

熱核兵器実験起源の $^{14}\text{C}$ をトレーサーとした炭素循環の研究

中村俊夫

名古屋大学アイソトープ総合センター 〒464 名古屋市千種区不老町

## 1. はじめに

最近、大気中の二酸化炭素濃度が急激に増加している事実が明かにされ[1]、この二酸化炭素濃度の増加が近い将来の気候変化に及ぼす影響について、種々議論されている[2]。正確な予想を立てるには地球規模での炭素循環を明確にすることが不可欠であり、種々の方法で研究が進められている。一つの有効な方法として、熱核兵器実験により大気中で多量に生成された $^{14}\text{C}$ をトレーサーとして利用する方法があり、この方法を用いて環境中の炭素循環に関する多くの知識が得られている[3-5]。ここでは、1945-1983年に形成された樹木年輪（木曾ひのき）を用いた大気 $\text{CO}_2$ の $^{14}\text{C}$ 濃度の経年変動の推定と、その結果を用いて行った、大気圏-海洋-生物圏間の炭素循環に関する解析の結果について報告する。

## 2. 研究方法

## 2-1. 試料とその調製

岐阜県中津川市付知の森林で生育した木曾ひのき(Japanese cypress)を1984年4月に伐採して採取した。樹木の幹径は約60 cm（樹齢約240年）で、樹幹周辺部での年輪幅は早材部が0.8-1.0 mm、晩材部ではその1/10以下であった。10 mm厚で輪切りにした樹幹から接線方向10 mm幅の四角柱を切り出し、1945-1983年の年輪を各年輪ごとに晩材部で分離して木片試料とした。さらに、1958-1966年の年輪については各年輪の早材部をマイクロトームを用いて半径方向に3-4等分割して、測定試料とした。

採取した試料を粉碎し、約100 mgを取り、1.2NのNaOH水溶液を用いて80°Cで温浴し、樹脂、糖分およびリグニン成分の一部を溶解除去した。さらに、1.2Nの塩酸で処理したあと、蒸留水で洗浄し乾燥させ、真空中で400°Cに加熱して炭化した。炭化試料約5 mgを高純度の銀粉と原子比にして1:1で混合し、手動の圧縮装置を用いて、直径3 mmφのC-Agペレットを作製し測定試料とした[6]。

2-2.  $^{14}\text{C}$ 濃度測定

木片試料の $^{14}\text{C}$ 濃度（(2)式で定義される $\delta^{14}\text{C}$ 値）はタンデトロン加速器質量分析計を用いて測定した[6]。一般に天然試料の $^{14}\text{C}$ 濃度は、炭素の同位体分別効果の補正をほどこした $\Delta^{14}\text{C}$ 値で表される。

$$\Delta^{14}\text{C} = \delta^{14}\text{C} - (25 + \delta^{13}\text{C})(1 + \delta^{14}\text{C}/1000) \quad (\text{‰}) \quad \text{---- (1)}$$

ここで、

$$\delta^{14}\text{C} = [(^{14}\text{C}/^{13}\text{C})_{\text{試料}} / (^{14}\text{C}/^{13}\text{C})_{\text{標準}} - 1] \times 1000 \quad (\text{‰}) \quad \text{---- (2)}$$

$$\delta^{13}\text{C} = [(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{試料}} / (^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{標準}} - 1] \times 1000 \quad (\text{‰}) \quad \text{---- (3)}$$

であり、 $\delta^{13}\text{C}$ 値は複式コレクター型の質量分析計(Varian MAT CH-7)で測定した[7]。タンデトロン分析計による $\delta^{14}\text{C}$ 値の測定では、NBS-SRM-4990尿酸で校正された樹木年

輪 (1840-1860) を標準体として用いた [6].  
A.D.

### 3. 結果および考察

#### 3. 1. 樹木年輪の $\Delta^{14}\text{C}$ と大気 $\text{CO}_2$ の $\Delta^{14}\text{C}$ との比較

1958-1966年の年輪について、一つの年輪内の  $\Delta^{14}\text{C}$  の変動 (季節変動) を測定し、大気  $\text{CO}_2$  の  $\Delta^{14}\text{C}$  と比較した結果を図1に示す。両者を比較するにあたっては、木曾ひのきの早材部は5月上旬から7月下旬にかけて一様な速さで成長すると仮定した [8].

