

フィリピンパラワン島における炭酸塩の熱ルミネッセンス年代測定

河原弘樹*・長谷部徳子*・小形学*・福士圭介*・田村明弘*・藤井直樹**・山川稔**

Thermoluminescence dating of carbonates from Palawan island of the Philippines

Hiroki Kawahara*, Noriko Hasebe*, Manabu Ogata*, Keisuke Fukushi*,
Akihiro Tamura*, Naoki Fuji** and Minoru Yamakawa**

* 金沢大学, Kanazawa University

** 原子力環境整備促進・資金管理センター, RWMC

はじめに

原子力発電に伴って発生する放射性廃棄物の人工バリアでは、セメント系材料から溶出する高アルカリ水とモンモリロナイトを主成分とするベントナイト緩衝材との相互作用により、サポナイトという鉱物が生成される可能性がある。モンモリロナイトからサポナイトへの変質は同じスメクタイト族の粘土鉱物への変質であり、人工バリアの緩衝材に安定性をもたらすとされ、その反応プロセスと反応時間の評価が必要とされている。

フィリピン、パラワン島ではオフィオライトを起源とする高アルカリ地下水が岩盤の割れ目に沿って上昇し、サポナイトを含む碎屑性堆積物と接触する。碎屑性堆積物の直上に堆積した炭酸塩層の年代を熱ルミネッセンス年代測定により算出することで高アルカリ地下水が湧出した時期を調べ、高アルカリ地下水と碎屑性堆積物との反応時間を設定し、アルカリ環境下でのサポナイトの安定性を評価することを目的に研究を行った。また、炭酸塩試料の熱ルミネッセンス特性を調べることも研究目的とする。

試料と実験

試料について

フィリピンパラワン島ナラ地区の炭酸塩に掘

られたトレンチ壁より垂直方向に異なる層準で採取した4試料（上からPWT01-15-Rc-001, PWT01-15-Rc-004, PWT01-15-Rc-007, PWT01-15-Rc-010A）を対象に年代測定を試みた。なお、XRD分析により試料は方解石からなると同定された。本試料は方解石であるにも関わらず、その発光曲線の形状はアラゴナイトの標準試料（サンゴ:GSJ CRM JCp-1）の発光曲線と類似している（図1）。そこで、その要因を調べるために以下の実験を行った。

①合成試料との発光曲線の比較

方解石の発光量を増加させるMnを添加した合成方解石と無添加の合成アラゴナイトを用いてTL測定を行い、発光曲線の比較を行った。

②結晶度測定

試料の結晶度を調べるために、Scherrerの式(Scherrer,1918)を用いて本試料とMn添加合成方解石の結晶子サイズを調べ、比較を行った。

③微量元素濃度の比較

小形(2014)にて使用された天然方解石と本試料の微量元素濃度を比較し、熱ルミネッセンスに影響を与える微量元素を調べた。

④粒径や乾燥法の違いによる熱ルミネッセンスの変化

粒径によって粒子の起源や結晶度が違うのではないかと想定し、250 μm 以下のものと250 μm 以上のものをふるい分けし、発光曲線を比較した。また、試料調整法が影響している可能性を考え、様々な乾燥法（77 $^{\circ}\text{C}$ 乾燥、100 $^{\circ}\text{C}$ 乾燥、凍結乾燥）で乾燥した本試料のTL測定を行い、発光曲線を比較した。

年代測定

蓄積線量測定には試料から一つのアリコート(試料皿)を取り出し、放射線照射とTL測定を繰り返し行い検量線を引く方法であるSAR (Single-aliquot regeneration) 法を使用するのが一般的とされている。しかし、パラワン島の方解石は繰り返しの加熱により熱ルミネセンスの形状が大きく変化してしまうので、SAR法は適用できない。そこで、試料をいくつかのアリコートに分割し、異なる量の放射線を与えてからTL測定を実施するMAAD (Multi-aliquot additive dose) 法を用いて蓄積線量測定を行った。

結果と考察

合成アラゴナイトの発光曲線をみると、放射線未照射にも関わらず十分な発光を示す。X線を合成アラゴナイトに100Gy照射してもシグナル強度はあまり増えない(図1)。このことから、アラゴナイトの熱ルミネセンスのほとんどは放射線欠損由来でなく、構造欠陥由来の発光であると考えられる。本試料の発光曲線はアラゴナイト型を示すことから構造欠陥由来の発光を含んでいる可能性がある。

結晶成長が不十分であるために構造欠陥が増えた可能性を吟味するために、結晶子サイズを算出した結果、合成方解石と本試料とでは結晶子サイズの大きさにあまり差が見られなかった。微量元素濃度の比較を行った結果、測定試料においてNa, Al, Mo, Ba, Pbが最も高い値を示した。これらが構造欠陥を招き

