知る目的で、前述の金谷凝灰岩試料からジルコンを抽出し、そのFT年代をgrain by grain外部ディテクター法により測定した。年代算出にあたっては、 ^{238}U の自発壊変定数として $7.03 \times 10^{-17}/\text{y}$ を用いた。

また、ひん岩についてはさらに風化部分を除去した試料を粉碎し、#60-80に粒径をそろえた全岩試料、鉍物分離後の角閃石及び斜長石を超音波洗浄してK-Ar年代測定に供した。測定は長尾・板谷(1988)に示された方法にもとづいて行った。年代の計算に用いた定数は $\lambda_{\alpha}=0.581 \times 10^{-10}/\text{y}$ 、 $\lambda_{\beta}=4.963 \times 10^{-10}/\text{y}$ 、 $^{40}\text{K}/\text{K}=0.01167\text{atm}\%$ である。ひん岩についてはさらにアパタイトを抽出してFT年代を測定した。その測定方法と使用した定数は上記ジルコンの場合と同様である。

4.3 密度・含水比測定

採取した不かく乱の泥岩試料（試料No.21, 25, 30）を持ち帰り、土粒子の密度、

含水比、湿潤密度、乾燥密度、間隙比、飽和度を測定、算出した。

土粒子の密度は JGS-T-111 に準拠し、以下の手順で実施した。

すなわち、試料を検定したピクノメータに入れ、蒸留水を 2/3 程度まで加えて湯煎によって加熱しながらピクノメータを振り、気泡を除いて室温まで放置した。つぎにピクノメータに蒸留水を加えて満たし、全質量と温度を測定後、内容物を全量取り出し 110℃で炉乾燥した。デシケータ内で室温に戻した後、質量を測定した。土粒子の密度(ρ_s)の計算式は、以下のとおりである。

$$\rho_s = \frac{m_s}{m_s + (m_a - m_b)} \times \rho_w \quad (\text{g/cm}^3)$$

ここで、 m_s : 炉乾燥試料の質量 (g)

m_a : 試料+容器の質量 (g)

m_b : 温度 T℃の蒸留水と試料を満たしたピクノメータの質量(g)

ρ_w : 温度 T℃の蒸留水の密度(g/cm³)

含水比(w)は、JGS-T-121 に準拠し、以下の手順で実施した。

試料の自然状態の質量を測定した後、110℃で炉乾燥した。デシケータ内で室温に戻した後、質量を測定した。含水比の計算式は以下のとおりである。

$$w = \frac{m_a - m_b}{m_b - m_c} \times 100(\%)$$

ここで、 m_a : 試料+容器の質量(g)

m_b : 炉乾燥試料+容器の質量(g)

m_c : 容器の質量(g)

乾燥密度(ρ_d)、間隙比(e)、飽和度(S_r)は、試料の湿潤密度(ρ_t)、含水比および土粒子の密度より、以下のように算出した。

$$\rho_d = \rho_t / (1 + w/100)$$

$$e = (\rho_s / \rho_d) - 1$$

$$S_r = w \cdot \rho_s / (e \cdot \rho_w)$$

4.4 泥岩の化学特性と膨潤度

泥岩試料 (試料 No.21, 25, 30) について行った CEC、MBC、EC、pH 測定の手法について Table 2 にまとめた。また、同試料につき、日本ベントナイト工業会標

準試験方法(JBAS-104-77)に従って膨潤度を測定した。

4.5 化学組成

泥岩（試料 No.21, 25, 30）について、地質調査所(1978)に従って全岩化学組成を分析した。

4.6 熱伝導率および比熱測定

泥岩（試料 No.21, 25, 30）およびひん岩（試料 No.29）について、JIS R2618 の非定常法（耐火煉瓦の熱線法による熱伝導率の試験法）に従ったボックスプローブ法によって熱伝導率を測定した。測定は5回行い、その平均を求めた。

また、同一試料について比熱を測定した。測定は断熱型連続法を用い、温度 20-300℃ の範囲において、20℃ごとに測定した。

4.7 微化石分析

泥岩（試料 No.18）中に含まれる微化石について、石灰質ナンノプランクトン、珪藻、有孔虫のそれぞれの種類の同定と頻度調査を行った。

試料 No.18 は、ひん岩からの距離が比較的大きい位置の試料として選択した。以下に、各微化石項目ごとに分析方法を記述する。

石灰質ナンノプランクトン化石については、試料約 1g をピーカに移し、20ml 程度の水を加えてよく攪拌して懸濁液を作成した。攪拌した懸濁液を約 30 秒放置した後、懸濁液上層部をストローで吸い取り、カバーガラス上に静かに滴下し、ホットプレート上(約 40℃)で乾燥させた。乾燥確認後、カバーガラスを光硬化樹脂で封入し、偏光装置を備えた位相差顕微鏡で 1500 倍の倍率で観察した。観察個数は約 100 個体とした。

珪藻化石の試料調製については、湿潤重量約 10g に対し、過酸化水素水と塩酸による泥化と有機物の分解、漂白を行なった後、分散剤を加えて蒸留水を満たして放置した。その後、上澄みに浮遊する泥分の除去を行なって珪藻化石の濃縮を行なった。次に、L字型管分離で砂分を除去した後、カバーガラスに滴下して乾燥させ、封入剤（プリュウラックス）によって固定し、油浸下で 600

倍あるいは1000倍の倍率で顕微鏡観察した。

有孔虫化石については、試料約80gに対しナフサ法で泥化处理した後、#200(0.074mm)のふるいで泥分を除去した。得られた砂粒について、双眼実体鏡で観察を行なった。なお有孔虫化石が少ない場合には、重液(四塩化炭素)によって濃縮をはかった。

5 結果

5.1 X線回折分析

X線回折分析によって明らかになった、試料の鉱物組み合わせをTable 3に示す。貫入岩と泥岩(能生谷層上部層)の接触面からの距離に対応して、主要な粘土鉱物としてモンモリロナイト、モンモリロナイト/イライト混合層鉱物、イライトの変化が認められる(Figure 3)。すなわち、野外では、上記接触面から少なくとも80mまでイライトが分布し、イライト/モンモリロナイト混合層鉱物については、同様に80mと200mの間から280mと370mの間の範囲に出現し、それ以遠がモンモリロナイトが分布する区域となる。これらを便宜上、順にイライト帯(I帯)、イライト/モンモリロナイト混合層鉱物帯(IM帯)、モンモリロナイト帯(M帯)と区分すれば、それぞれの鉱物組み合わせはTable 4のようにまとめられる。

I帯の岩石は黒色を帯びたやや硬質の泥岩であって、粘土鉱物として少量のイライトと少量の緑泥石または緑泥石/モンモリロナイト混合層鉱物を含む。まれに微量のモンモリロナイトを含むこともある。IM帯の岩石は暗緑灰色を帯びたやや軟質でわずかに粘性のある泥岩で、粘土鉱物として微量のイライト/モンモリロナイト混合層鉱物と微量のイライトおよび少量または微量の緑泥石を含む。なお、本帯から採取した試料(No.25、貫入岩の接触面から約200mの位置に露出)について、渡辺(1981)の方法によってそのイライト比を見積もったところ、約75%と見積もられた。M帯の岩石は暗緑色を呈し、軟質でわずかに粘性がある。粘土鉱物として少量または微量のモンモリロナイトと微量のイライト、それに少量または微量の緑泥石を含む。

渡辺・佐藤(1986)、佐藤・渡辺(1989)および佐藤ほか(1991)によれば、能生谷層上部層のモンモリロナイトは続成作用に起因するものであるとされている。これに従えば、I/M 帯および M 帯の微量のイライトは堆積時に堆積粒子として含まれたものと考えることができる。

5.2 放射年代

泥岩の堆積年代を示唆する値について記す。Table 5 に示すジルコンによる FT 年代測定結果によれば、能生谷層と同一層準と考えられる金谷凝灰岩の堆積年代は $7.6 \pm 0.6 \text{Ma}$ と見積もられる。アパタイトによる FT 年代を上記 I、I/M、M 帯それぞれから得た試料について求めたところ (Table 6)、M 帯で $8.2 \pm 1.4 \text{Ma}$ 、I/M 帯で $9.4 \pm 2.3 \text{Ma}$ 、I 帯で $2.4 \pm 0.9 \text{Ma}$ の値を得た。I 帯において明らかに年代の若返りが認められる。貫入岩からの熱の影響と考えられる。なお、泥岩に含まれるジルコンのトラック長を計測したところ、イライト化を受けていないジルコンでのトラック長を基準にすると、I/M 帯では短縮化は認められなかったが、I 帯試料においては 0.66 倍程度の短縮化が認められた。

次にひん岩の活動年代について、K-Ar 年代を Table 7 にまとめた。それによると、全岩から求めた値が 1.1~1.2Ma、斜長石では誤差が大きいが、おおむね 0.5~0.9Ma の値を得た。また、ひん岩から抽出したアパタイトの FT 年代は $0.6 \pm 0.4 \text{Ma}$ となった (Table 5)。

5.3 密度・含水比

泥岩の真密度、含水比、不かく乱試料の湿潤密度および乾燥密度、空隙率、水分の飽和度について上記変質分帯ごとに Table 8 にまとめた。

5.4 化学特性および膨潤度

上記変質分帯ごとに泥岩の化学特性 (pH、CEC、MBC、EC) および膨潤度を Table 9 にまとめた。M 帯から I/M 帯の間で膨潤度が大きく低下することと、I/M 帯から I 帯の間で、CEC が大きく低下していた。

5.5 化学組成

Table 10 はひん岩および泥岩の各変質帯から採取した試料の全岩化学組成である。M 帯から I 帯の間で SiO_2 が低下傾向にあり、I/M 帯から I 帯の間で、Ca、Mg、Mn が大きく増大している。また、Al、Na、K に関しては顕著な変動はみられなかった。

