課題番号　２０１６Ｂ―Ｆ０１

フィリピン国パラワン島の高アルカリ環境のナチュラルアナログにおける C-14 年代の評価

14C dating to the hyperalkaline natural analogue in central Palawan, Philippines.

藤井　直樹[1)]　　山川　稔[1)]　　國分（齋藤）陽子[2)]

Naoki FUJII　　Minoru YAMAKAWA　　Yoko SAITO-KOKUBU

[1)] 原子力環境整備促進・資金管理センター　　[2)] 日本原子力研究開発機構

（概要）ペレトロン年代測定装置による炭素同位体比の測定によって、フィリピン国パラワン島のナチュラルアナログサイトの高アルカリ環境において生成した炭酸塩鉱物や炭酸塩中やスメクタイトがみられる砕屑性堆積物中の貝殻、木片、腐葉土の C-14 年代を評価した。トレンチの底部付近で採取した試料（フミン酸・ヒューミン）が最も古い年代を示していることから、砕屑性堆積物に取り込まれた木片が、長い時間での十分な腐植作用のもと熟成し、土壌化した過程を示すものと考えられる。各トレンチの木片の C-14 年代の比較から、トレンチ３(4669±48 年)、トレンチ４(3681±48 年)、トレンチ５（2443±46 年）の順で古いということが言え、オフィオライトの浸食・運搬・堆積過程が、これらの期間にわたり、断続的に生じていたと考えられる。トレンチ５のアルカリ地下水により方解石の沈殿によって形成した炭酸塩鉱物の C-14 年代は 1965±46 年であった。このことから、高アルカリ地下水が少なくとも 2000 年程度は砕屑性堆積物に浸出し、その期間アルカリとの相互作用が続いていることが明らかになった。

キーワード：C-14 年代，ナチュラルアナログ，高アルカリ環境，砕屑性堆積物，反応時間

（1 行あける）

１．目的

ＴＲＵ廃棄物の地層処分においては、廃棄体や人工バリアシステムに大量のセメント系材料の使用が見込まれており、それよって生じる高アルカリ浸出水との相互作用によるベントナイト（特にその主要粘土鉱物であるスメクタイト）の変質プロセスを把握し、緩衝材として長期間機能を維持できるかを評価することは重要な課題である。フィリピン国のパラワン島は、オフィオライトの超塩基性岩と天水との反応（蛇紋岩化作用）により生成された高アルカリ地下水がスメクタイトを含有する砕屑性堆積物に浸出しており、ナチュラルアナログのアプローチにより、アルカリ環境下のスメクタイトの変質プロセスとその時間スケールを直接観察することが可能なサイトである。

本研究では、当ナチュラルアナログサイトのアルカリ環境において生成した炭酸塩鉱物や炭酸塩中やスメクタイトがみられる砕屑性堆積物中の貝殻、木片、腐葉土を対象にペレトロン年代測定装置による炭素同位体比の測定を行い、その C-14 年代を評価し、スメクタイトの変質に関わる反応時間を推測することを目的とする。

２．方法

pH11 を超える高アルカリ地下水がスメクタイトを含む砕屑性堆積物に浸出しているパラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログサイトにおいて３か所（トレンチ３～トレンチ５）でトレンチ調査を実施し、各トレンチの壁面から炭酸塩鉱物・微化石、貝殻（炭酸塩層）、木片（炭酸塩層及び砕屑性堆積物）、腐葉土（砕屑性堆積物）等計 10 試料を採取した。これらの試料を東濃地科学センター土岐地球年代学研究所において前処理を行い、グラファイト化した後、ペレトロン年代測定装置によって炭素同位体比の測定[1]を行い、各試料の C-14 年代を評価する。

