

ベンゼン - 液体シンチレーション法と AMS 法で得た樹木年輪 ^{14}C 濃度の比較

Measurement of Carbon-14 Concentration in Tree-ring Cellulose
(Comparison of liquid scintillation measurement with AMS measurement)

安池 賀英子¹⁾ 山田 芳宗¹⁾ 天野 光²⁾

Kaeko YASUIKE Yoshimune YAMADA Hikaru AMANO

¹⁾北陸大薬 ²⁾原子力機構

ベンゼン - 液体シンチレーション法と AMS 法で得た樹木年輪の ^{14}C 濃度を比較すると、AMS 法の値の方が平均約 15%低い傾向が認められた。この理由は、ベンゼン - 液体シンチレーション法において標準としている NIST シュウ酸から調製したベンゼン標準測定試料に起因することが考えられる。

キーワード： ^{14}C 濃度、樹木年輪、AMS 法、ベンゼン - 液体シンチレーション法

1. 目的：

環境中の ^{14}C は、宇宙線と大気との核反応によって絶えず生成され、地球上の循環サイクルに組み込まれて環境中を移動する。人類が化石燃料を消費する以前は、自然界における ^{14}C の生成と壊変はほぼ平衡状態にあり、環境中に一定の濃度で存在した。しかし、1950～1960 年前半の大気圏核実験によって、 ^{14}C は環境中へ大量に散布され、近代においては原子力関連施設等から放出され続けているものもある。これら人為的に放出された ^{14}C の時間的空間的変動を捕らえ、その挙動と環境に及ぼす影響についての知見を得るために、種々の環境試料の測定は重要な課題である。環境試料の中でも、樹木は特に有用な試料である。樹木の基幹成分の一つであるセルロースは、年輪形成時の環境中の ^{14}C を固定しているため、大気中の ^{14}C 濃度の時間的変動は、そこで生育する樹木年輪の ^{14}C 濃度に反映されていると考えられるからである。

^{14}C の測定には、液体シンチレーション法や AMS 法が用いられている。我々が用いているベンゼン - 液体シンチレーション法は、現在主流となっている AMS 法に比べて、測定精度が一桁劣る。しかし、高価な装置を必要とせず、マシンタイムや試料の個数などの制約も受けず、試料採取 - 処理 - 測定という一連の作業を連続的に簡便にできるという利点がある。さらに、ランニングコストも非常に安い。これらを考慮すると、目的に応じて、二つの方法を併用して、研究を進めるのが最善の方策と考える。二つの方法を併用する場合には、あらかじめベンゼン - 液体シンチレーション法と AMS 法による測定データを比較して、その評価を行うておく必要がある。

我々は、これまでの研究で、ベンゼン - 液体シンチレーション法を用いて、石川県内で伐採した樹木年輪の ^{14}C 濃度の過去 50 年の変動を明らかにした。さらに、石川県内の異なる 3 地点において樹木を採取し、年輪の ^{14}C 濃度の地域及び経年変動について検討した。これらのうち最も興味深い結果は、石川県内の異なる 3 地点において採取した樹木については、いずれの樹木においても 1992 年に ^{14}C 濃度の一時的な上昇が認められたことである。これは、他の研究者の報告には、認められない現象であり、この原因の一つとして、現行のベンゼン - 液体シンチレーション法の測定誤差の大きさに起因することも考えられる。

今回、この点を明らかにするため、石川県羽咋郡志賀町高浜、同町小浦及び石川県金沢市館町で伐採した樹木の 1992 年を含む約 10 年間の試料について、AMS 法での測定を行い、ベンゼン - 液体シンチレーション法で得た $\Delta^{14}\text{C}$ 値と比較した。さらに、石川県羽咋郡志賀町高浜及び石川県能美市辰口町の樹木について、大気圏核実験のピークが現れる 1964 年を含む 5 年間の $\Delta^{14}\text{C}$ 値を測定し、ベンゼン - 液体シンチレーション法と AMS 法による測定値の比較を行った。

2. 方法：

AMS 法を用いて、石川県羽咋郡志賀町高浜 (1987 年～1999 年) 同町小浦 (1991 年～1993 年) 及び石川県金沢市館町 (1988 年～1999 年) で伐採した樹木年輪の $\Delta^{14}\text{C}$ 値を測定した。また、石川県羽咋郡志賀町高浜及び石川県能美市辰口町で伐採した樹木について、大気圏核実験のピークが現れる 1964 年を含む 1962 年から 1966 年の樹木年輪の $\Delta^{14}\text{C}$ 値を測定した。AMS 測定用試料は、ベンゼン - 液体シンチレーション法による測定で用いた同精製セルロースから調製した。精製セルロースは、樹木から 1 年毎に剥離したチップを亜硫酸塩処理及び水酸化ナトリウム処理して得たものである。この精製セルロースを燃焼し、発生した二酸化炭素から AMS 測定用試料を作成し、 $\Delta^{14}\text{C}$ 値の測定を行った。