5.6 熱伝導率および比熱

泥岩およびひん岩の熱伝導率および比熱を、それぞれ Table 11 および Table 12 に示す。なお、泥岩についてはそれぞれ変質帯ごとに値を示す。

5.7 微化石

泥岩から抽出された石灰質ナンノプランクトン、珪藻および有孔虫化石の分析結果をおのおの Table 13、Table 14 および Table 15 に示す。石灰質ナンノプランクトンの多産や有孔虫の産出から、泥岩は海水環境下で堆積したものと考えられる。なお、これらと共に産出する珪藻化石は淡水性環境において棲息するものであるが、ほとんどが好流水性種（河川等の流れのある水域に棲息するもの）であり、二次化石と考える。

なお、同定された種の組み合わせからは明確な堆積年代の決定はできなかった。

6 考察

6.1 イライト化変質作用の要因と特徴

上記の X 線回折分析および放射年代の項で述べたように、本事例におけるイライト化は、主に貫入したひん岩から供給された熱によるものと考えられる。ここでは上記鉱物分帯ごとの鉱物組成と化学組成から、この変質作用の特徴を考察する。

Table 10 に示すように、全岩化学組成は M 帯から I 帯の間で SiO_2 が低下傾向にあり、I/M 帯から I 帯の間で、Ca、Mg、Mn が大きく増大するとともに、Al、Na、K に関しては大きな変動はみられないことを特徴とする。この Ca、Mg および Mn の変動の要因として、ひん岩から泥岩への移動があったのかもしれない。しかし、

本事例では一般に熱水の活動にともなって移動しやすい Na、K の変化がほとんど見られず、これらを考えあわせると、熱水の循環や移動は、ほとんどないか、泥岩とひん岩との接触部のごく近傍に限られる小規模だったものとする。

モンモリロナイトのイライト化には K の供給が必要であるが、Table 4 に示すように M 帯のみにカリ長石が認められることから、泥岩中のカリ長石の分解により供給されたものとする。

6.2 貫入岩の冷却史

ひん岩の全岩および鉱物分離によって得た斜長石、アパタイトそれぞれの年代値と閉鎖温度を組み合わせて貫入岩体の冷却史を推定した。K-Ar 法における全岩での閉鎖温度を $500 \pm 100^\circ\text{C}$ (Nishimura and Mogi, 1986)、斜長石での閉鎖温度を 230°C (Harland et al., 1989)、FT 法によるアパタイトでのそれを $120 \pm 20^\circ\text{C}$ (柴田, 1991) として得た冷却曲線を Figure 4 に示す。この曲線によれば、冷却速度はおよそ $600^\circ\text{C}/\text{Ma}$ となる。ちなみに、このひん岩の露出面積 (岩体の規模の指標と考える) は、約 15 km^2 であるが、比較的近い規模の北アルプスの滝谷花崗岩 (露出面積 21 km^2) でも $300 \sim 400^\circ\text{C}/\text{Ma}$ の冷却速度が見積もられている (原山, 1994)。

6.3 イライト化変質の熱解析

上述の貫入岩の冷却履歴と矢川・宮崎(1991)によるプログラムをもとに、貫入岩周辺の温度分布の履歴を推定し、これをもとにイライト化に要した温度・時間条件を把握することを試みた。

(1) 解析モデル

Figure 5 に解析モデル図を示す。このモデルでは貫入岩に接する片側の泥岩部のみモデル化した。深度は全モデルとも 2300 m とした。解析結果の評価点は西頸城地域において採取された試料の分析結果から S1 (イライト 100%、貫入岩との接触面から 80 m)、S2 (イライト 75%、同 200 m)、S3 (イライト 0%、同 370 m)

の3点とした。なお、モデル中での評価点の深度を示す GL-300m は、ひん岩の噴出相の下限から試料を採取した層準までの深度を意味している。

(2)境界条件

解析モデルの境界条件は以下のとおりである。

・ 上端熱伝達境界

モデルの上端は大気と接触するものとし、境界条件として熱伝達境界を設定した。本解析で用いた熱伝達係数を以下に示す。

大気接触（空中）： $h=5.50 \times 10^5$ (kJ/m² yr °C)、雰囲気温度 $T=15^\circ\text{C}$

・ 側面温度規定境界

側面温度規定境界は上端温度を 15°C とし、地温勾配 $3.7^\circ\text{C}/100\text{m}$ で下端 2300m まで規定した。この地温勾配の値は能生川で実施されたボーリングの孔底温度が 238°C （深度 6005m）であった（丸山・伊藤、1997）ことを参考に設定した。また、右側面温度規定境界を貫入岩の温度で規定した。

(3)入力物性値

Table 16 に解析に使用した入力物性値一覧を示す。ひん岩と泥岩については当地域から採取した試料の実測値を用い、粘土については日本機械学会（1986）を引用した。

解析には、貫入初期の温度を入力する必要があるが、本事例ではよく分からない。ちなみに原山(1994)は、既述の北アルプス滝谷花崗閃緑岩の固結時の温度を既往の花崗岩マグマの溶融実験結果にもとづいて 730°C と設定している。本事例において、仮に貫入時の温度がその程度であったとしても、その直後に急激に冷却していったのか、または直線的に冷却していったのかはよくわからない。Figure 4 に示すように、全岩の K-Ar 年代に関する閉鎖温度を 500°C とし、斜長石の K-Ar 年代を約 0.7Ma とすれば、少なくとも 500°C 程度に下がった後の冷却はおおむね直線的であったのではないかと考えられる。本事例では、ベントナイトの熱的耐久性評価の観点から、

保守側（安全側）の条件設定として、貫入初期の温度を 500℃とした。

(4)解析結果

Table 17 に解析結果を、また、各評価点での冷却史を Figure 6 に示す。それによると、周辺泥岩の熱的解析の結果、イライト割合 75%の条件として、270℃から 15℃まで冷却するのに約 75 万年要したことが明らかとなった。

なお、I 帯から得たジルコンのフィッシュントラック長の短縮化率は約 0.66 であり、Yamada et al.(1995)における partial annealing に相当する。Figure 7 は Yamada et al.(1995)の図に、短縮化率 0.66 の場合の温度・時間条件を加筆したものである。これによれば短縮化率 0.66 の annealing のためには 350℃で一定の場合は 10⁵y 未満と見積られるものの、300℃で一定とすると約 10⁷ 年要することとなる。上記解析結果は、このようなジルコンのフィッシュントラック長の短縮化が示唆する温度・時間条件と比較して明らかに低温で短時間といえ、ベントナイトの熱的耐久性評価の観点からは保守側（安全側）であるとみなすことができる。

貫入岩および泥岩の温度分布の時間変化を Figure 8 に示した。

6.4 イライト化の温度時間条件と活性化エネルギー

イライト化の活性化エネルギーは以下の手順で算出した。

モンモリロナイトのイライト化割合と反応時間との関係は、以下の式で表現される。

$$\begin{aligned} \ln X &= k t \\ &= A t \exp(E_a/RT) \end{aligned} \quad (1)$$

ここに、

k: 速度定数

X: 混合層中のモンモリロナイト残存率

A: 頻度定数

t: 反応時間

E_a: 活性化エネルギー

R: 気体定数

T:絶対温度

熱解析結果を見ると、評価点での冷却は時間に対して直線的であることから、温度については反応期間中の中央値を代表として用いることとした。また、頻度定数 A は、(1) 式より、

$$A = k / \exp(E_a/RT)$$

であることから、Eberl and Hower (1976)が実験によって示した k ($1.2 \times 10^{-3} \text{days}^{-1}$)、 $E_a(82.0358 \text{kJ/mol})$ および T (533.15°K)の関係にもとづいて算出した。

次に、上記の式に西頸城でのモンモリロナイト残存率 25%の混合層鉱物の加熱条件 (127.5°C で 75 万年間とする) と、上記の手順で求めた頻度定数 (129906.0) を代入し、本事例におけるモンモリロナイトからイライトへの反応に関する活性化エネルギーを算出した。その結果、活性化エネルギーの値として約 103kJ/mol を得た。

なお、以下は既往文献に示されたイライト化の活性化エネルギーの値である。

- ・ Eberl and Hower(1976) 82 k J /mol (水熱合成)
- ・ Roberson and Lahann(1981) 126 k J /mol (水熱合成)
- ・ Kamei et al.(1990) 121 k J /mol (天然事例)

このように、本事例の値は従来知られていた実験に基づく値や天然事例に対する値の範囲内にある。

7 おわりに

熱によるベントナイトのイライト化のナチュラルアナログとして新潟県西頸城地域における第三紀の泥岩とこれに貫入する第四紀の火成岩(ひん岩)を対象に、この貫入岩周辺の粘土鉱物の変化と、貫入岩及びその周辺の熱履歴について検討した。その結果、泥岩中の主な粘土鉱物は貫入岩に近づくにつれてモンモリロナイト→イライト/モンモリロナイト混合層鉱物→イライトと変化することが明らかとなった。また貫入岩の冷却史に基づく周辺泥岩の熱的解析の結果、イライト割合 75%の条件として、 270°C から 15°C まで冷却するのに約 75 万年要したことが明らかとなった。モンモリロナイトからイライトへの

反応を一次反応としてその活性化エネルギーを求めると、約 103 kJ/mol の値を得た。

この値にもとづけば、処分環境において緩衝材（ベントナイト）が 100°C 以下の温度にある限り、評価期間を 100 万年としても、イライト化の発生する可能性はきわめて小さい。

調査対象地域の選定と調査地の諸情報にあたり、金沢大学の佐藤努助教授（当時日本原子力研究所）には多大なご教示をいただいた。現地における調査や試料採取に関しては、木下昌幸氏（元ダイヤコンサルタント、現応用地学研究所）および細谷真一氏（ダイヤコンサルタント）より、また、熱伝導解析コードの作成と指導に関しては山浦昌之氏（ダイヤコンサルタント）より、それぞれ多大なご協力をいただいた。