図1に示される様に  $\Delta^{14}\text{C}$  は樹木年輪と大気  $\text{CO}_2$  とで良く一致しており、特に核実験により引き起こされた1963年の大気  $\text{CO}_2$  の  $\Delta^{14}\text{C}$  の急増が樹木年輪中に忠実に記録されている事が明かとなった。この結果から、光合成により大気中から樹木へ取り込まれた炭素は直ちに樹木の幹の形成に用いられる事がわかる。すなわち、樹木年輪の  $\Delta^{14}\text{C}$  は年輪形成時の大気  $\text{CO}_2$  の  $\Delta^{14}\text{C}$  を呈すると考えてよい事が明かとなった。

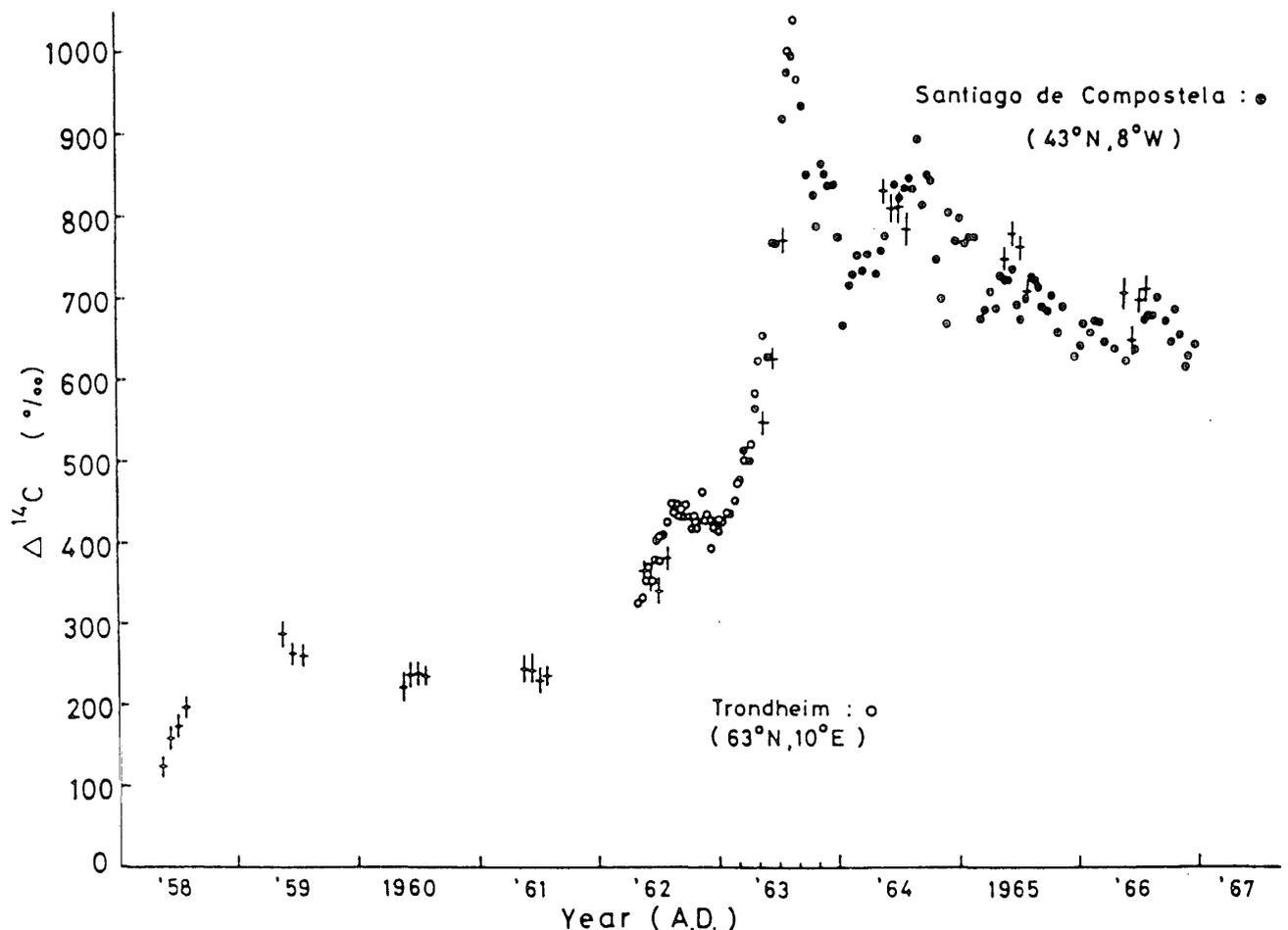


図1. 木曾ひのき年輪の  $\Delta^{14}\text{C}$  (+マーク). 一つの年輪の早材部を半径方向に3-4等分割し、 $\Delta^{14}\text{C}$  の変動を調べた。年輪の  $\Delta^{14}\text{C}$  の変動は大気  $\text{CO}_2$  の  $\Delta^{14}\text{C}$  (丸印) のそれとよく一致している。

