樹木年輪及び大気CO2の14C濃度の時間的空間的変動に関する研究

氏　　　　名	安池　賀英子
学位の種類	博士（理学）
学位記番号	博甲第１００２号
学位授与の日付	平成 20 年 3 月 22 日
学位授与の要件	課程博士(学位規則第４条第１項)
学位授与の題目	樹木年輪及び大気 CO2 の 14C 濃度の時間的空間的変動に関する研究
論文審査委員（主査）	奥野　正幸（自然科学研究科・教授）
論文審査委員（副査）	山本　政儀（環日本海域環境研究センター・教授），中西　孝（自然科学研究科・教授），天野　良平（医学系研究科・教授），横山　明彦（自然科学研究科・准教授）

Abstract

The annual variation of ^{14}C concentrations in the tree-ring cellulose of a pine tree grown in Tatsunokuchi-machi, Ishikawa prefecture, Japan (36.44°N, 136.55°E), from 1941 to 1987, was compared with those of Shika-machi, Ishikawa prefecture, Japan (37.00°N, 136.77°E), from 1949 to 1999. Both annual variations of ^{14}C concentrations showed essentially similar patterns, suggesting that there was no local difference in the variations of ^{14}C concentration in atmospheric CO_2 in Japan. In contrast, a difference in ^{14}C concentrations was found during 1963-1967 and 1976-1982, in several trees in East Asia region. The former was caused by the great disproportion of ^{14}C concentration in Northern hemisphere. The latter may be interpreted as the possible two injections of ^{14}C originating from a series of Chinese thermonuclear bomb tests.

The relationship between ^{14}C concentrations in the tree-ring cellulose using a Japanese Cedar in Tachi-machi (36.53°N, 136.70°E) and atmospheric CO_2 in the Ohkuwa area (36.53°N, 136.78°E) and the Takao area (36.52°N, 136.64°E) was studied within a 6km range in Kanazawa city. Seasonal variations of ^{14}C concentrations in atmospheric CO_2 in the Ohkuwa area and Takao area increased to the maximum in summer, followed by a decrease to the minimum in winter. ^{14}C concentrations in the Takao area demonstrated 10-50 ‰ lower concentrations than those in the Ohkuwa area only in winter. ^{14}C concentrations in the tree-ring cellulose were compared with seasonal variations of ^{14}C concentrations in atmospheric CO_2 in the Ohkuwa and the Takao areas. ^{14}C concentration in the tree-ring cellulose was close to the corresponding mean from mid-June to early September of ^{14}C concentrations in atmospheric CO_2 without the influence of different ^{14}C concentrations in the Ohkuwa and the Takao areas in winter. These results suggest that ^{14}C concentration in tree-ring cellulose is an index of ^{14}C concentrations of atmospheric CO_2 during summer.

はじめに

自然界には、3 種類の炭素同位体が存在する。^{12}C（98.89 %）及び ^{13}C（1.11 %）は、安定同位体であり、^{14}C（1.2×10^{-10} %）は、放射性同位体である。^{14}C は、大気圏上層部で作られる 2 次宇宙線により主に $^{14}N(n,p)^{14}C$ の核反応で絶えず生成されている。生成した ^{14}C は、5,730 年の半減期で β^-壊変する。^{14}C は、大気中で直ちに酸化され主に CO_2 として、地球上の炭素循環に入る。^{14}C は、^{12}C 及び ^{13}C の同位体で構成される CO_2 と同様の挙動を示し、陸域生物圏で大気中の CO_2 は、光合成により植物に取り込まれる。大気から植物への CO_2 の移行で若干の同位体分別は生じるが、植物と大気 CO_2 の $^{14}C/^{12}C$ 同位体比（^{14}C 濃度とする）は、ほぼ等しい。しかし、植物が枯死すると大気中の CO_2 が取り込まれなくなり、植物に固定された ^{14}C は、β^-壊変により経時的に減少する。この原理に基づく ^{14}C 年代測定法は、考古学などの分野で広く利用されている。この方法は、海洋にも適応され、深層循環速度及び経路に関する研究などにも活用されている。