8 参考文献

- 赤羽貞幸、加藤一：高田西部地域の地質。地域地質研究報告(5 万分の 1 地質図幅)：地質調査所 p.89.(1989)
- 茅原一也、周藤賢治、北脇裕士、鈴木雅彦：難波山堆積・構造区における火成活動、特に hypabyssal-extrusive association について、地質学論集 24, pp.31-44(1984)
- 地質調査所：地球科学的試料の分析法 2 (1978)
- Eberl,D and Hower,J: Kinetics of illite formation, Geol.Soc.Amer.Bull.87, pp.1326-1330 (1976)
- 原山 智：世界一若い露出プルトンの冷却史—北アルプス、滝谷花崗閃緑岩の年代と冷却モデル—地質学論集 43,pp.87-97.(1994)
- Harland,W.B., Armstrong,R.L., Cox,A.V., Craig,L.E., Smith,A.G. and Smith,D.G: A geologic time scale, Cambridge University Press, 263.(1989)
- 石川博久，柴田雅博，藤田朝雄：放射性廃棄物地層処分における緩衝材のイライト化変質シミュレーション，粘土科学 34, pp.149-156.(1994).
- 核燃料サイクル開発機構：わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術

- 的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊3 地層処分システムの安全評価 JNC TN1400 99-023.(1999)
- Kamei, G., Arai, T., Yusa, Y., Sasaki, N. and Sakuramoto, Y.: Estimation of illitization rate of smectite from the thermal history of Murakami deposit, Japan, *Mat.Res.Soc.Symp.Proc.* 176, pp.657-663.(1990)
- Kamei, G., Yusa, Y., Sasaki, N.: Natural Analogue Study on the Long-term Durability of Bentonite. - Time- temperature condition and water chemistry on illitization at the Murakami deposit, Japan-, *Mat.Res.Soc.Symp.Proc.* 257, pp.505-512.(1992)
- 丸山一夫、伊藤法: 基礎試錐(西頸城)における超高温用泥水の使用実績, 平成9年度石油技術協会 春季講演会 シンポジウム・個人講演要旨集, p.92.(1997)
- 長尾敬介、板谷徹丸: K-Ar法による年代測定:地質学論集、v.29、p.5~19. (1988)
- 西田彰一、津田粒、市村隆三:フォッサマグナ最北部の新第三系(その1) —いわゆる難波山層に関する研究—、新潟大学理学部地質研究報告 1, pp.1-14.(1966)
- Pusch, R.: Stability of deep-sited smectite materials in crystalline rock —Chemical aspects, KBS TR 83-16.(1983)
- Roberson, H.E. and Lahann, R.W.: Smectite to illite conversion rates: effects of solution chemistry. *Clays and Clay Minerals*, 29, pp.129-135.(1981)
- 佐藤努、渡辺隆: 新潟県能生町能生川流域における新第三紀堆積岩の続成変質: 岩石鉱物鉱床学会誌 84,8 pp.259-269.(1989)
- 佐藤努、磯部博志、渡辺隆: 新第三紀頁岩・砂岩におけるスメクタイト—イライト変換反応, 粘土科学 31, pp.32-37.(1991)
- 柴田 賢, カリ長石のK-Ar年代と閉鎖温度: 地質ニュース、437号、p.7~14(1991)
- 柴田雅博・亀井玄人: ベントナイトの長期安定性評価—スメクタイトのイライト化変質について— PNC TN8410 92-165.(1992)
- 渡辺隆、佐藤努: 続成作用を示すイライト/モンモリロナイト混合層鉱物—新潟県能生町能生川流域に分布する新第三系の例—: 上越教育大学研究紀要 5,3, pp.101-111.(1986)
- Yamada, R., Takagi, T., Nishimura, S., and Ito, H.: Annealing kinetics of fission tracks

in zircon: an experimental study, Chem.Geol.(Isot. Geosci. Sect.),122,pp.249-
258.(1995)

矢川元基、宮崎則幸, 有限要素法による熱応力・クリープ・熱伝導解析:(株)サイ
エンス社、pp.302~380. (1991)

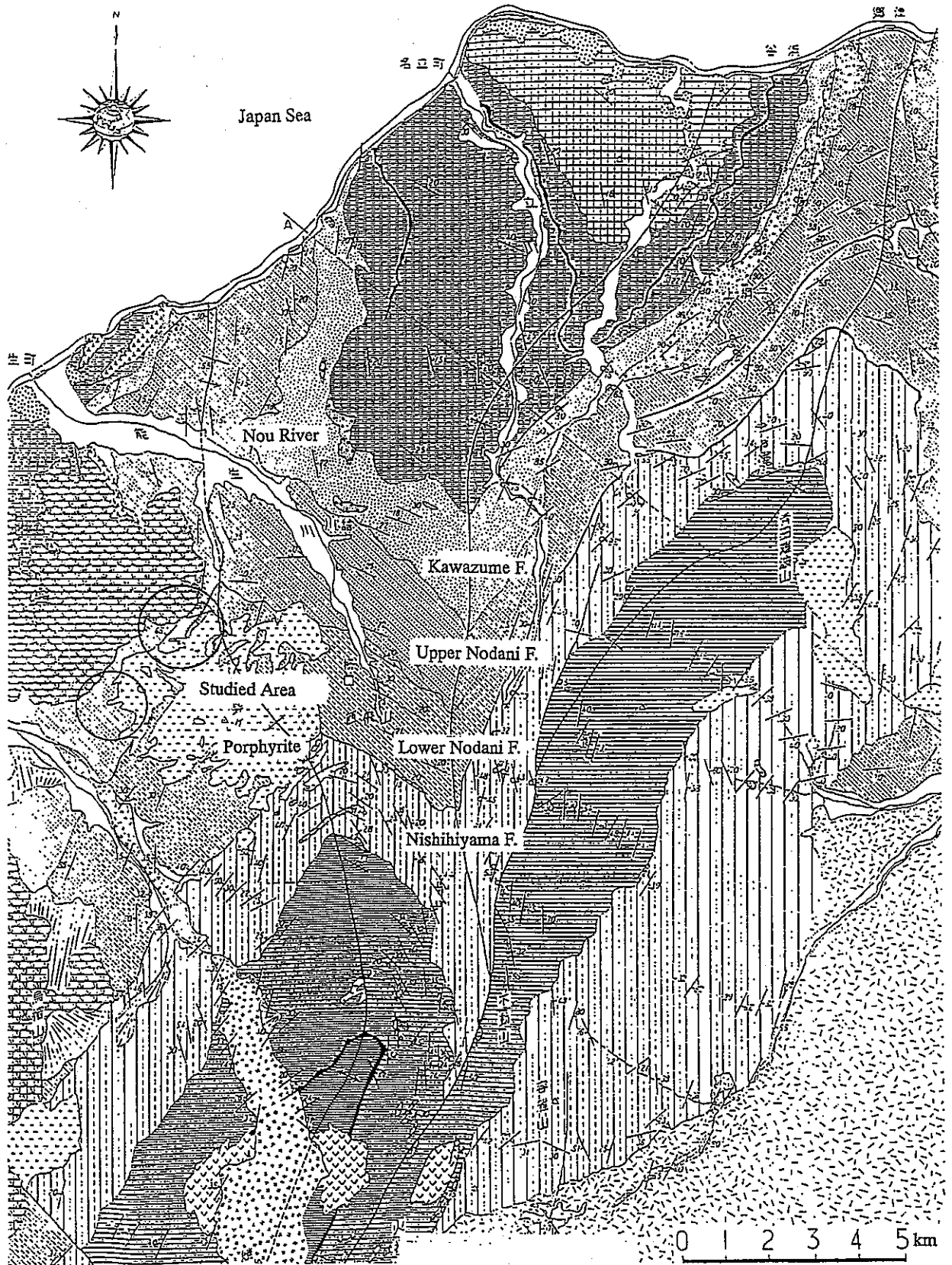


Figure 1 Geological map of Nishikubiki district in central Japan (From Nishida *et al.* 1966)

