

名古屋大学東山キャンパス内の松葉の ^{14}C 濃度測定

中村俊夫¹⁾

中井信之²⁾

古川路明³⁾

- | | |
|---------------------|------------------|
| 1)名古屋大学年代測定資料研究センター | 464-01名古屋市千種区不老町 |
| 2)名古屋大学理学部地球科学教室 | 464-01名古屋市千種区不老町 |
| 3)名古屋大学理学部化学教室 | 464-01名古屋市千種区不老町 |

1. はじめに

名古屋大学年代測定資料研究センターに設置されている2MV小型タンデム加速器を用いた加速器質量分析法により、放射性炭素(^{14}C , $T_{1/2}=5730$ 年)の定量が行なわれている。今までに、樹木年輪[1]、湖底堆積物中の有機物[2]や海水中溶存炭酸[3]の ^{14}C 濃度の測定が行なわれてきた。今回は、名古屋大学東山キャンパス内に生育している赤松・黒松の松葉中の ^{14}C 濃度の測定結果について報告する。

松葉は、5月始めごろから新葉を出し始め、5~6月にかけて大きくなり、9月ごろまで成長を続ける。この5月から9月にかけての成長期に、松は光合成により空気中の二酸化炭素を取り込んで有機物を合成し、年輪を作ると共に葉を形成する。従って、年輪や松葉の ^{14}C 濃度は、成長期間に吸収した二酸化炭素のほぼ平均的な ^{14}C 濃度を示すはずである。

名古屋大学東山キャンパスの放射性物質取扱施設では、各種のトレーサー実験に ^{14}C が用いられている。研究に使用された ^{14}C の一部は、液体シンチレーション廃液としてアイソトープ総合センターに設置されている放射性有機廃液焼却炉を用いて焼却され、 ^{14}C は二酸化炭素($^{14}\text{CO}_2$)として大気中に放出されている[4]。さらに、学内を横切る一般道路を通行する自動車からは、排気ガスとして化石燃料使用による ^{14}C を全く含まない二酸化炭素が放出されている。本研究では、これらのローカルな二酸化炭素放出が周囲に生育する松葉に及ぼす影響を調べた。

2. 松葉の採取

1983年11月、1988年8月、1989年8月に、その年に成長した新松葉を約20本採取した。1988年以降は、同じ松の木の同じ枝から松葉を採取した。松葉の採取地点を図1に示す。1990年2月には、図1のLoc.1の松について、2本の別々の枝から松葉を採取した。