人為的影響のない自然界の ^{14}C 濃度は、ほぼ一定であったが、1950 年から 1960 年代前半の大気圏核実験により、^{14}C は、環境中に大量に散布され、1963 年には大気 CO_2 の ^{14}C 濃度は、北半球の高中緯度地域では、天然レベルの約 2 倍に達した。1963 年の部分的核実験禁止条約の締結後、米英ソの大気圏核実験の終焉に伴い、大気中の ^{14}C は、陸上の植物及び海洋との CO_2 の交換により減少した。大気圏核実験の影響で環境中に過剰に放出された ^{14}C の追跡から、大気圏と陸域生物圏及び海洋との炭素の交換や炭素リザーバー間への移行経路などに関する多くの研究成果が得られた。また、近年、化石燃料消費により ^{14}C を含まない CO_2 が放出され、環境中の ^{14}C を希釈している。環境中で様々な要因により増減する ^{14}C の研究は、地球上に存在する炭素の挙動との関係で、特に重要になっている。

20 世紀後半に世界の様々な地域で大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の経時変動が測定され、地球規模での ^{14}C の分布の時間的推移が明らかにされたが、観測地点及び時間スケールは、不十分であった。日本と同緯度付近（30-45°N）の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度に関する報告は、僅か 5 例に過ぎず、すべてを集約したとしても 1969 年から 1977 年の期間は、空白である。1970 年以降、世界的に大気 CO_2 の ^{14}C の不均一は無くなったと言われているが、この期間には、中国では大気圏核実験が継続して行われていた。日本と同緯度付近（30-45°N）の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の抜けている期間を補うだけでなく、東アジア地域での地域的な影響を評価する上でも、この期間の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の長期的推移は必要である。

さらに、本研究では、過去の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の時間的推移を明らかにするために、大気 CO_2 の ^{14}C 濃度を反映する樹木年輪を用いた。しかし、未だ樹木年輪と大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の相関ならびに定量的関係は、十分に説明されていない。

このような背景から、本研究では、2 つのパートからなる研究を行った。

1. 大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の長期的推移の把握
2. 樹木年輪と大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の定量的関係の検討

まず、1 では、日本と同緯度付近（30-45°N）の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の空白期間（1969 年～1977 年）を補い、長期的推移を把握するために、石川県内 2 地点における樹木年輪の ^{14}C 濃度の過去 50 年の経年変動を測定した。2 では、樹木年輪と大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の定量的関係を解明するために、金沢市内において 6km 圏内で樹木及び大気 CO_2 を採取し、年毎の樹木年輪の ^{14}C 濃度と大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の季節変動を測定した。以下、それぞれの内容について述べる。

1. 大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の長期的推移の把握 [1-2)]

石川県能美市辰口町（36.44°N, 136.55°E）（辰口町とする）及び羽咋郡志賀町（37.00°N, 136.77°N）（志賀町とする）で樹木を伐採し、ベンゼン－液体シンチレーション法を用い、過去 50 年の樹木年輪の ^{14}C 濃度を測定した〔図 1〕。

空白期間（1969 年～1977 年）を含む日本と同緯度付近（30-45°N）の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の長期的推移を明らかにした。辰口町及び志賀町の年毎の樹木年輪の ^{14}C 濃度は、よく一致した。さらに、これらを岐阜県中津川市付近（35.6°N, 137.5°E）の樹木年輪の ^{14}C 濃度と比

較すると、これらは、極めてよく一致していたことから、日本国内3地点間の空間スケールにおける大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の経年変動には、大きな差がないことが示唆された〔図1〕。

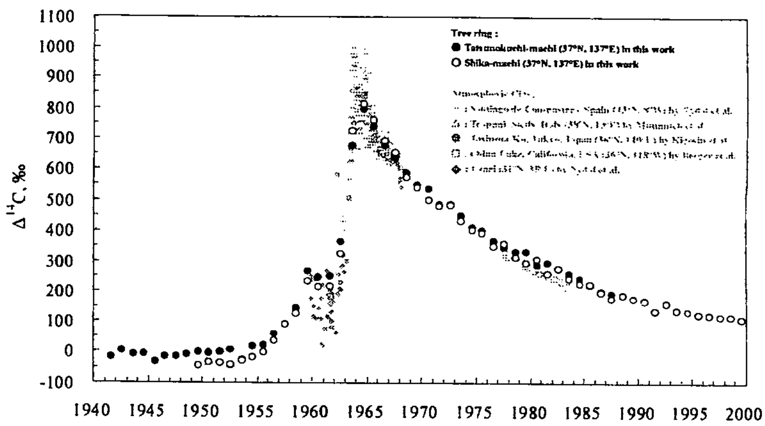

Fig. 1 Comparison of variation of ^{14}C concentration in tree-ring cellulose of our data with those in atmospheric CO_2 in the world from 30°N to 45°N.