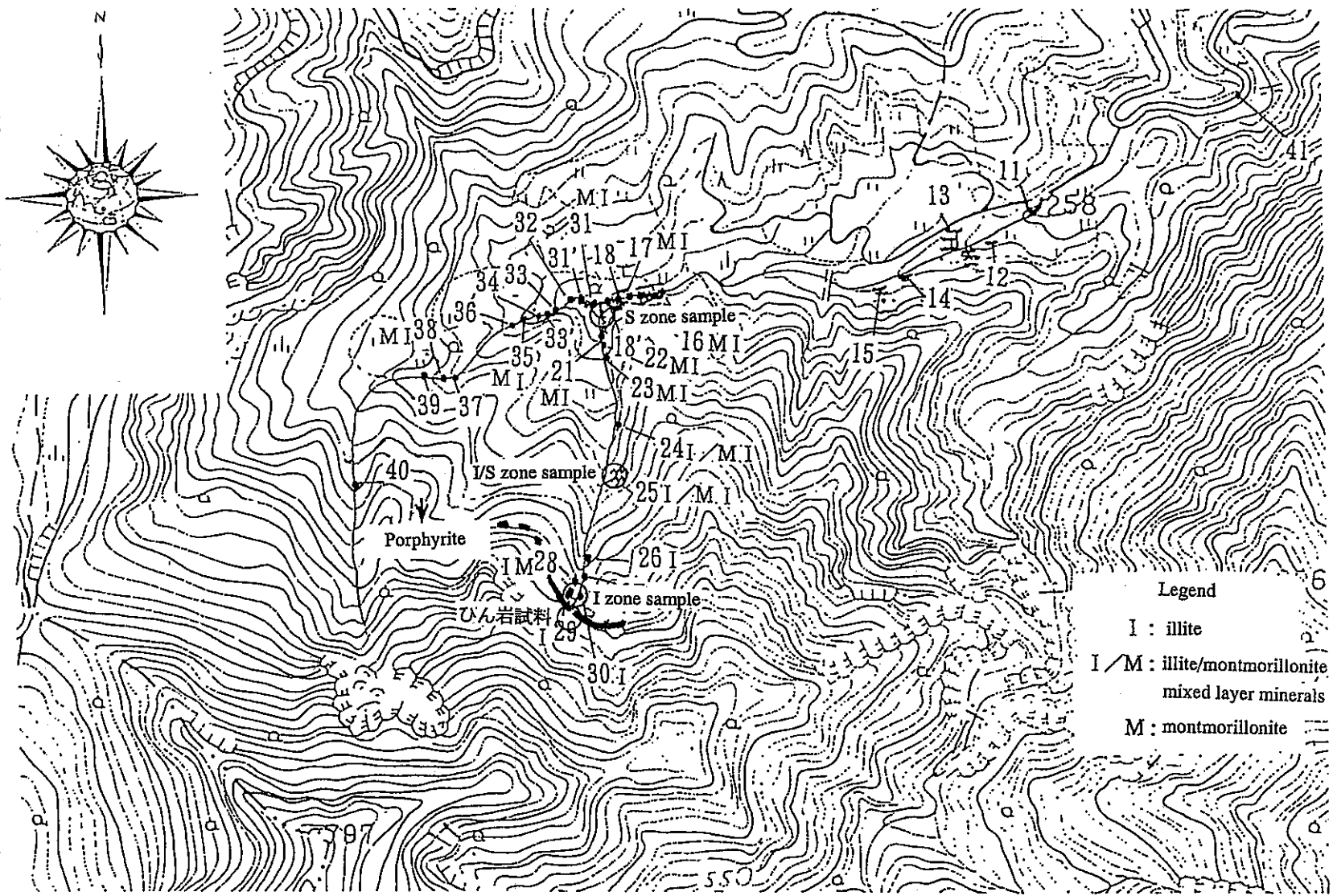


Figure 2 Distribution of illite, illite/montmorillonite mixed layer minerals and montmorillonite in the study area in Figure 1. Sample numbers are also showed.

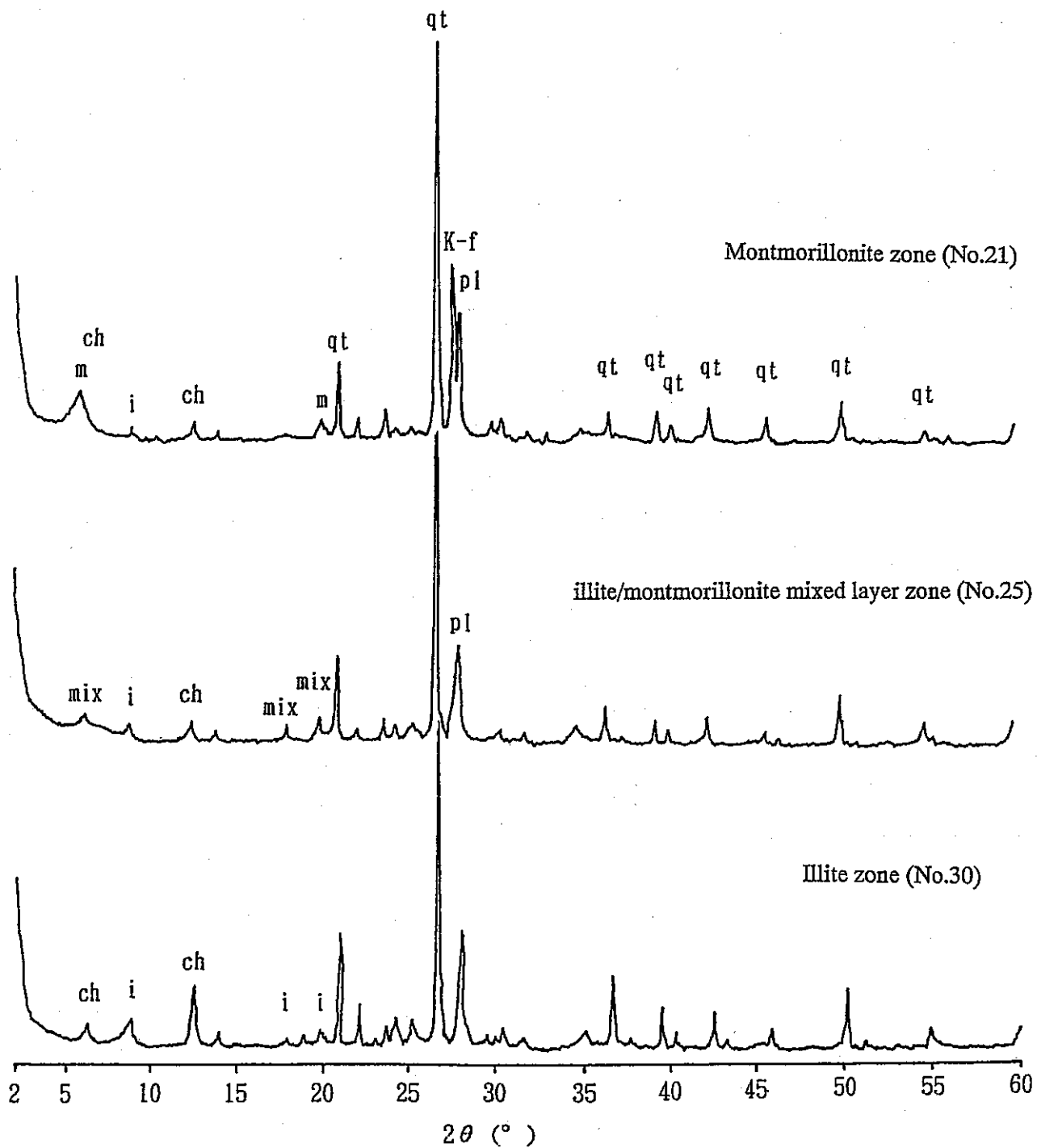


Figure 3 Powder X-ray diffract pattern of each alteration zone.

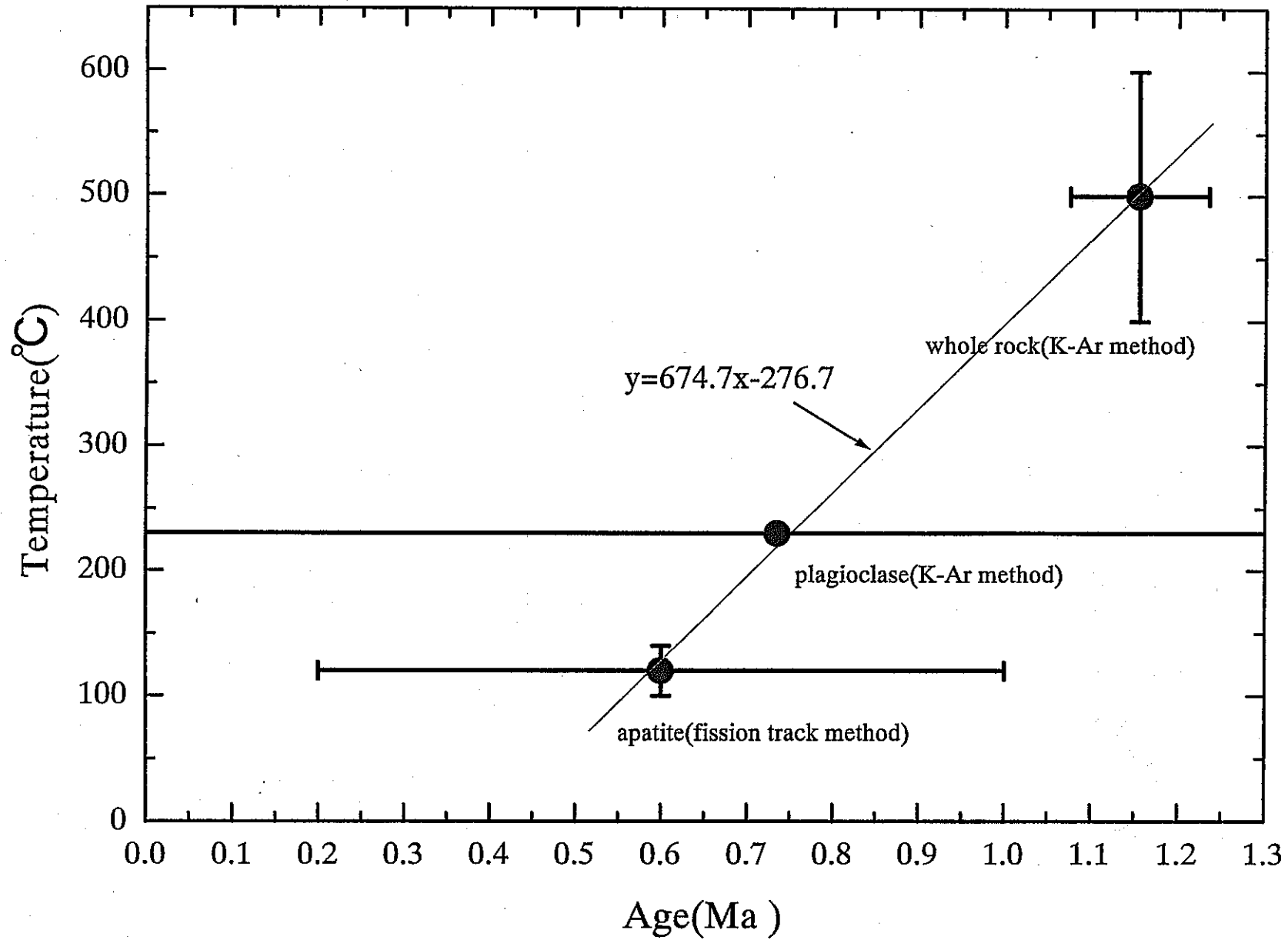


Figure 4 Thermal history of porphyrite.