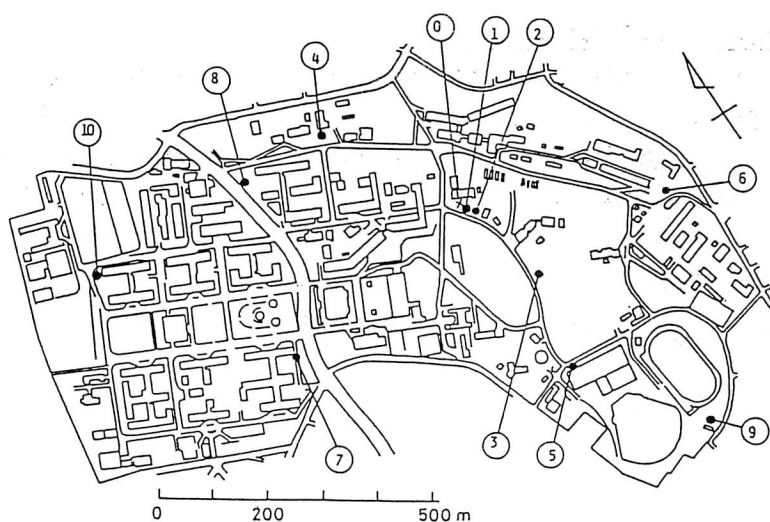


図 1. 名古屋大学東山キャンパス内の松葉試料の採集位置。

試料番号は、アイソトープ総合センターに設置されている放射性有機廃液焼却炉から近い順に付けてある。Loc.0が放射性有機廃液焼却炉の位置を示す。

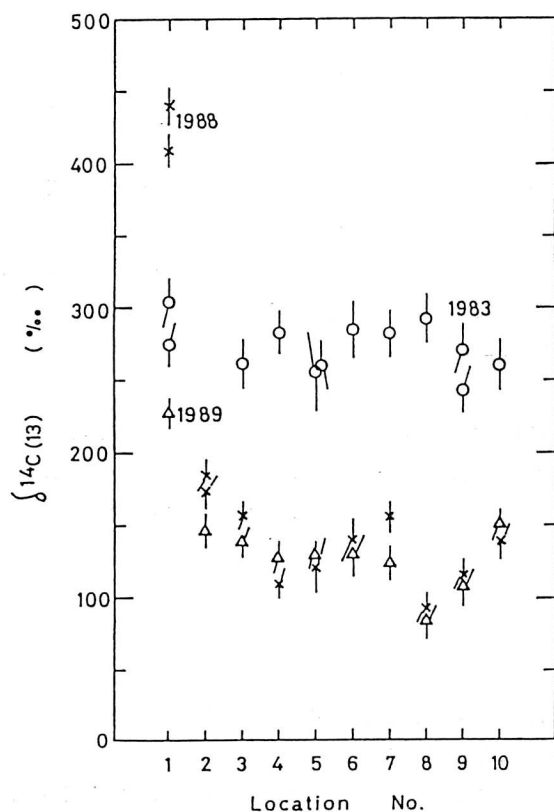


図 2. ^{14}C 濃度 vs. 松葉試料の採集位置。

3. 試料調製および ^{14}C 濃度の測定

採取した松葉を蒸留水を用いて超音波洗浄したあと、1.2規定の塩酸を用いて数時間90℃に加熱処理した。この塩酸処理を、溶液が着色しなくなるまで繰り返した。次に、1.2規定のNaOH水溶液で数時間90℃での加熱処理を、溶液が着色しなくなるまで数回繰り返した。再度熱塩酸処理を2回行なったあと、蒸留水でよく洗浄し乾燥した。乾燥試料をバイレックス管に入れ真空に排気して封じきり、500℃で加熱して炭化した。この元素態炭素を銀粉末と混ぜてプレスして直径3 mmのペレット(2~5 mgの炭素を含む)を造り、その $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$ 比をタンデム加速器質量分析計で測定し、結果を

$$\delta^{14}\text{C} \text{ (‰)} = [(^{14}\text{C}/^{13}\text{C})_{\text{sample}} / (^{14}\text{C}/^{13}\text{C})_{\text{standard}} - 1] \times 1000$$

で示した。

4. 結果

測定結果を図2に示す。横軸は松の位置番号で、アイソトープ総合センターの放射性有機廃液焼却炉から近い順に並べてある。

図2から次の事が示される。

- ① 1988年、1989年の松葉では焼却炉の近傍(Loc.1の松の幹は焼却炉の煙突から8 m, Loc.2の幹は15 m離れている)の松葉で $\delta^{14}\text{C}$ 値が異常に大きい。一方、1983年では $\delta^{14}\text{C}$ の場所依存性は顕著ではない。
- ② 焼却炉から190~680 m離れたLoc.3~Loc.10の松葉では $\delta^{14}\text{C}$ 値の顕著な変化はないが、Loc.8が1988、1989年で系統的に低くなっている。
- ③ 上記の3地点を除くLoc.3, 4, 5, 6, 7, 9, 10の松葉の $\delta^{14}\text{C}$ 値の平均値は、1983年で $267 \pm 6\%$ 、1988年で $134 \pm 5\%$ 、1989年で $130 \pm 4\%$ となっており、この期間では、大気中の二酸化炭素の ^{14}C 濃度は年が経るにつれて単調に減少していることがわかる。

また、1990年2月に採集したLoc.1の松の葉(焼却炉のエントツからの距離が、5 mおよび11 m)の ^{14}C 濃度は、それぞれ $439 \pm 13\%$ 、 $197 \pm 10\%$ と得られた。焼却炉に近い方の松葉が ^{14}C 濃度はずっと高い。この結果からも、焼却炉からの影響であることが強く示唆される。

5. 考察

5. 1. 放射性有機廃液焼却の影響

アイソトープ総合センターでは、現行の放射線障害防止法に則って、 ^3H 、 ^{14}C を含む液体シンチレーター廃液の焼却処理が行なわれている。学内の規約として、① ^{14}C については、 ^{14}C 濃度が 19 Bq/cm^3 以下であること、②1日あたりの廃液の焼却量は18 l以下であること、③年間の焼却量は、 ^{14}C を含む廃液については300 l以下であること、などの制約が設けられている[5]。いま限度いっぱいとして、 ^{14}C の濃度 19 Bq/cm^3 の液