３．結果及び考察

放射性炭素年代測定用の試料として、木片を砕屑性堆積物中から 3 試料（トレンチ３～５：

PWT03-16-Rh-016, PWT04-16-Rh-007, PWT05-16-Rh-005）及び炭酸塩中から 1 試料（トレンチ５：PWT05-16-Rh-007B)、カワニナの貝殻を砕屑性堆積物中から１試料（トレンチ３：PWT03-16-Rh-015）及び炭酸塩中から２試料（トレンチ４及び５：PWT04-16-Rh-008, PWT05-16-Rh-006)、腐葉土を砕屑性堆積物中から２試料（トレンチ３及び５：PWT03-16-Rh-017, PWT05-16-Rh-014)、炭酸塩そのものを１試料（トレンチ５：PWT05-16-Rh-007）採取した。　図-1～図-3 に各トレンチの試料採取位置とペレトロン年代測定装置による炭素同位体比の測定結果（表-1）から得られた放射性炭素年代を示す。

トレンチの底部付近で採取した試料（フミン酸・ヒューミン）が、最も古い年代を示していることがわかる。これは、砕屑性堆積物に取り込まれた木片が、長い時間での十分な腐植作用のもと熟成し、土壌化した過程を示すものと考えられる。この土壌化過程は、化学的・物理学的・水理学的・生物学的な現象の総体を意味するものである。したがって、これらの放射性炭素年代値から、各トレンチにおいて木片の堆積層準（埋没深度）と時間との対応が整合的である。つまり、下位の木片は上位のものと比べて年代が古いということが言える。各トレンチの木片の C-14 年代を比較すると、トレンチ３（4669±48 年：PWT03-16-Rh-016)、

図-1　パラワン島 Narra 地区トレンチ３の試料採取位置と放射性炭素年代

図-2　パラワン島 Narra 地区トレンチ４の試料採取位置と放射性炭素年代

図-3　パラワン島 Narra 地区トレンチ５の試料採取位置と放射性炭素年代

表-1　パラワン島 Narra 地区トレンチ３～５の各試料の放射性炭素年代測定結果

受付番号　700　　測定結果　Results

測定日　平成29年　1月　6日　　JAEA-AMS-TONO

No	ユーザー試料ID User's sample ID	施設試料ID Lab's sample ID	試料種† Type†	$\delta^{13}C$ value (‰)	pMC††	不確かさ††† UNC†††	^{14}C age (BP)††††	不確かさ††† UNC†††
1	–	OXII	OXII	−18.42	134.07	± 0.60	–	± –
2	–	OXII_12573_1	OXII	−18.21	132.01	± 0.70	–	± –
3	–	OXII_12573_2	OXII	−18.21	133.77	± 0.70	–	± –
4	–	OXII_12574_1	OXII	−18.63	137.20	± 0.73	–	± –
5	–	OXII_12574_2	OXII	−18.63	133.33	± 0.70	–	± –
6	–	C1	C1	2.42	1.32	± 0.02	–	± –
7	–	C1_12576_1	C1	2.42	1.32	± 0.05	–	± –
8	–	C1_12576_2	C1	2.42	1.33	± 0.03	–	± –
9	–	C2_12311_1	C2	−8.22	41.45	± 0.27	–	± –
10	–	C2_12311_2	C2	−8.22	41.48	± 0.26	–	± –
11	–	C5_12578_1	C5	−25.19	22.80	± 0.18	–	± –
12	–	C5_12578_2	C5	−25.19	22.84	± 0.17	–	± –
13	PWT03-16-Rh-015	UNK_12426_1	UNK	−15.33	52.32	± 0.40	5203	± 62
14	PWT03-16-Rh-016	UNK_12427_1	UNK	−24.86	55.92	± 0.34	1669	± 48
15	PWT03-16-Rh-017フミン酸	UNK_12428_1	UNK	−15.89	29.02	± 0.21	9939	± 58
16	PWT03-16-Rh-017ヒューミン	UNK_12429_1	UNK	−17.02	29.82	± 0.21	9721	± 57
17	PWT04-16-Rh-007	UNK_12430_1	UNK	−24.50	63.24	± 0.37	3681	± 48
18	PWT04-16-Rh-008	UNK_12431_1	UNK	−15.45	62.89	± 0.37	3725	± 48
19	PWT05-16-Rh-005	UNK_12432_1	UNK	−25.07	73.78	± 0.42	2443	± 46
20	PWT05-16-Rh-006	UNK_12433_1	UNK	−15.76	74.17	± 0.42	2401	± 46
21	PWT05-16-Rh-007	UNK_12434_1	UNK	−17.41	78.30	± 0.44	1965	± 46
22	PWT05-16-Rh-007B	UNK_12435_1	UNK	−34.09	86.02	± 0.49	1209	± 46
23	PWT05-16-Rh-014フミン酸	UNK_12436_1	UNK	−16.41	30.32	± 0.21	9587	± 56
24	PWT05-16-Rh-014ヒューミン	UNK_12437_1	UNK	−17.20	30.09	± 0.21	9647	± 56

