

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 2

¹⁴C dating to the hyperalkaline natural analogue in central Palawan, Philippines (2).

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で掘削したトレンチ (トレンチ 6~7) から採取した、高アルカリ環境で生成した炭酸塩鉱物、炭酸塩中やスメクタイトがみられる碎屑性堆積物中の木片、土壌 (ヒューミン) の放射性炭素年代 (C-14 年代) を評価した。炭酸塩については、最も古い年代を示したトレンチ 7 炭酸塩の C-14 年代 ($2,771 \pm 73$ 年) から、アルカリ地下水が少なくとも 2,800 年程度前からこのサイトに流出し、碎屑性堆積物にも浸出していたと考えられる。一方、木片については、断続的に生じていたと考えられるオフィオライトの浸食・運搬・埋没過程において、埋没した木片の位置が移動していた可能性があり、必ずしも木片の年代はそれが埋没していた堆積物の堆積年代と一致するとは限らないことを示している。トレンチの底部付近で採取した土壌試料については、最も古い年代を示しており、トレンチ 6 ($4,008 \pm 73$ 年)、トレンチ 7 ($4,516 \pm 74$ 年) という結果から、今年度掘削したトレンチの碎屑性堆積物の堆積年代が 4,000~4,500 年程度と推察される。また、この堆積年代の異なる碎屑性堆積物中の XRD パターンの比較から、トレンチ 2 (14C 年代: 2413 ± 82 年) のスメクタイトは、そのピークがトレンチ 7 やトレンチ 3 (9721 ± 57 年) よりもやや弱く、まだ過渡期のスメクタイト化を示しているものと考えられ、アルカリによる溶解を伴う変質反応により生じた沈殿は速やかにスメクタイト質になるが、より Si-rich な結晶質のスメクタイトに成長・進展する反応は、アルカリとの相互作用が始まって 2,400 年~4,500 年程度の長期の反応であることがいえる。

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, スメクタイト化, 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、それに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碎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、炭酸塩中やスメクタイトがみられる碎屑性堆積物中の木片、土壌 (ヒューミン) 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、その放射性炭素年代 (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超塩基性岩を源岩としスメクタイトを含む碎屑性堆積物に浸出しているパラワン島中部の Narra 地区のナチュラルアナログサイトの 2 か所 (トレンチ 6~トレンチ 7) 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、木片 (炭酸塩層及び碎屑性

堆積物中)、土壌(碎屑性堆積物及び降下火山灰堆積物)等計12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年代を評価した。

3. 結果及び考察

放射性炭素年代測定用の試料として、碎屑性堆積物直上の炭酸塩を3試料(トレンチ6:PWT06-17-Rh-C01及びPWT06-17-Rh-C02、トレンチ7:PWT07-17-Rh-C01)、木片を炭酸塩中から1試料(トレンチ6:PWT06-17-Rh-C03)、礫混合炭酸塩中から1試料(PWT07-17-Rh-C06)、碎屑性堆積物中から2試料(トレンチ6:PWT06-17-Rh-C04及びPWT06-17-Rh-C05)、トレンチ6の底部の土壌を1試料(碎屑性堆積物:PWT06-17-Rh-C06)、トレンチ7の底部の土壌を4試料(降下火山灰堆積物:PWT07-17-Rh-C02及びPWT07-17-Rh-C03、碎屑性堆積物(降下火山灰堆積物の下位):PWT07-17-Rh-C05、碎屑性堆積物(降下火山灰堆積物の上位):PWT07-17-Rh-C04)採取した。図-1~図-2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から得られたC-14年代を示す。