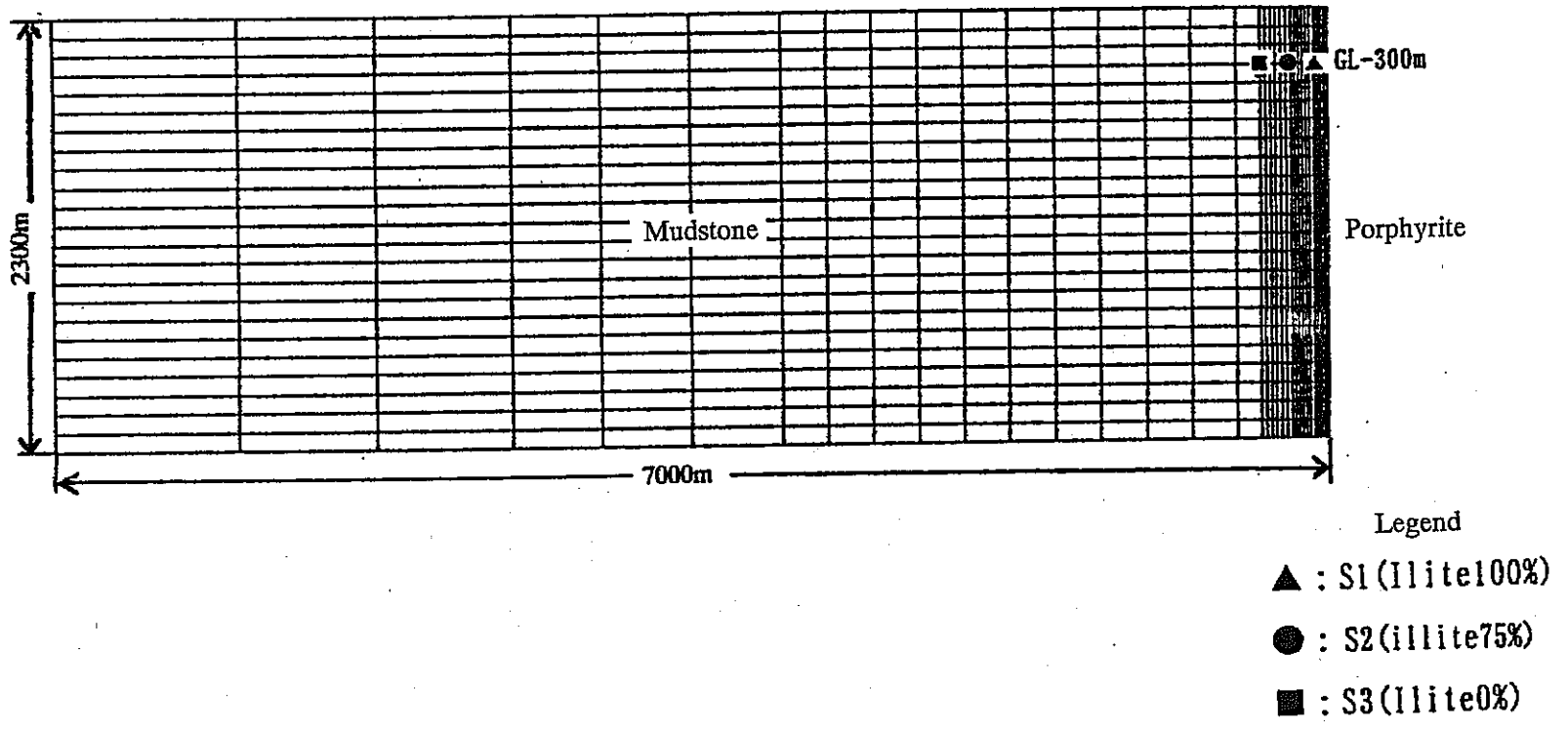


Figure 5 Finite element mesh.

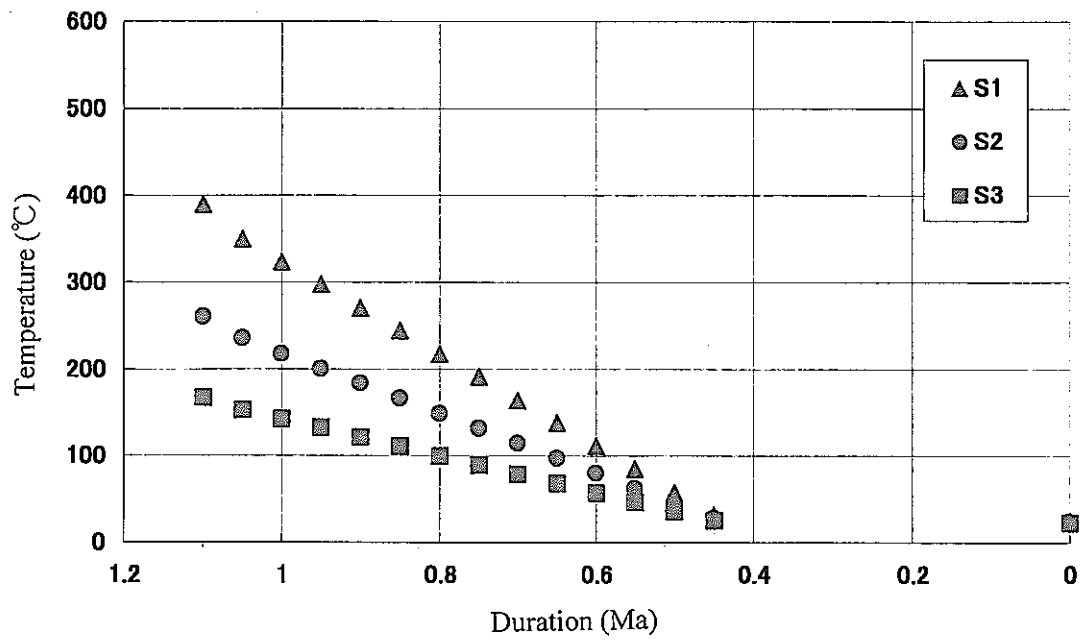


Figure 6 Thermal history of selected points.

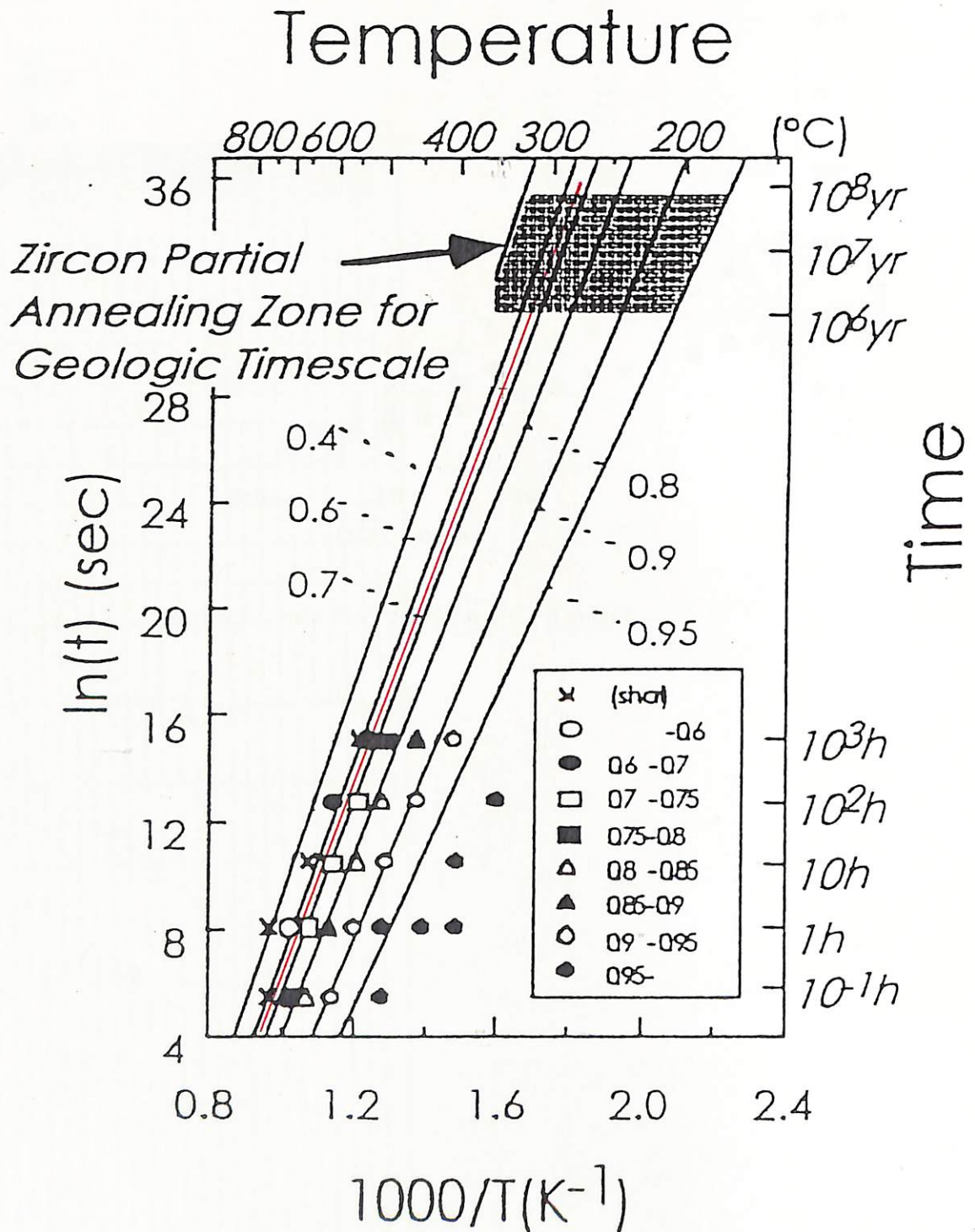


Figure 7 Arrhenius plots with fitting lines extrapolated to geological time condition (after Yamada et al. 1995).