### 3. 2. 樹木年輪の $\Delta^{14}\text{C}$ の経年変動

1945-1983年の木曾ひのき年輪の $\Delta^{14}\text{C}$ を表1に、また図2に白丸で示す。1945-1953年の $\Delta^{14}\text{C}$ はほぼ0%であった。 $\Delta^{14}\text{C}$ は、1956-1957年から増加を開始し1960-1961年にはいったん停滞するが、1962年には再び急増し1964年に最大値を示した。1964年以降、 $\Delta^{14}\text{C}$ は単調に減少している。

大気 $\text{CO}_2$ の $^{14}\text{C}$ 濃度の増加は大気圏内の核兵器実験に起因する事が明かとなっている。大気圏内核実験の年ごとの回数を図2に破線で示す。1962-1964年の年輪に見られる $\Delta^{14}\text{C}$ の急増は、1961年(120 MT)および1962年(220 MT)の大規模な水爆実験の影響による。1963年7月の部分的核実験停止条約の調印以後、米ソ両国の大気圏内での核実験は停止された(フランスと中国による小規模な核実験は1980年まで続けられた)[9]。このため大気圏内での $^{14}\text{C}$ の生産はほぼ停止され、炭素循環により大気圏内の $^{14}\text{C}$ は生物圏や水圏へと移動し、年輪の $\Delta^{14}\text{C}$ は1964年以降単調に減少した。

大気圏内での核実験の経過と大気 $\text{CO}_2$ の $\Delta^{14}\text{C}$ の経年変動との対比により、大気中の $\text{CO}_2$ の混合、大気圏から生物圏や水圏への炭素の移行過程が解明されてきた[4]。以下では、1945-1983年の木曾ひのき年輪(35.6° N, 137.5° E)の $\Delta^{14}\text{C}$ 、およびDruffel & Linick[10]により測定された1950-1974年の北米フロリダ半島産サンゴ年輪(25° N, 81° W)の $\Delta^{14}\text{C}$ (図2の黒丸)を用いて、簡略化されたBox modelに基づき、3つの主たる炭素貯蔵庫である対流圏(troposphere)、海洋表面水(surface ocean water)、生物圏(biosphere)間の炭素交換速度を推定した結果を簡単に示す。

### 4. 大気圏-水圏-生物圏間の $\text{CO}_2$ 交換速度の推定

Nydal[4]は核実験起源の $^{14}\text{C}$ を利用して、10個の炭素貯蔵庫を想定したBox modelを用いて、自然界における炭素循環を検討した。ここでは、図3に示す様に3つの炭素貯蔵庫を考慮して解析を行った結果を示す。

$R_t$ ,  $R_b$ ,  $R_o$ を対流圏、生物圏、および表面海洋水に含まれる $^{12}\text{C}$ の総量、 $X_t$ ,  $X_b$ ,  $X_o$ をそれぞれの貯蔵庫における $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比の平衡状態からのずれ、 $k_{tb}$ ,  $k_{to}$ を対流圏から生物圏へ、および表面海水への、 $k_{bt}$ ,  $k_{ot}$ をそれぞれその逆方向への炭素移動速度( $k$ の逆数は平均滞留時間を表す)とする。対流圏内における $^{14}\text{C}$ の変化量は、以上の変数を用いると次式で表される。

$$R_t \cdot dX_t/dt = k_{bt} \cdot R_b \cdot X_b + k_{ot} \cdot R_o \cdot X_o - K_{to} \cdot R_t \cdot X_t - K_{tb} \cdot R_t \cdot X_t \quad \text{-----}(4)$$