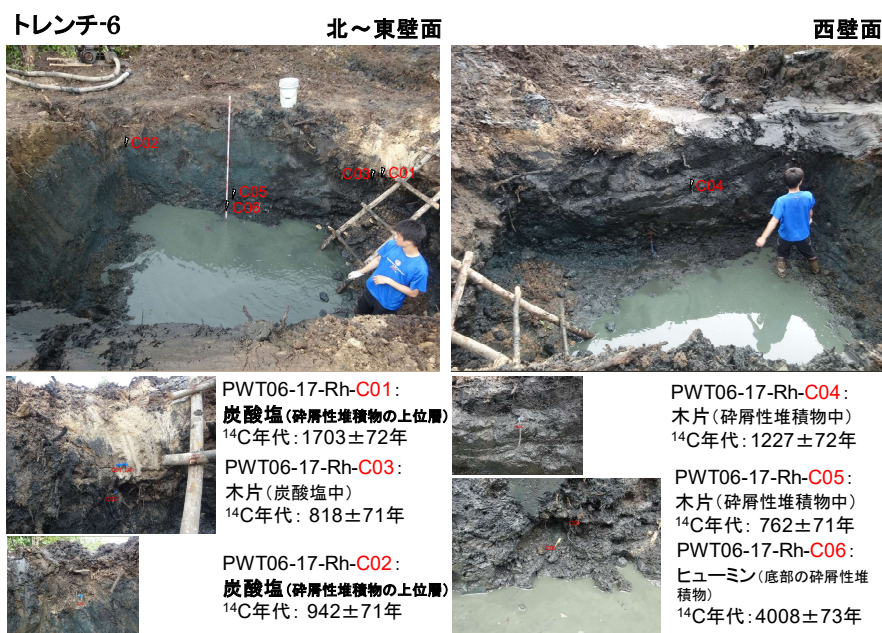


図-1 パラワン島 Narra 地区トレンチ6の試料採取位置と放射性炭素年代



図-2 パラワン島 Narra 地区トレンチ7の試料採取位置と放射性炭素年代

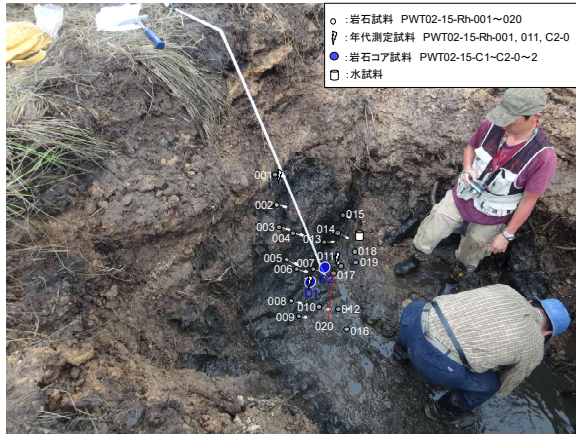
各種試料のC-14年代測定結果から、トレンチの底部付近で採取した土壌試料（ヒューミン）が、最も古い年代を示しており、平成28年度^[2]のトレンチ（トレンチ3～5）と同様の結果を示した。土壌（碎屑性堆積物）中のヒューミンは土壌腐食物質のうちアルカリ、酸ともに不溶性の有機物であり、そのC-14年代が堆積年代を示すと考えられる。トレンチ6（4,008±73年：PWT06-17-Rh-C06 ヒューミン）、トレンチ7（4,516±74年：PWT07-17-Rh-C05 ヒューミン）という結果から、今年度掘削したトレンチの碎屑性堆積物の堆積年代が4,000～4,500年程度と推察される。昨年度のトレンチでは、トレンチ3（9,721±57年：PWT03-16-Rh-017 ヒューミン）、トレンチ5（9,647±56年：PWT05-16-Rh-014 ヒューミン）であったことを踏まえると、扇状地様であるNarraサイトにおいて走行方向での碎屑性堆積物の堆積年代の差はほとんどないが、傾斜方向では下部層（東南）方向の堆積年代の方が5,000年程度若いことがわかる。一方、降下火山灰堆積物（PWT07-17-Rh-C02及びPWT07-17-Rh-C03）は炭素濃度が0.1%未満であり、炭素同位体比の測定が可能な炭素量が確保できなかったため、C-14年代も直接評価できなかったが、下位の碎屑性堆積物（4,516±74年：PWT07-17-Rh-C05）と上位の碎屑性堆積物（3,445±73年：PWT07-17-Rh-C04）とに挟在されている堆積関係から、3,500～4,500年前にパラワン島外の大規模な火山噴火に伴い、沿岸域の海底等で堆積したものと推測することができる。