辰口町及び志賀町と東アジアの他の地域の樹木年輪の ^{14}C 濃度変動を比較すると、1963年から1967年及び1976年から1982年の2つの期間で明らかな差が認められた。前者の違いは、世界的な現象であり、1960年代前半の北半球の高中緯度地域における一連の大気圏核実験により大気中に過剰に放出された ^{14}C の分布の緯度による不均一に起因すると考えられる。一方、後者の違いは、東アジアの地域特有の現象であり、大気 CO_2 の ^{14}C 分布の局所的な不均一は、中国の原水爆実験によって引き起こされた可能性があると考えられる〔図2〕。

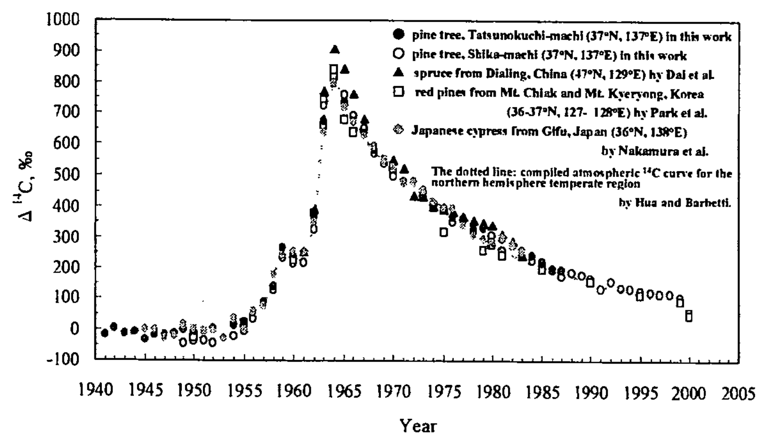

Fig. 2 Comparison of annual variation of ^{14}C concentration in tree-ring cellulose from different sites in the East Asia region.

2. 樹木年輪と大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の定量的関係の検討[3-4)]

石川県金沢市内にて樹木を伐採し、年毎に年輪を剥離した。樹木採取地点から6km圏内に位置する環境条件が異なる2地点で大気 CO_2 を採取した。これらの ^{14}C 濃度をベンゼン－液体シンチレーション法を用いて、測定した〔図3〕。

初めに、大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の経時変動について述べる。田園地帯である大桑（36.53°N, 136.68°E）における大気 CO_2 の ^{14}C 濃度は、1991年から2000年の間では、春から増加し、7月下旬あるいは8月上旬に最高値に達し、12月から2月に減少するという顕著な季節変動を繰り返し、年々5‰ 程度減少した。一方、住宅地である高尾（36.52°N,136.64°E）における大気 CO_2 の ^{14}C 濃度は、1991年から1995年の間では、大桑と同様の季節変動パターン

を示し、年々4‰ 程度減少した。

大桑と高尾の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度を比較すると、夏期には、大きな差は見られなかったが、冬期には、高尾の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度は、大桑より 10～50‰ 低い値を示した。これは、住宅地において冬期に暖房等を使用した際の石油等の化石燃料の燃焼による ^{14}C をほとんど含まない CO_2 が局所的に放出された影響と考えられる。

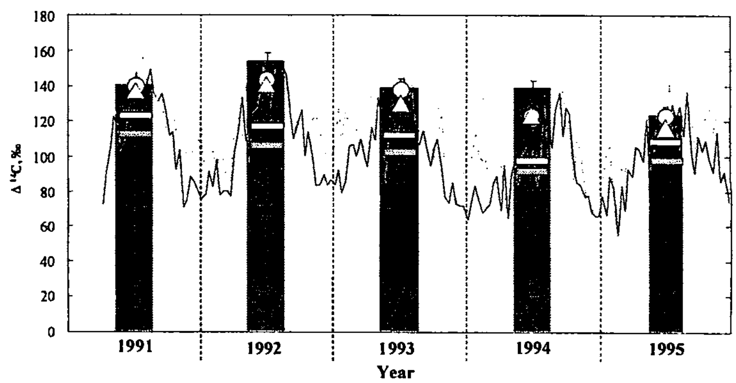

Fig. 3 Relationship between $\Delta^{14}C$ values in tree-ring cellulose and atmospheric CO_2 in Kanazawa, Ishikawa prefecture, Japan.