† 試料種Type. UNK: Unknown（未知試料）

†† pMC: percent Modern Carbon

††† 不確かさ: 1σ標準偏差. UNC(Uncertainty): 1σ standard deviation.

†††† ^{14}C ageは丸められておりません。この丸めを行う場合，通常，放射性炭素年代の記載に関する慣例より，不確かさが±50年より大きい場合は10年、それ以下の場合は5年で丸められます。

トレンチ４（3681±48 年：PWT04-16-Rh-007）、トレンチ５（2443±46 年：PWT05-16-Rh- 005）の順で古いということが言える。このことから、オフィオライトの浸食・運搬・堆積過程が、これらの期間にわたり断続的に生じていたと考えられる。

貝殻については、亜熱帯～熱帯の淡水～汽水産に広く分布するカワニナの貝殻であり、砕屑性堆積物から採取したトレンチ３の貝殻（PWT03-16-Rh-015）は 5203±62 年、であった。基盤岩との境界付近の炭酸塩中から採取したトレンチ４の貝殻（PWT04-16-Rh-008）は 3725±48 年、トレンチ５の貝殻（PWT05-16-Rh-006）は 2401±46 年であった。ただし、トレンチ４及び５の炭酸塩中の貝殻の年代は砕屑性堆積物中のそれぞれの木片の年代と大差は見られなかった。また、腐葉土については、トレンチ３（9939±58 年:PWT03-16-Rh-017 フミン酸）、トレンチ５（9587±56 年：PWT05-16-Rh-014 フミン酸）であり、超塩基性岩を起源とする砕屑物が堆積してから約１万年程度は経過しているものと推測される。

炭酸塩については、アルカリ地下水により方解石の沈殿によって形成したものが主と考えられるため、アルカリ地下水との接触期間という意味では、もっとも直結する年代と考えられる。炭酸塩鉱物(PWT05-16-Rh-007)の C-14 年代は 1965±46 年であった。このことから、高アルカリ地下水が少なくとも 2000 年程度は砕屑性堆積物に浸出し、その期間アルカリとの相互作用が続いていると考えられる。また、木片(PWT05-16-Rh-007B)の C-14 年代は 1209±46 年であった。これは、不純物を含みながら 2 次的に炭酸塩で固結した年代を示していると考えられ、アルカリ地下水が連続して流出している間にさらに古い時代に生成した炭酸塩や不純物を固結しながら堆積したものと考えられる。

本ナチュラルアナログでは、アルカリ地下水との反応時間の観点から、炭酸塩の生成年代である炭酸塩鉱物(PWT05-16-Rh-007)の C-14 年代測定法によるとして 1965±46 年、というのが直接評価された最も需要な年代データである。ただし、蛇紋岩化作用による高アルカリ地下水の生成環境を考えると、さらに古い時代からアルカリ地下水が浸出していたと考えることもでき、さらに炭酸塩試料を中心に幅広く年代測定を実施して、反応した時間スケールを評価することが残された課題である。

なお、本研究は経済産業省資源エネルギー省からの委託研究である平成 28 年度地層処分技術調査等事業「TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発」のうちナチュラルアナログ調査の一部として実施したものである。

４．引用(参照)文献等

[1] Saito-Kokubu, Y., Matsubara, A., Miyake, M., Nishizawa, A., Ohwaki, Y., Nishio, T., Sanada, K. and Hanaki, T.: Progress on multi-nuclide AMS of JAEA-AMS-TONO, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 361, 48-53 (2015).