3.研究成果：

AMS 法では、石川県内の異なる 3 地点（羽咋郡志賀町高浜、同町小浦及び金沢市舘町）において採取したいずれの樹木においても、ベンゼン - 液体シンチレーション法に見られた 1992 年の $\Delta^{14}\text{C}$ 値の一時的な上昇は、認められなかった。

同一試料に対する AMS 法の $\Delta^{14}\text{C}$ 値とベンゼン - 液体シンチレーション法の $\Delta^{14}\text{C}$ 値を比較すると、その差は平均約 15%であり、AMS 法の値の方が全体的に低い傾向を示した。

石川県羽咋郡志賀町高浜（1987 年～1999 年）同町小浦（1991 年～1993 年）及び石川県金沢市舘町（1989 年～1998 年）で伐採した樹木年輪の AMS 法による $\Delta^{14}\text{C}$ 値を比較すると、1991 年～1993 年の志賀町高浜と志賀町小浦の値は 10%以内で一致した。1989 年～1998 年の志賀町高浜と金沢市舘町の値は、1991 年（約 14%の差）を除いて、10%以内で一致した。

AMS 法による大気圏核実験のピークが現れる 1964 年までの数年間の $\Delta^{14}\text{C}$ 値を比較すると、石川県羽咋郡志賀町高浜と石川県能美市辰口町の樹木で比較すると、大きな差は認められなかった。

4.結論・考察：

AMS 法では、石川県内の異なる 3 地点（羽咋郡志賀町高浜、同町小浦及び金沢市舘町）において採取したいずれの樹木においても、ベンゼン - 液体シンチレーション法に見られた 1992 年の $\Delta^{14}\text{C}$ 値の一時的な上昇は、認められなかった。このことから、ベンゼン - 液体シンチレーション法の測定方法に何らかの問題があったと考えられる。液体シンチレーション測定データのケミルミネセンス、静電気、電圧変動などによる異常は認められなかったことから、セルロースを燃焼してベンゼン測定試料を調製するまでの前処理過程に問題があったと考えられる。しかし、この過程における再現性については、すでに充分検討済みであるため、現在原因についてははっきりしない。今後、予備として保管してある樹木からベンゼン測定試料を調製し直し、再現性について再検討の予定である。

一方、同一試料に対する、AMS 法による $\Delta^{14}\text{C}$ 値とベンゼン - 液体シンチレーション法による $\Delta^{14}\text{C}$ 値を比較すると、その差は平均約 15%であり、AMS 法による値の方が全体的に低い傾向が認められた。これは、ベンゼン - 液体シンチレーション法において標準としている NIST シュウ酸から調製したベンゼン標準測定試料に起因することが考えられる。

石川県羽咋郡志賀町高浜（1987 年～1999 年）同町小浦（1991 年～1993 年）及び石川県金沢市舘町（1989 年～1998 年）で伐採した樹木年輪の AMS 法による $\Delta^{14}\text{C}$ 値を比較すると、1991 年の志賀町高浜と金沢市舘町の値を除いて、志賀町高浜、同町小浦及び金沢市舘町の値は 10%以内で一致した。このことから、石川県羽咋郡志賀町と石川県金沢市の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度に地域差はないことが分かった。

今回、我々は AMS での測定を平成 18 年度上期及び下期、2 回に分けて行った。上期及び下期共に、我々の測定試料の前後に、IAEA 標準物質である C6 Sucrose からグラフアイトとした AMS 用測定試料がそれぞれ 2 試料ずつ測定された。その結果、上期測定 C6 Sucrose の $\Delta^{14}\text{C}$ 測定値と値付けされた値との差は、最大で約 30%であった。このことが測定結果に影響を与えている要因のひとつとも考えられる。今後、さらに LSC 法と AMS 法とを比較することで、両測定方法の得失を明らかにでき、これまでの両測定方法の測定値を適切に評価、比較できると考える。

5.引用(参照)文献等：

Y. Yamada, K. Yasuike, K. Komura, J. Nucl. Radiochem. Sci., 6, 135-138 (2005)

Y. Yamada, K. Yasuike, M. Itho, N. Kiriyama, K. Komura, K. Ueno, J. Radioanal. Nucl. Chem., 227, 3, 37-41(1998)