微分方程式(4)を解くには、 $X_t$ ,  $X_b$ ,  $X_o$ の経年変化が既知である必要がある。しかし、これらの量は時間と共に場所にも依存している事が知られており[11]、3 Box modelを現実の自然界に厳密に適用することは不可能である。そこで、3 Box modelの近似的な適用を試みた。すなわち、(4)式の適用にあつたて、次の仮定を行った。

(a) 対流圏および表面海水では炭素の混合が比較的良く、適当な代表点で $X_t$ ,  $X_o$ の経年変化(人工 $^{14}\text{C}$ の付加による変化量)を測定できると仮定する。即ち、 $X_t$ ,  $X_o$ は木曾ひのき年輪およびサンゴ年輪の $\Delta^{14}\text{C}$ を用いて次式で与えられるとした。

$$X_t = \Delta^{14}\text{C}_{tr,o} - \Delta^{14}\text{C}_{tr,o}(1945-1953) \quad \text{-----}(5-1)$$

$$X_o = \Delta^{14}\text{C}_{coral} - \Delta^{14}\text{C}_{coral}(1950-1955) \quad \text{-----}(5-2)$$

ここで、人工 $^{14}\text{C}$ の影響が始まる以前の平衡状態の $\Delta^{14}\text{C}$ として、 $\Delta^{14}\text{C}_{tr,o}$ (19

表 1. 木曾ひのき年輪の  $\delta^{13}\text{C}$  値 (‰) と  $\Delta^{14}\text{C}$  値 (‰)

年輪年代	$\delta^{13}\text{C}$ 値	$\Delta^{14}\text{C}$ 値	年輪年代	$\delta^{13}\text{C}$ 値	$\Delta^{14}\text{C}$ 値
1945	-22.2	-0.7 ± 20.4	1955	-	-5.2 ± 15.6
46	-	-2.5 ± 20.7	56	-23.7	49.8 ± 17.5
47	-22.9	-29.5 ± 19.3	57	-	81.3 ± 14.0
48	-	-25.6 ± 19.9	58	-23.0	187.2 ± 12.5
49	-22.6	22.2 ± 18.5	59	-	235.1 ± 18.3
1950	-	4.6 ± 7.8	1960	-22.6	245.9 ± 14.1
51	-22.2	-8.4 ± 16.7	61	-	151.9 ± 14.7
52	-23.0	-8.3 ± 15.4	62	-22.3	326.2 ± 14.5
53	-	-35.4 ± 15.9	63	-	622.6 ± 16.9
54	-22.9	28.7 ± 14.2	64	-21.8	793.2 ± 18.3
1965	-	705.2 ± 19.3	1975	-	394.4 ± 12.8
66	-21.1	653.0 ± 21.7	76	-23.0	392.2 ± 13.3
67	-	614.1 ± 20.6	77	-	323.0 ± 17.1
68	-21.6	597.4 ± 16.2	78	-21.2	303.4 ± 17.4
69	-	553.4 ± 16.7	79	-	290.7 ± 19.2
1970	-22.7	539.6 ± 16.7	1980	-21.4	270.8 ± 18.0
71	-	476.2 ± 18.4	81	-	295.4 ± 20.3
72	-22.3	470.0 ± 15.5	82	-21.8	273.6 ± 21.6
73	-	459.3 ± 17.3	83	-21.2	251.4 ± 23.5
74	-21.6	414.3 ± 16.7			