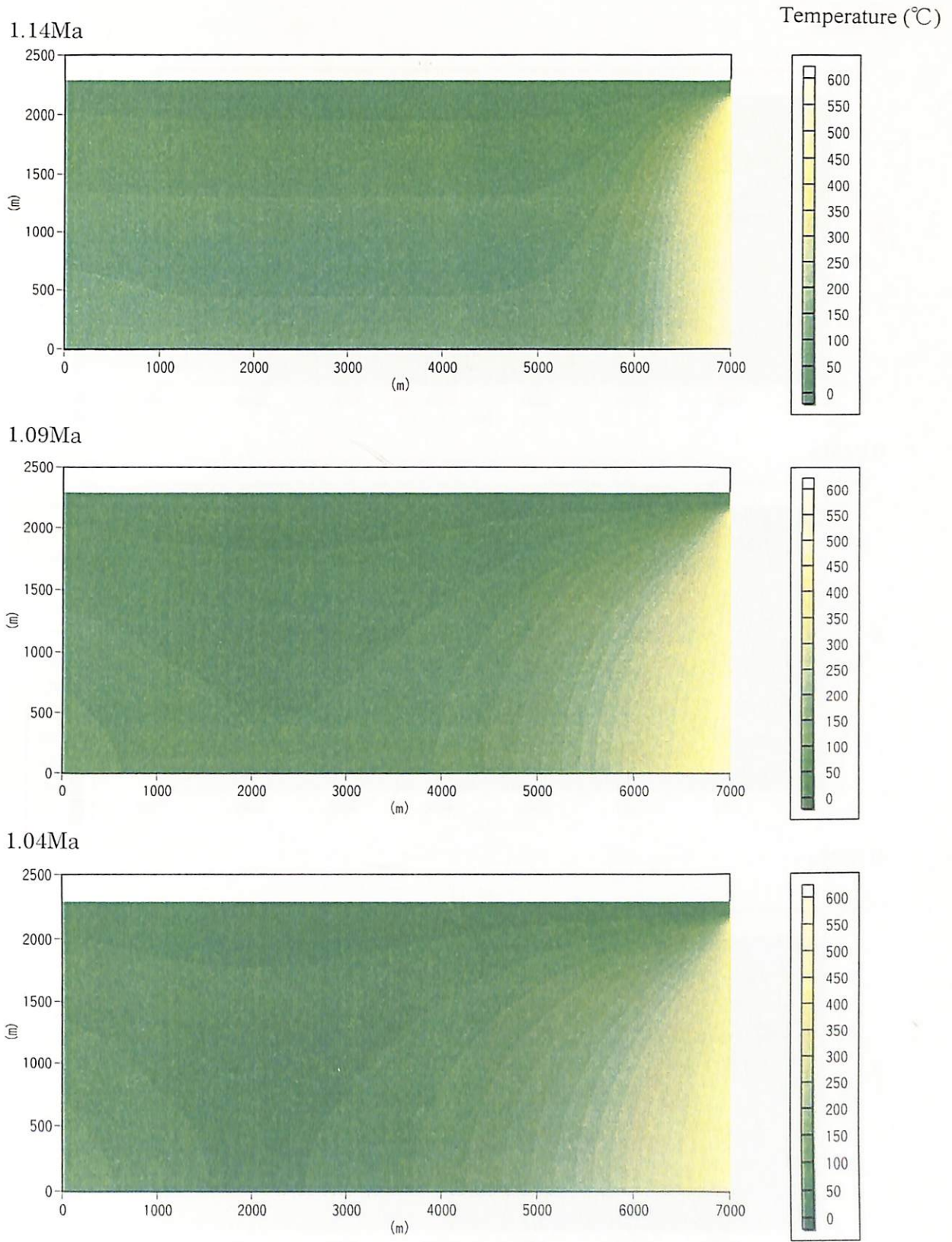


Figure 8 Results of thermal analysis.

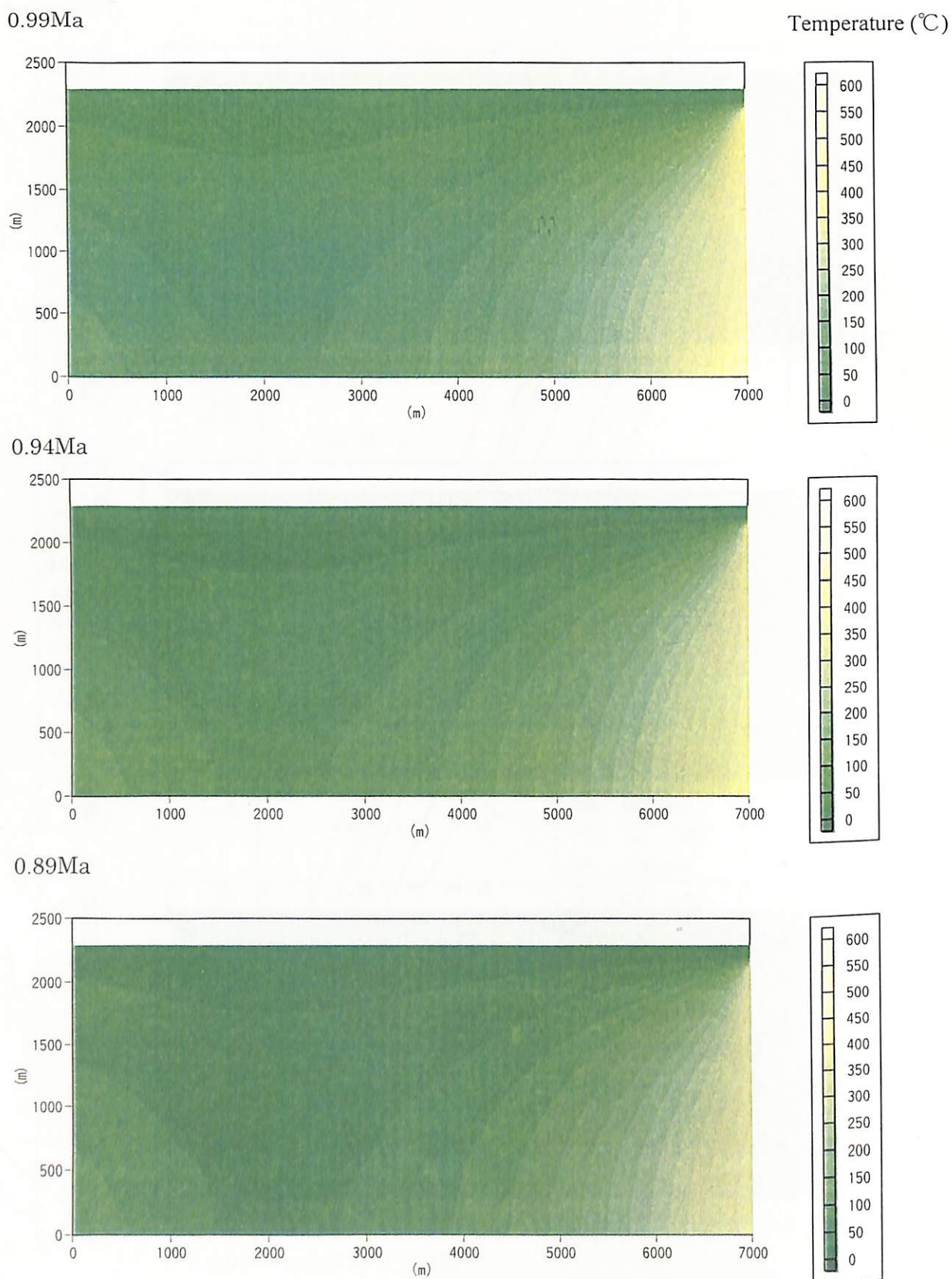


Figure 8 Results of thermal analysis (continued).

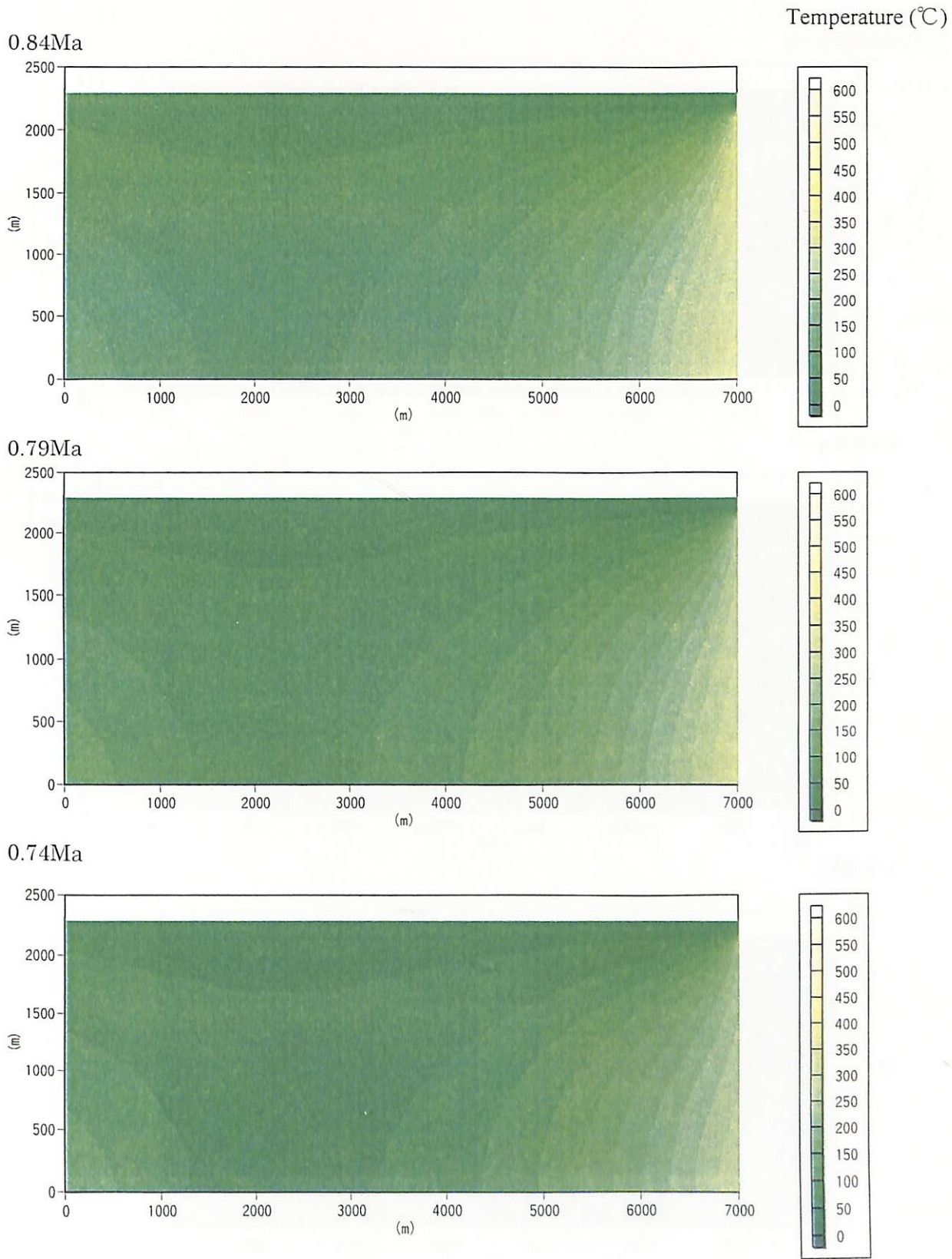


Figure 8 Results of thermal analysis (continued).