体シンチレーター廃液を18 l焼却することを考える。液体シンチレーターとしてキシレン ($C_6H_4(CH_3)_2$ 、石油から合成されており ^{14}C は含まない) が用いられているので、キシレン18 lが完全燃焼して形成され、大気中に放出される二酸化炭素の ^{14}C 濃度は、

$$(^{14}C/^{13}C)_{CO_2}/(^{14}C/^{13}C)_{standard} \approx 107; \delta^{14}C \approx 106000 \text{ ‰}.$$

となる。しかも放出される二酸化炭素の量は、大気中の二酸化炭素濃度を345 ppmVとすると、 $7.6 \times 10^4 \text{ m}^3$ の空気中に含まれる二酸化炭素の量に相当する。

以上の計算から、焼却炉から放出された ^{14}C 濃度の高い二酸化炭素が、焼却炉のごく近くに生育する松に影響を与えることは十分に有り得ると考えられる。すなわち、1988年、1989年に焼却炉の近傍の松(図1のLoc.1, 2)から採取された松葉の $\delta^{14}C$ 値が大きいのは、松葉が焼却炉から放出された $^{14}CO_2$ の一部を材料にして光合成し、成長したためと考えられる。

表1にLoc.1の松葉の ^{14}C 濃度と ^{14}C の焼却量との関係をまとめた。新しい松葉の生育期間が5月始めから9月末まで(松葉の採集日が9月30日以前の場合は採集日まで)と考えて、この期間の ^{14}C 焼却量を積算した。また最下行には、焼却炉から離れた場所に生育する松(Loc.3, 4, 5, 6, 7, 9, 10の松)の葉の $\delta^{14}C$ の平均値を示した。

1988年、1990年に採集された松葉の $\delta^{14}C$ は、他の松葉の平均値に比較して3倍以上大きい。生育期間中の ^{14}C の焼却量も約 $1 \times 10^6 \text{ Bq}$ と大きく、この影響を受けていることがわかる。一方、1989年に採集された松葉の $\delta^{14}C$ は、生育期間に ^{14}C の焼却が無いにもかかわらず、他の平均値に比べて100%。近く大きい。これは、それ以前に合成された ^{14}C 濃度の高い有機物が樹木の何処かの部位に蓄えられており、それがこの年の松葉の形成に利用された事を示唆する。

他方、1983年に採集された松葉は、生育期間に焼却された ^{14}C の量が多いにもかかわらず、 $\delta^{14}C$ 値は他の松葉の平均値とそれほど違わない。この理由は、今のところ明白では無いが、松葉の採集に問題があるかも知れない。すなわち、1983年の採集では、枝のどの部位から松葉を採集したかがはっきりしない。

5. 2. Suess効果

Loc.8の松は、東山キャンパスを横切る幹線道路沿いに生育している。この松の樹について、道路に大きく張り出した枝の先から松葉を採集した。この松葉の $\delta^{14}C$ 値は、図1に示されるように、1988年、1989年において、他の松葉の平均値に比較して40~45 %。系統的に低くなっている。これは、自動車の排気ガスにより ^{14}C 濃度が薄められた二酸化炭素を松が光合成に利用しているためと考えられる。すなわち、自動車の燃料であるガソリンや軽油は化石燃料である石油から造られるが、これは ^{14}C を全く含まない。従って、排気ガス中の二酸化炭素は ^{14}C を含まない。これが周囲の大気中の二酸化炭素と混ざって、 ^{14}C 濃度の低い二酸化炭素が道路に沿って過渡的に存在している事が考えられる。

表 1. ^{14}C の焼却量と松葉(Loc.1)の ^{14}C 濃度の相関

松葉の採取日	1983 Nov.23	1988 Aug.4	1989 Aug.21	1990 Feb.10
5月始～9月末 又は 5月始～採取日 の間の ^{14}C 焼却量	33.5(μCi) 1.2×10^6 (Bq)	25.9 0.96×10^6	0	26.2 0.97×10^6
松葉の $\delta^{14}\text{C}$	307 ± 17 276 ± 17	442 ± 13 412 ± 12	227 ± 11	439 ± 13
学内の松葉の $\delta^{14}\text{C}$ の平均値	267 ± 6	134 ± 5	130 ± 4	