熱ルミネセンスに影響を与えている可能性はあるが、確証は得られなかった。また、測定試料準備の際の粒径、乾燥法の違いは、発光量に多少の差をもたらしたものの、発光曲線の形状に大きな違いは見られなかった。したがって、今回様々な観点から構造欠陥の要因を調査したが、決定するに至らなかった。MAAD法により得られたPWT01-15-Rc-007の発光曲線を図2に示す。放射線応答性が見られる200~280 $^{\circ}\text{C}$ シグナルを用いて蓄積線量を求めて年代を算出したところ、上位の試料の方が下位の試料に比べて年代値が大きくなるなど矛盾した結果となった。またどの試料も10万年を大きく上回る結果となった。しかし本試料は現在も湧出しているアルカリ水が沈積したもので、比較的若い年代が期待されている。同地域から採取された炭酸塩やそれに含まれる有機物の ^{14}C 年代測定から年代は2000~10000年程度とみられており、その予想に反する。これは200~280 $^{\circ}\text{C}$ の間に存在するピークが構造欠陥による発光の影響を受けてしまい、過大評価されていることが考えられる。そこで、典型的な方解石の発光曲線のピーク位置を参考に本試料の発光曲線を4つのピークに分離した(図3)。その結果を利用して計算した年代はどの試料においても若くなったが依然10万年を超える値であった。この原因としては200~280 $^{\circ}\text{C}$ に存在するピークにも構造欠陥が含まれている可能性が考えられる。より正確な蓄積線量を測定するためには、本試料の正確なルミネセンスサイトの特定や構造欠陥由来の発光に関するさらなる研究が必要である。

謝辞：本研究は経済産業省資源エネルギー庁の「平成29年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に係る技術開発事業（TRU廃棄物処理・処分技術高度化開発）」の一環として行った。

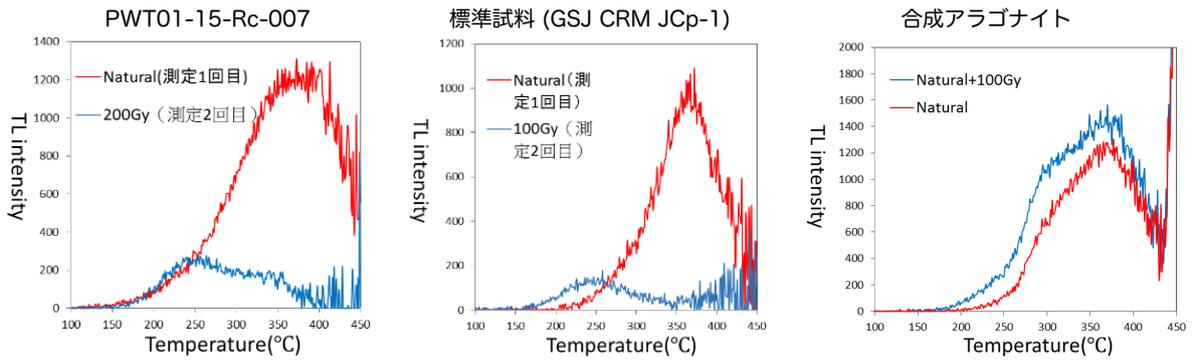


図1. 本研究で分析した試料の代表的な熱ルミネッセンスグローカーブとアラゴナイトの標準試料, および合成アラゴナイトの熱ルミネッセンスグローカーブとの比較

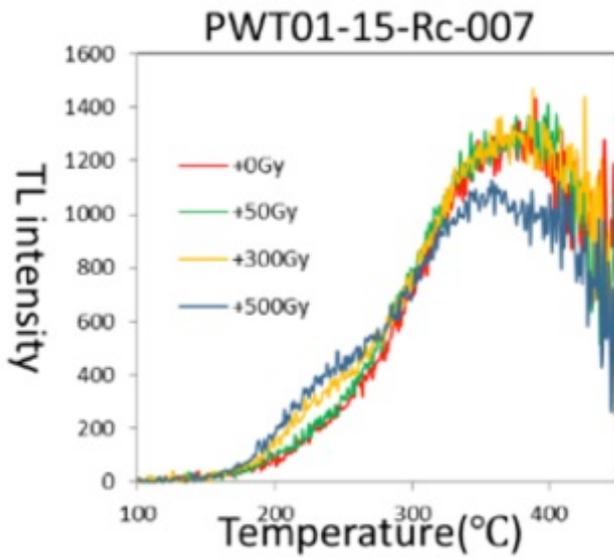


図2. MAAD法による熱ルミネッセンスグローカーブの例

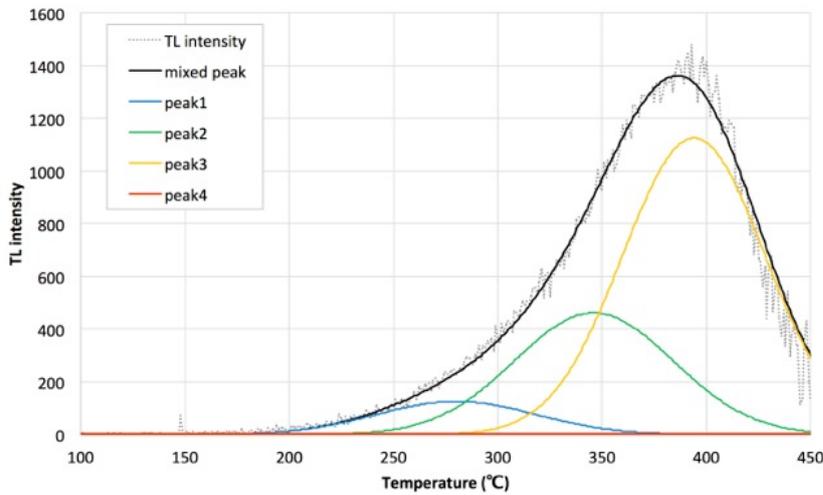


図3. ピーク分離の例 (PWT01-15-Rc-001)