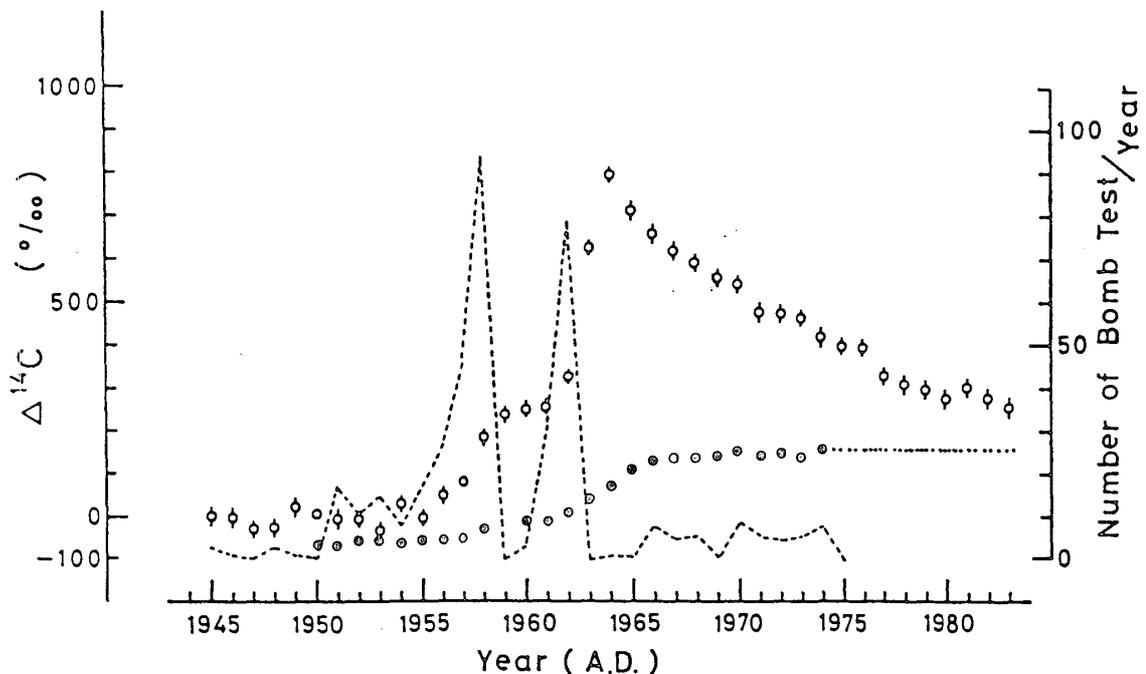


図 2. 木曾ひのき年輪 (白丸) およびサンゴ年輪 (黒丸) の  $\Delta^{14}\text{C}$ . 破線は年ごとの大気圏内核実験の回数を表す.

45-1953)=-9.3%。 , および  $\Delta^{14}\text{C}_{\text{cor},01}(1950-1955)=-60\%$  を用いた。

(b) 生物圏での炭素貯蔵は複雑で  $X_b$  の経年変化を評価することは大変むずかしい。ここでは、文献12, 13の議論を基に  $X_b \approx 0$  と仮定した。

(c) Broecker, et al.[14]によると、1965-1969年の4年間に核兵器実験起源の $^{14}\text{C}$ が対流圏から表面海水へ、および生物圏へ移行した量の割合は89:41である。そこで近似的に

$$k_{t,b}/k_{t,a} = 41/89 = 0.461 \quad \text{-----}(6)$$

と仮定した。

(d) 各炭素貯蔵庫では $^{12}\text{C}$ の量は平衡状態にあると仮定する。すなわち、

$$k_{t,a} \cdot R_t = k_{a,t} \cdot R_a, \quad k_{t,b} \cdot R_t = k_{b,t} \cdot R_b \quad \text{-----}(7)$$

が成り立つとする。

これらの仮定に基づいて、(4)式から次式が導かれる。

$$dX_t/dt = k_{t,a} (X_a - 1.461 X_t) \quad \text{-----}(8)$$

微分方程式(8)を解くと次式が得られる。

$$1.461 X_t - X_a = C \exp(-k_{t,a} \cdot t) \quad \text{-----}(9)$$

(9)式に(5-1), (5-2)式で与えられる $X_t$ ,  $X_a$ を適用すると(図4), 最小二乗法により $k_{t,a}$ は $0.095 \pm 0.003(\text{yr}^{-1})$ , また(6)式により $k_{t,b}$ は $0.044 \pm 0.001(\text{yr}^{-1})$ と得られた。

この結果から、大気圏から表面海水へ、および生物圏への炭素移動における平均滞留時間は、それぞれ約11年、および約23年と推定された。前者についてCraig[15]は $7 \pm 3$ 年、Nydal[4]は5-10年と、筆者とほぼ一致した結果を得ている。また、後者についてCraigは33年と著者の結果より約10年大きい値を得ている。この解析の詳細については文献12,13を参照されたい。

## 5. おわりに

核兵器実験起源の $^{14}\text{C}$ は環境の炭素循環を調べるための有用なトレーサーの一つである。本論では簡略化されたBox modelの適用を試みたが、もっと精巧なmodelを用いて炭素循環を議論するには、環境中の $^{14}\text{C}$ 濃度分布についての詳細なデータを必要とする。これらの研究において、少量の試料で短時間に $^{14}\text{C}$ 濃度測定が出来るタンデトロン加速器質量分析計の活用が大いに期待される。