Loc.1の松葉とは、焼却炉の煙突から約5 meter離れた位置で生育した松葉である。
この松葉の幹は、煙突から約8 meter位置に生えている。

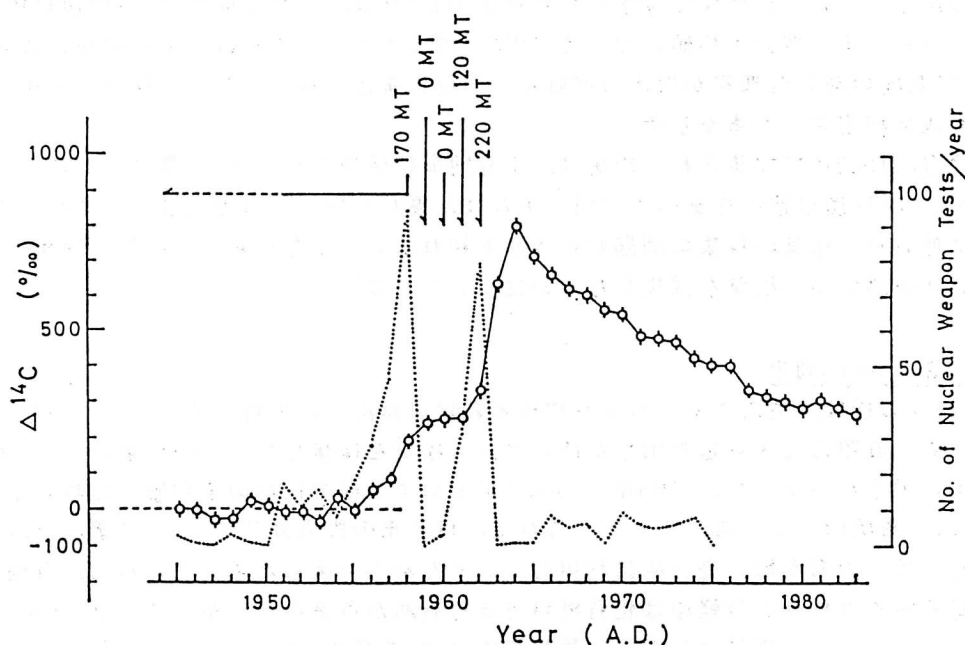


図 3. 木曾ヒノキの年輪の ^{14}C 濃度の経年変化。

5. 3. 大気中二酸化炭素の ^{14}C 濃度の経年変化

1984年に伐採した木曽ヒノキの年輪を用いて、1945～1983年の大気中二酸化炭素の ^{14}C 濃度の経年変化が研究されてきた（図3）[1]。樹木は伐採するとそれで終わり、それ以降の ^{14}C 濃度の変動を調べるには、別の樹木をさらに伐採する必要がある。これに対し、樹木の葉では、その年に生育したものを容易に選んで採取できるし、同一の樹木から長期間に亘って毎年採集できるので調査の継続性がある。また松は日本中に比較的密に生育していることから松葉が選ばれ、樹木年輪に代わって大気中二酸化炭素の ^{14}C 濃度の経年変化のモニターに使用されている。

Loc.3, 4, 5, 6, 7, 9, 10の松葉の $\delta^{14}\text{C}$ の平均値は、1983年で $267 \pm 6\%$ 、1988年で $134 \pm 5\%$ 、1989年で $130 \pm 4\%$ となっており、年輪の $\delta^{14}\text{C}$ 値とスムーズに連続している。すなわち、木曽ヒノキ年輪から示されたように大気中二酸化炭素の ^{14}C 濃度は1964年以降は単調に減少傾向にあり、現在も引き続いて減少傾向にあることが示される。

6. まとめ

名古屋大学東山キャンパス内に生育している松の葉について、 ^{14}C 濃度を測定したところ、ローカルな影響が見いだされた。すなわち、東山キャンパス内のアイソトープ総合センターでは ^{14}C を含む液体シンチレーター廃液が焼却処理されているが、焼却炉から放出された ^{14}C 濃度の高い二酸化炭素の影響を受けて、焼却炉から約5 m離れた松葉に高濃度の ^{14}C が検出された。

一方、東山キャンパスを横切る幹線道路上に張り出した松葉は、車から排気ガスとして放出される ^{14}C を含まない二酸化炭素の影響を受けて ^{14}C 濃度が系統的に低くなっている。