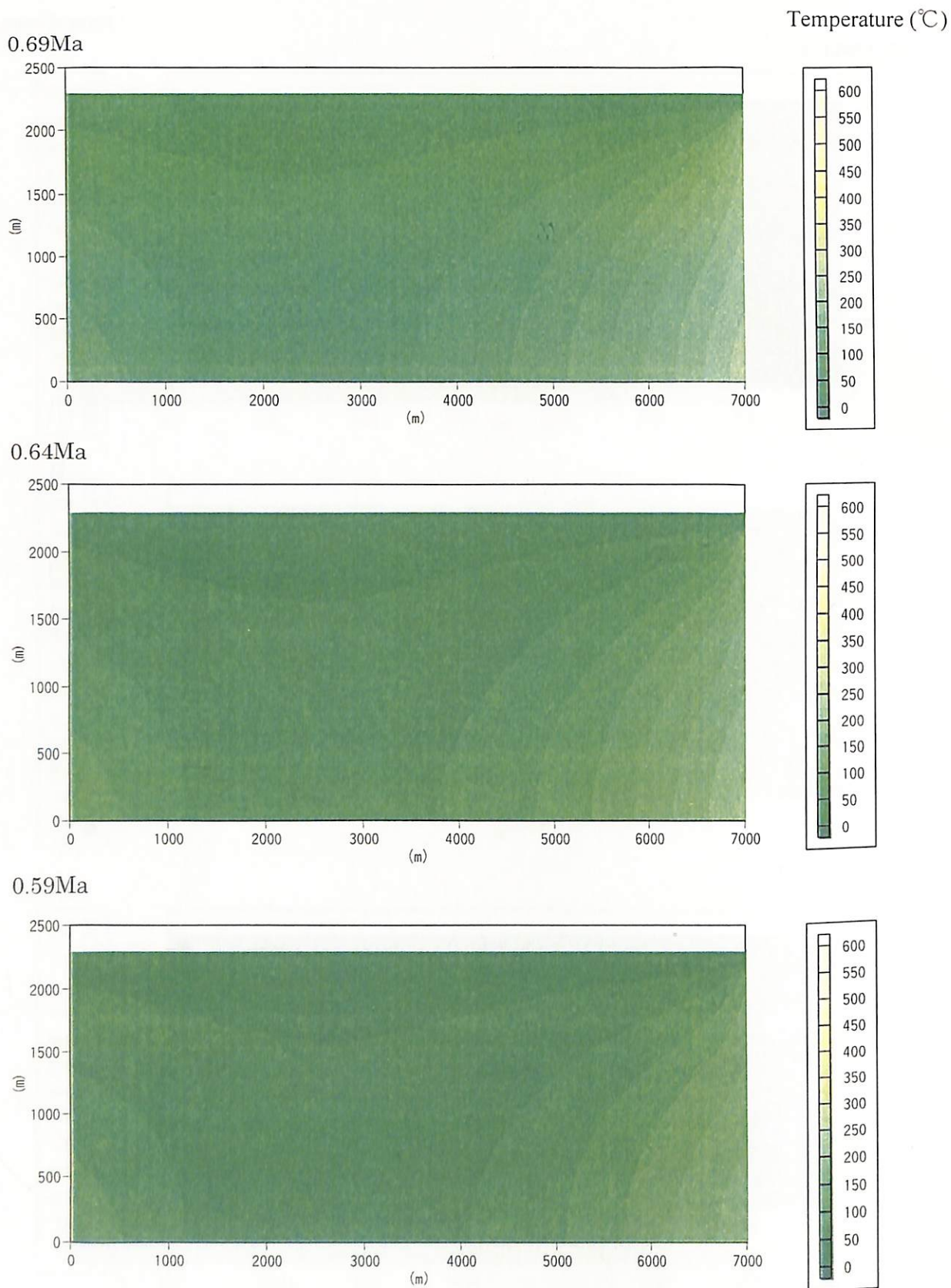
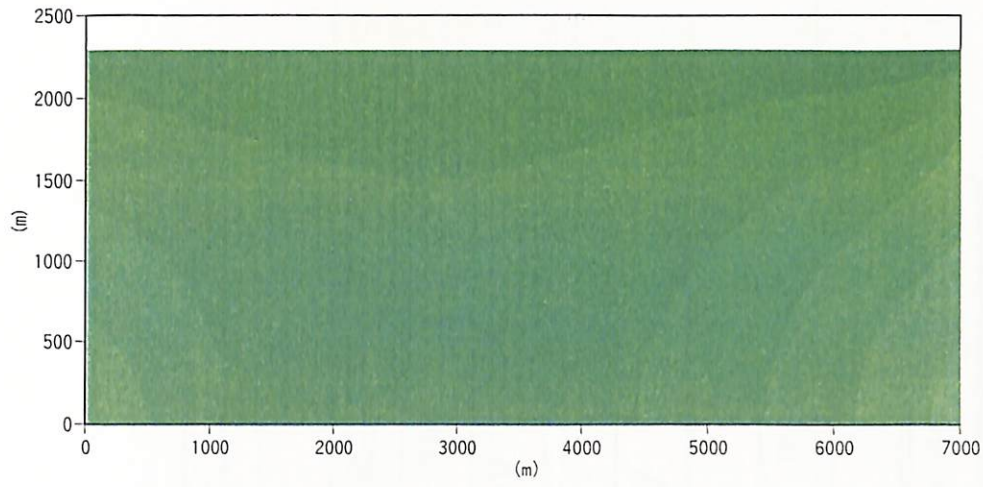


Figure 8 Results of thermal analysis (continued).

0.54Ma



Temperature (°C)

0.00Ma

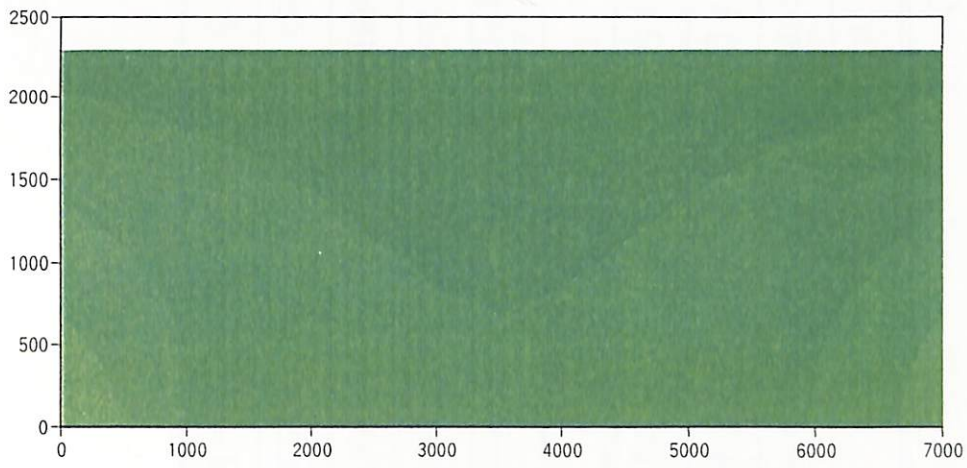


Figure 8 Results of thermal analysis (continued).

Table 1 Conditions of powder X-ray diffraction.

	Bulk sample	Oriented sample
target	Cu	Cu
filter	Ni	Ni
tube current	30 k V	30 k V
tube voltage	10 m A	10 m A
slit	1° -0.3mm-1°	1° -0.3mm-1°
scanning speed	1° /min.	1° /min.
chart speed	10mm/min.	10mm/min.
full scale	2000cps.	1000cps.
time constant	1 sec.	1 sec.
scanning area	$2\theta = 2 \sim 60^\circ$	$2\theta = 2 \sim 20^\circ$

Table 2 Methods for chemical characterisation.

Component	Analytical Method
Cation Exchange Capacity	Semimicro Schollenberger method
Methylene Blue Capacity	Japan Bentonite Manufacturers Association Standard (JBAS-106-77)
Exchangeable cation	Na Flame spectrophotometer(JIS K 0102)
	K Flame spectrophotometer(JIS K 0102)
	Ca Atomic absorption (JIS K 0102)
	Mg Atomic absorption (JIS K 0102)
p H	Japan Bentonite Manufacturers Association Standard (JBAS-105-77)

Table 3 Mineral assemblage of argillaceous rock and porphyrite.