木片のC-14年代は、トレンチ6の炭酸塩中の木片（818±71年：PWT06-17-Rh-C03）、碎屑性堆積物中の木片（1,227±72年：PWT06-17-Rh-C04、762±71年：PWT06-17-Rh-C05）トレンチ7の礫混合炭酸塩中の木片（698±72年：PWT07-17-Rh-C06）であった。炭酸塩中の木片が碎屑性堆積物中の木片よりも年代が若いのは、調査サイトの堆積過程から整合的である。ただし、PWT06-17-Rh-C05は土壌の年代測定をしたPWT06-17-Rh-C06の近傍であり、これが埋没していた碎屑性堆積物の堆積年代よりもかなり若い年代が評価された。このことから、木片については、断続的に生じていたと考えられるオフィオライトの浸食・運搬・埋没過程において、埋没した木片の位置が移動していた可能性があり、必ずしも木片の年代はそれが埋没していた堆積物の堆積年代と一致するとは限らないことを示している。

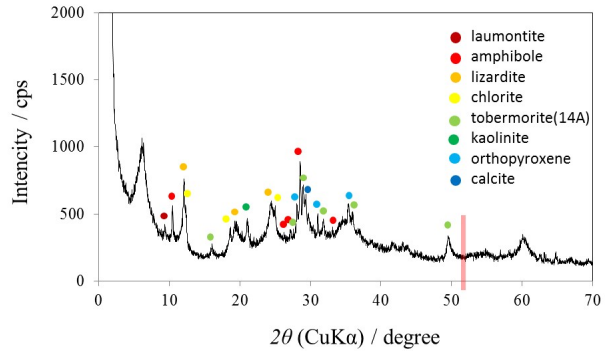
炭酸塩のC-14年代については、トレンチ6の炭酸塩（1,703±72年：PWT06-17-Rh-C01、942±71年：PWT06-17-Rh-C02）、トレンチ7の炭酸塩（2,771±73年：PWT07-17-Rh-C01）であった。PWT07-17-Rh-C01は昨年度測定した^[1]炭酸塩（トレンチ5（1,965±46年：PWT05-16-Rh-007））を含め、PWT07-17-Rh-C01が最も古い年代を示す炭酸塩である。炭酸塩については、アルカリ地下水と大気中の炭酸ガスとの相互作用により方解石の沈殿によって形成したものが主であり、アルカリ地下水が連続して流出している間にさらに古い時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、その生成年代がもっとも接触時間と直結する年代と考えられる。したがって、PWT07-17-Rh-C01のC-14年代から、アルカリ地下水が少なくとも2,800年程度前からこのサイトに流出し、碎屑性堆積物にも浸出していたと考えられる。