また、上記のローカルな二酸化炭素の影響を受けていない松葉の ^{14}C 濃度の平均値をみると、大気中二酸化炭素の ^{14}C 濃度は、1964年以降現在までほぼ単調に減少していることが確認される。

謝辞

アイソトープ総合センターの緒方良至氏には、放射性有機廃液焼却に関し種々ご教授頂いた。ここに深く感謝致します。

参考文献

- [1]中村俊夫ほか、地球化学、21（1987）7-12.
- [2]中村俊夫ほか、堆積学研究会報、25（1986）1-14.
- [3]坪田博行ほか、名古屋大学加速器質量分析計業績報告書、1（1988）81-85.
- [4]中埜栄三ほか、Tracer、6（1981）17-19.
- [5]名古屋大学アイソトープ総合センター利用の手引.

^{14}C CONCENTRATIONS BY ACCELERATOR MASS SPECTROMETRY OF PINE
NEEDLES COLLECTED AT HIGASHIYAMA CAMPUS OF NAGOYA UNIVERSITY

Toshio NAKAMURA¹⁾, Nobuyuki NAKAI²⁾, and Michiaki FURUKAWA³⁾

- 1) Dating and Materials Research Center, Nagoya University,
- 2) Department of Earth Sciences, School of Science, Nagoya University,
- 3) Department of Chemistry, School of Science, Nagoya University, Chikusa, Nagoya 464-01 Japan.

A Tandetron accelerator mass spectrometer, constructed by the General Ionex Corporation, Mass., USA, has been installed at Nagoya University in 1982, to measure ^{14}C . The spectrometer has been used to measure ^{14}C concentrations of natural samples, as well as ^{14}C ages of geological and archeological samples.

The Tandetron spectrometer measures $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$ ratios of carbon prepared from carbonaceous samples. The ratio of a young samples (^{14}C ages younger than several thousand years old) is routinely measured with a precision of $\pm 1\%$, using a C-Ag mixture target containing only 2-5 mg of carbon, in a measurement lasting about 4 hours. Errors for older samples become larger, because of the smaller number of ^{14}C counts. The ^{14}C background level of the spectrometer, estimated by using old natural graphite, is about 3×10^{-16} in $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratio.

The Tandetron spectrometer has been applied to measure ^{14}C concentrations, $\Delta^{14}\text{C}$, of annual rings (1945-1983) from a Kiso

hinoki tree(Japanese Cypress), to investigate the annual $\Delta^{14}\text{C}$ variation of the atmospheric CO_2 ; the cause of variation could be addition of ^{14}C produced by nuclear weapon tests in late 1950's to early 1960's. The ^{14}C concentrations in pine needles, collected at the Higashiyama Campus of Nagoya University, have also been measured since 1983. The results in our ^{14}C measurement of pine needles are described in the present study, focusing on the annual changes in $\Delta^{14}\text{C}$ values of the atmospheric CO_2 , and on the effect upon ^{14}C concentrations for pine needles of a local $^{14}\text{CO}_2$ emission from incineration of radioactive organic solvent wastes containing ^{14}C , which have been produced by biochemical experiments with ^{14}C tracer, at the Radioisotope Center in the Higashiyama Campus of Nagoya University.

口頭発表

- 1) 中村俊夫・中井信之・古川路明：名古屋大学東山キャンパス内の松葉の ^{14}C 濃度（加速器質量分析法を用いた環境試料の ^{14}C 濃度測定-V）。第27回理工学における同位元素研究発表会，東京，1990，July，2-4.
- 2) 中村俊夫・中井信之・古川路明：加速器による名古屋大学内の松葉の ^{14}C 濃度測定。日本地球化学会年会，新潟大学，1990，October，3-5.
- 3) T. Nakamura, N. Nakai, and M. Furukawa: ^{14}C concentrations by accelerator mass spectrometry of pine needles collected at Higashiyama Campus of Nagoya University. Second China-Japan joint symp. on geochronology, cosmochemistry and isotope geology, Guangzhou, China, 1991, Jan. 7-10.

論文発表

- 1) T. Nakamura, N. Nakai, and M. Furukawa: Techniques of tandem accelerator mass spectrometry and their applications to ^{14}C measurements. Proceedings of the 2nd Int. Symp. on advanced nuclear energy research- evolution by accelerators-. Mito, Ibaraki, 1990, Jan. 24-26, p.596-601.