Mineralogy	Mudstone															Porphyrite
	Sample number															
	16	17	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	35	38	
Chlorite	-	-	.	-		-	-	-	-	.	-	
Montmorillonite/ Chlorite mixed mineral									-							
Illite	-	-	-	-	-	.	.	.	
Montmorillonite/ Illite mixed mineral						.	.									
Montmorillonite	-	-	.	-	.					.			-	-	-	
K-feldspar				.	.											
Plagioclase	++	-	+	-	-	-	-	+	+	+	-	+	+	-	-	++
Quartz	++	++	++	++	++	++	++	++	++	++	++	++	++	++	++	++

marks : ++ abundant , + major, - minor, . trace

Table 4 Mineral assemblage of each alteration zone.

alteration zone Mineral name	I zone	I/M zone	M zone
illite			
illite/montmorillonite mixed layer mineral			
montmorillonite			
chlorite	————	————	————
chlorite/montmorillonite mixed layer mineral	———		
K-feldspar			————
plagioclase	————	————	————
quartz	————	————	————

———— ,major —— ,minor

Table 5 Results of fission track dating.

Sample name	mineral name	Spontaneous		Induced		Dosimeter		No. of crystals	r*	U-content (ppm)	Age(Ma)
		Ns	$\rho_s(1/cm^2)$	Ni	$\rho_i(1/cm^2)$	nd	$\rho_d(1/cm^2)$				
Kanaya Tuff	Zircon	268	4.10E+05	1029	1.57E+06	1211	7.87E+04	30	0.549	160	7.6±0.6
Porphyrite	Apatite	3	1.25E+03	60	2.51E+04	1283	8.33E+04	30	0.119	2	0.6±0.4

* r is the correlation coefficient between ρ_s and ρ_i .

Table 6 Results of fission track dating for argillaceous rock.

Sample name	mineral name	Spontaneous		Induced		Dosimeter		No. of crystals	r*	U-content (ppm)	Age(Ma)
		Ns	$\rho s(1/cm^2)$	Ni	$\rho i(1/cm^2)$	rd	$\rho d(1/cm^2)$				
M zone	Apatite	37	2.87E+04	385	2.99E+05	2690	5.60E+05	30	0.243	4	8.2±1.4
I/M zone	Apatite	19	2.78E+04	173	2.53E+05	2691	5.61E+05	30	-0.068	4	9.4±2.3
I zone	Apatite	8	1.08E+04	280	3.77E+05	2691	5.61E+05	30	0.274	5	2.4±0.9

* r is the correlation coefficient between ρs and ρi .

Table 7 Results of K-Ar dating for porphyrite.

Sample	Ar-40 (10E-8 ccSTP/g)	Non Rad Ar(%)	K (%)	Age(Ma)
Whole Rock	8.76 ± 0.59	72.5	1.892 ± 0.038	1.19 ± 0.08
	8.22 ± 0.57	73.9		1.12 ± 0.08
Plagioclase	0.6 ± 0.60	96.1	0.17 ± 0.03	0.94 ± 0.96
	0.34 ± 0.34	97.9		0.53 ± 0.55
Hornblende	Ar-40/Ar-36=293.1		0.21 ± 0.03	—
	Ar-40/Ar-36=294.3			—

Table 8 Mechanical properties of argillaceous rock.

Mechanical Properties	Unit	I zone	I/M zone	M zone
density of soil particles	g/cm ³	2.74	2.711	2.697
water content	%	0.95	6.87	6.99
bulk density	g/cm ³	2.404	2.281	2.231
dry density	g/cm ³	2.381	2.135	2.085
void ratio	—	0.151	0.27	0.294
degree of saturation	%	17.3	68.9	64.6

Table 9 Results of chemical characterisation for argillaceous rock.

Component		I zone	I/M zone	M zone
Cation Exchange Capacity (meq/100g)		4.5	11.6	14.3
Methylene Blue Capacity (meq/100g)		10	21	9
Exchangeable cation (meq/100g)	Na	0.1	0.1	0.1
	K	0.2	0.3	0.2
	Ca	4.1	7.8	12.9
	Mg	0.5	3.2	4.1
p H		9.1	5.6	7.5
Degree of Swelling(ml/2g)		>0.5	0.5	1.5

Table 10 Chemical composition of argillaceous rock.

Sample name	Porphyrite	I zone	I/M zone	M zone
SiO ₂	64.42	56.95	67.76	71.75
TiO ₂	0.41	0.58	0.7	0.49
Al ₂ O ₃	16.15	12.49	16.53	13.14
Fe ₂ O ₃	2.48	0.49	1.58	1.3
MnO	0.12	0.15	0.02	0.03
MgO	1.79	2.1	1.45	1.25
CaO	4.58	8.04	0.79	1.44
Na ₂ O	3.75	2.12	2.29	2.55
K ₂ O	1.62	2.22	2.98	2.87
P ₂ O ₅	0.18	0.77	0.14	0.18
ignision loss	1.35	7.53	4.07	3.09
total	99.16	98.94	100.3	100.01
H ₂ O(-)	0.55	0.67	5.9	6.18

Table 11 Thermal conductivity data of argillaceous rock and porphyrite.

Sample (No.)	(k J/m · h · °C)					(×10E-3 J/cm · s · °C)			
	1	2	3	4	5	average	error	average	error
M zone	0.365	0.391	0.377	0.383	0.361	0.375	0.006	1.042	0.016
I / M zone	0.346	0.331	0.316	0.346	0.333	0.334	0.006	0.929	0.016
I zone	0.490	0.519	0.535	0.470	0.551	0.513	0.015	1.425	0.041
porphyrite	0.462	0.458	0.458	0.452	0.458	0.458	0.001	1.272	0.004

Table 12 Specific heat data of argillaceous rock and porphyrite.

Temperature (°C)	Specific heat (J/g · °C)								
	M zone(sample No.21)		I/M zone(sample No.25)		I zone(sample No.30)		porphyrite		
	water content		water content		water content		water content		
	natural	dry	natural	dry	natural	dry	natural	dry	
20		0.041			0.042		0.042		0.041
40	0.058	0.043	0.056	0.045	0.056	0.044	0.047	0.043	
60	0.070	0.045	0.066	0.048	0.065	0.047	0.055	0.045	
80	0.082	0.048	0.068	0.051	0.069	0.049	0.062	0.048	
100	0.194	0.050	0.152	0.053	0.094	0.050	0.068	0.049	
120	0.175	0.052	0.162	0.056	0.101	0.052	0.073	0.051	
140	0.114	0.054	0.115	0.058	0.096	0.054	0.075	0.053	
160	0.090	0.056	0.092	0.060	0.096	0.055	0.076	0.054	
180	0.075	0.057	0.077	0.062	0.091	0.057	0.075	0.055	
200	0.073	0.059	0.069	0.064	0.086	0.058	0.073	0.057	
220	0.072	0.060	0.068	0.065	0.082	0.059	0.070	0.058	
240	0.061	0.061	0.066	0.067	0.076	0.060	0.068	0.059	
260	0.059	0.062	0.063	0.068	0.072	0.061	0.065	0.059	
280	0.059	0.063	0.062	0.069	0.068	0.061	0.063	0.060	
300	0.060	0.063	0.062	0.070	0.065	0.062	0.062	0.061	
ignision loss	9.07%		7.34%		5.68%		3.07%		

Table 13 Calcareous nanno fossils extracted from the argillaceous rock sample (No.18).

Species	number
<i>Coccolithus pelagicus</i> (Wallich) Schiller	91
<i>Helicosphaera kamptneri</i> Hay & Mohler	1
<i>Helicosphaera</i> spp.	2
<i>Reticulofenestra minuta</i> Roth	1
<i>Reticulofenestra minutula</i> (Gartner) Haq & Berggren	6
Unknown	2
total	103

Table 14 Diatom fossils extracted from the argillaceous rock sample (No.18).

Species	Environment			number
	H.R.	p H	C.R.	
<i>Achnanthes japonica</i> H.Kobayashi	Ogh-ind	al- il	r-bi	2
<i>Achnanthes lanceolata</i> (Breb.) Grunow	Ogh-ind	ind	r-ph	1
<i>Cocconeis placentula</i> (Her.) Cleve	Ogh-ind	al- il	ind	1
<i>Cymbella sinuata</i> Gregory	Ogh-ind	al- il	r-ph	1
<i>Navicula viridula</i> (Kuetz.) Kuetzing	Ogh-ind	al- il	r-ph	1
<i>Rhoicosphenia abbreviata</i> (Ag.) Lange-Beralot	Ogh-hil	al- il	l-ph	3
Marine				0
Marine-Blakish				0
Blakish				0
Freshwater				9
total				9

H.R. : adaptibility to salinity

Ogh-ind : Oligohalobonous-Indifferent

Ogh-hil : Oligohalobonous-Halophilous

p H : adaptability of p H

al-il : Alkariphilous

ind : p H indifferent

C.R. : adaptability of current rate

r-bi : Rheobiontic

r-ph: Rheophilous

ind : Indifferent

Table 15 Foraminifer fossils extracted from the argillaceous rock sample (No.18).

Species		number
planktonic	<i>Globigerina quinqueloba</i> Natland	1
	<i>Globigerina</i> spp.	2
	<i>Globigerinita glutinata</i> (Egger)	1
benthic	<i>Bolivina robusta</i> Brady	4
	<i>Trifarina kokozuraensis</i> (Asano)	1
	<i>Epistominella pulchella</i> Husezima & Maruhashi	6
total		15

abundance : very rare

preservation : common-bad

Table 16 Thermal properties of argillaceous rock and porphyrite.

	thermal conductivity(k J/m · y · °C)	specific heat(k J/kg · °C)	bulk density(kg/m ³)
porphyrite	4010.0	0.060	2600*
mudstone	3285.9	0.060	2200

*:assumed

Table 17 Time-temperature conditions for the illitization.

No.30 (Illite 100%)			No.25 (Illite 75%)			No.21 (Illite 0%)		
Temperature at 1.14 Ma. (°C)	Cooling rate (°C/Ma)	Duration from 386 to 15°C (Ma)	Temperature at 1.14 Ma. (°C)	Cooling rate (°C/Ma)	Duration from 270 to 15°C (Ma)	Temperature at 1.14 Ma. (°C)	Cooling rate (°C/Ma)	Duration from 170 to 15°C (Ma)
400	545	0.71	270	339	0.75	180	236	0.700