Bar graph: Japanese Cedar (*Cryptomeria japonica*) in Tachi-machi, (36.53°N, 136.70°E)
Gray line: Atmospheric CO_2 in the Ohkuwa area (36.53°N, 136.68°E)
Black line: Atmospheric CO_2 in the Takao area (36.52°N, 136.64°E)
Annual mean of atmospheric CO_2 : ○ The Ohkuwa area, △ The Takao area
Average from mid-June to early September for atmospheric CO_2:
▭ The Ohkuwa area, ▭ The Takao area

次に、舘町（36.53°N, 136.70°E）の樹木年輪の ^{14}C 濃度と大桑及び高尾の大気 CO_2 の季節変動を比較した〔図 3〕。樹木年輪の ^{14}C 濃度は、両地点の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の年平均値よりも高く、大桑と高尾で有意な差が現れた冬期の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度は反映せず、夏期（6 月中旬～9 月上旬）の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の平均値に ±10‰以内で一致した。このことから、樹木年輪の ^{14}C 濃度は、夏期の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の指標として用いることが可能であることを明らかにした。

参考論文

1.Yoshimune Yamada, Kaeko Yasuike, Mikio Itoh, Noriki Kiriyama, Kazuhisa Komura, Kaoru Ueno, Carbon-14 dating of tree rings for tritium measurement. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 227(1-2):37-41 (1998).

2.Yoshimune Yamada, Kaeko Yasuike, Kazuhisa Komura, Temporal Variation of Carbon-14 Concentration in Tree-ring Cellulose for the Recent 50 Years. *Journal of Nuclear Radiochemical Sciences* 6(2):17-20 (2005).

3.Kaeko Yasuike, Yoshimune Yamada, Kazuhisa Komura, Comparison of levels in urban area with background levels of carbon-14 in atmospheric CO_2 in Kanazawa, Ishkawa prefecture, Japan. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 277(2):389-398 (2008).

4.Kaeko Yasuike, Yoshimune Yamada, Kazuhisa Komura, Long-term variation of ^{14}C concentration in atmospheric CO_2 in Japan from 1991 to 2000. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 275(2):313-323 (2008).

学位論文審査結果の要旨

本論文は，人為的に環境中に放出された放射性炭素 ^{14}C (β^-，$T_{1/2}$=5730 年)の大気中での長期動態に関する知見を得る目的で，樹木の ^{14}C 濃度を年輪毎の高分解能で測定し，大気 CO_2 の ^{14}C 濃度との関係を明らかにし，過去の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の時空間的変動を追究したものである。本論文の成果は，大別して次の 2 点からなる。

1) 石川県内の 2 地点で伐採した樹木の過去 50 年の年輪中 ^{14}C 濃度の経年変動を測定し，日本と同緯度付近（30–45° N）のデータ空白期間（1969–1977 年）を含む大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の長期的推移および東アジア地域における樹木年輪 ^{14}C 濃度の相互関係を明らかにした。
2) 次に，樹木年輪と大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の定量的関係を把握するために，石川県金沢市内のほぼ同地域で，年毎の樹木年輪 ^{14}C 濃度と大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の季節変動を数年間比較検討した。これにより樹木年輪 ^{14}C 濃度は，夏季大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の指標として用いることが可能であることを明らかにした。

以上の研究成果を骨子とする当該学位論文に関し，予備審査，指導教員の意見も参考にして，平成 20 年 2 月 7 日の口頭発表，質疑応答後に審査委員会を開催して協議を行った。その結果，樹木年輪及び大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の長期変動に関する複数のデータは、日本国内での例が非常に少なく、貴重な成果を提示している。今後、他の大気汚染物質の長距離輸送の軌跡と組み合わせることにより、大気 ^{14}C 研究のさらなる発展が期待できる。以上，本論文は放射化学，地球化学，環境科学分野の進展に寄与する一般性に富む新知見を提供しており，博士（理学）の学位を授与するに値するものと判定した。