アルカリ地下水との直接の反応時間は、上記の炭酸塩のC-14年代から少なくとも2,800年程度であることはいえるが、碎屑性堆積物が堆積した時代からアルカリ地下水との相互作用があったと考ええると、図-3に示す土壌試料（ヒューミン）のC-14年代である、トレンチ2（2,413±82年）、トレンチ7（4,516±74年）、トレンチ3（9,721±57年）が高アルカリ地下水との相互作用期間と仮定できる。トレンチ2では空隙等を充填するスメクタイトと共生するC-S-Hが多くみられることから、アルカリ環境下において、苦鉄質鉱物等溶解に伴い、SiとMg、Feとの結合によるM-S-HやF-S-Hの形成と、アルカリ溶液からのCaとSiとの結合によるC-S-Hの形成は、高アルカリ地下水が浸出してそれほど時間を経ずに生じ、M-S-HやF-S-Hは速やかにスメクタイト質に変化したものと考えられる。一方、図-3に示すように、XRDのトレンチ2のスメクタイトのピークはトレンチ7やトレンチ3よりもやや弱く、これは過渡期のスメクタイト化を示していると考えられる。従って、アルカリによる溶解を伴う変質反応により生じた沈殿は速やかにスメクタイト質になるが、よりSi-richな結晶質のスメクタイトに成長・進展する反応は、アルカリとの相互作用が始まって2,400年～4,500年程度の長期の反応であることがいえる。

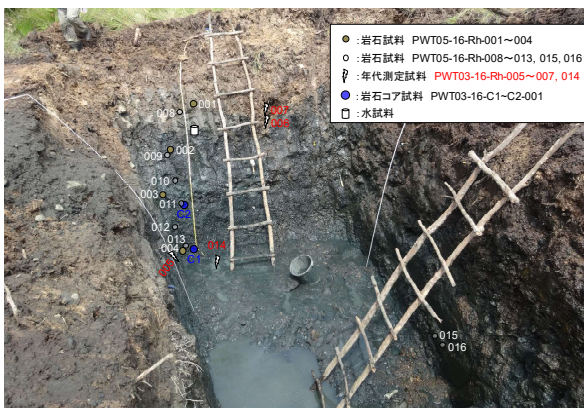
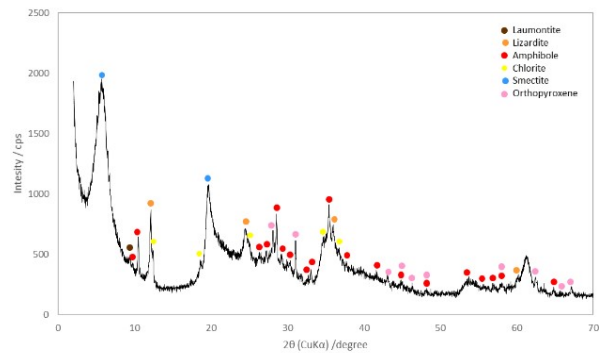
なお、本研究は経済産業省資源エネルギー省からの委託研究である平成28年度地層処分技術調査等事業「TRU廃棄物処理・処分技術高度化開発」のうちナチュラアナログ調査の一部として実施したものである。



トレンチ 2 底部の碎屑性堆積物のヒューミン
C-14 年代：2368±77 年(PWT02-15-Rh-011)



トレンチ 6 底部の碎屑性堆積物のヒューミン
C-14 年代：4008±73 年(PWT06-17-Rh-C06)



トレンチ 5 底部の碎屑性堆積物のヒューミン
C-14 年代：9647±56 年(PWT05-16-Rh-014)

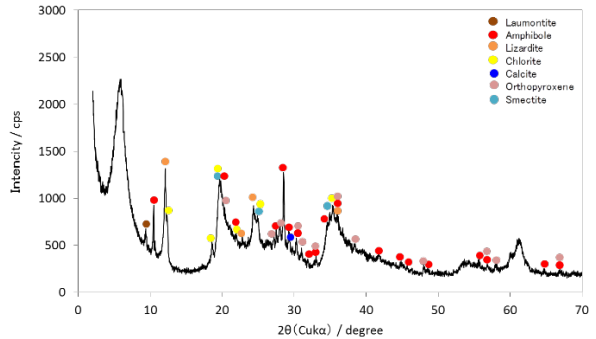


図-2 スメクタイトの生成と反応時間 (右は底部の試料の XRD パターン)

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).
- [2] 藤井直樹, 山川稔, 國分陽子: 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, 日本原子力研究開発機構施設共用実施報告書, 2016B-F01 (2017).