## 参考文献

- [1] 田中正之, 21世紀の地球環境-気候と生物圏の未来, NHKブックス(1987) 25.
- [2] 真鍋淑郎, 科学, 55 (1985) 84.
- [3] Lal, D. & Rama, J. Geophys. Res., 71 (1966) 2865.
- [4] Nydal, R., J. Geophys. Res., 73 (1968) 3617.
- [5] 中村俊夫ほか, 地球化学, 21 (1987) 7.
- [6] Nakamura, T., et al., Jpn. J. Appl. Phys. 24 (1985) 1716.
- [7] 酒井均, 松葉谷治, 新実験化学講座, 10, 宇宙地球化学, 丸善, (1976) 471.
- [8] 福田忠徳ほか, 木材学会誌, 15 (1969) 182.
- [9] 葛城幸雄, 放射線科学, 29 (1986) 2.

- [10] Druffel, E.M. & Linick, T.W., *Geophys. Res. Lett.*, 5 (1978) 913.
- [11] Nydal, R. & Lovseth, K., *J. Geophys. Res.*, 88 (1983) 3621.
- [12] Nakamura, T., et al., *Nucl. Instr. & Meth.* B29 (1987) 355.
- [13] 中村俊夫, 中井信之, *気象研究ノート*, 160 (1987) 67.
- [14] Broecker, W.S., et al., *Radiocarbon*, 22 (1980) 565.
- [15] Craig, H., *Tellus*, 9 (1957) 1.

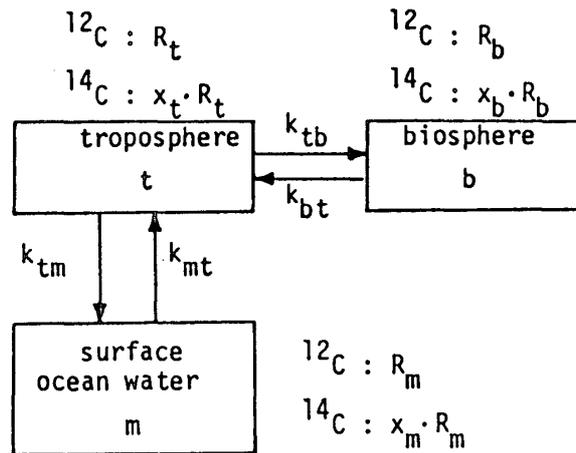


図3. 3つの炭素貯蔵庫を考慮したBox modelの概念図.  $k$ は各貯蔵庫間での炭素の移動速度を表す.

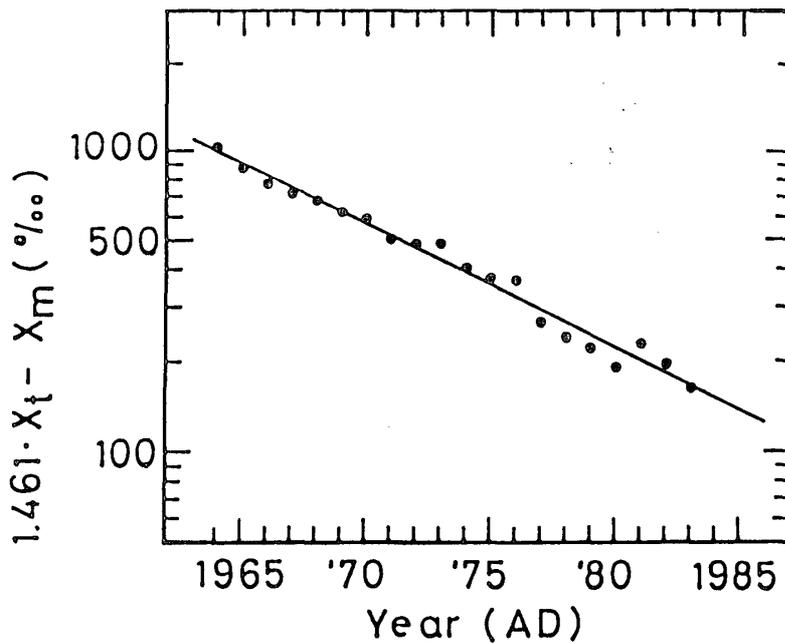


図4. 樹木年輪と珊瑚年輪の $\Delta^{14}\text{C}$ 経年変化を用いた炭素交換速度の推定.