

最終氷期の古富士泥流中に発見された埋没ヒノキ年輪の炭素同位体組成

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2008-01-25 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 青木, 浩, 和田, 秀樹, 新妻, 信明 メールアドレス: 所属:
URL	https://doi.org/10.14945/00000339

最終氷期の古富士泥流中に発見された埋没ヒノキ年輪の炭素同位体組成

青木 浩¹・和田秀樹²・新妻信明²

Stable carbon isotope composition of tree rings of a Japanese cypress from the Old-Fuji mudflow, of the last glacial period. :

Hiroshi AOKI¹, Hideki WADA² and Nobuaki NIITSUMA²

Abstract: The $\delta^{13}\text{C}$ fluctuation of tree rings in two Japanese cypress (*Chamaecyparis obtusa*) samples, one from the last glacial period and another from the present time, is examined. Each annual growth ring was divided into four or five segments, consisting of three earlywood segments and two latewood segments or no division of latewood, in order to measure seasonal variations within a year.

The last glacial sample has about 400 annual growth rings and the mean ring width is 0.71 mm. Pith and sapwood were not present. Seasonal variations were measured for about 10 successive annual tree rings. A secular trend analysis is presented covering 100 years. The isotopic composition for three years was measured for a modern sample from Mt. Amagi, Izu Peninsula. The tree grew over a period of about 200 years, from 1794 A.D. to 1986 A.D., and the mean ring width is 1.27 mm.

The carbon isotope composition of glacial period samples shows that the range is from -23.77 to -21.08 ‰, the mean value is -22.16 ± 0.40 ‰ and the mean seasonal fluctuation in each tree ring is 1.20 ± 0.32 ‰. That of modern samples shows that the range is from -23.00 to -21.41 ‰, the mean value is -22.29 ± 0.45 ‰ and the mean seasonal fluctuation is 0.73 ± 0.38 ‰.

Assuming the $\delta^{13}\text{C}$ values of cellulose in the Hinoki tree rings directly reflected those of atmospheric CO_2 and the secular trend in depletion of $\delta^{13}\text{C}$ values via the Suess effect, these results give good agreement with the trend of depletion in atmospheric $\delta^{13}\text{C}$ values of CO_2 ascertained by ice core analysis and C4 plant analysis. There are poor correlations between seasonal fluctuations of isotope data and dendrochronological data influenced by climatic factors.

Key words: stable carbon isotope, tree ring cellulose, last glacial, Old Fuji Volcano.

はじめに

木材の年輪は、1年輪ごとの試料が得られるので、正確に過去に遡ってその変化を追うことができる。日本のスギやヒノキなどの樹木の年輪幅の変化は生育条

件、気候因子によって特徴のある変化を示し、これを利用して樹種ごとの標準年輪曲線が求められていて、その樹木が生息していた時代を知ることができる(光谷, 1984)。

年輪を構成するセルロースの炭素同位体比研究は1970

¹名古屋大学理学部地球惑星科学科：〒464 名古屋市不老町1

Department of Earth and Planetary Science, Nagoya University, 1 Furo-cho, Nagoya 464, Japan.

²静岡大学理学部地球科学教室：〒422 静岡市大谷 836

Institute of Geosciences, School of Science, Shizuoka University, 836 Oya, Shizuoka 422, Japan.

年代から盛んに行われているが、植物の光合成に際して固定される炭素の同位体分別作用が、どのような要因に支配されているのかは、大気中のCO₂の濃度や同位体比の変化に加えて地域的气候因子による影響が考えられ、かなり複雑である。植物は光合成の過程で¹³Cより¹²Cを選択的に固定することや、大気中のCO₂の炭素同位体比の変化や気温や湿度との相関の強い例などを報告した研究があり、植物中の炭素同位体比はその生育条件と関係があると考えられている (WILSON & GRINSTED 1977; LEAVITT & LONG 1982, 1991; RAMESH *et al.* 1986; SUKUNAR *et al.* 1993; VAN KLINCKEN *et al.* 1994)。

FRANCY & FARQUHAR (1982) は、樹木セルロースの $\delta^{13}\text{C}$ 値は、植物の葉の気孔内におけるCO₂の固定速度、大気と細胞内のCO₂分圧の差によって決定されるとして、式(1)を提案した。

$$\delta^{13}\text{C} = \delta^{13}\text{C}_a - a - (b - a) \text{Ci} / \text{Ca} \dots(1)$$

$$\text{Ci} = \text{Ca} - A / g$$

a は大気中での¹²CO₂と¹³CO₂との拡散の違いによる同位体分別を示す定数、 b は光合成の炭酸還元作用する酵素による同位体分別を示す定数、 Ca 、 Ci は大気と気孔内のCO₂濃度、 A は光合成速度、 g は気孔内の大気と細胞の境界におけるCO₂拡散のコンダクタンスである。これは、気温や湿度とC3植物の $\delta^{13}\text{C}$ 値の相関を説明するものである。

光合成過程の違いにより分類されるC3植物とC4植物とでは、CO₂固定の際の同位体の分別係数が異なることが明らかとなっている (SMITH & EPSTEIN 1971)。

MARINO & McELROY (1991) は、C4植物のセルロースの $\delta^{13}\text{C}$ 値と大気中のCO₂の同位体比において、FRANCY & FARQUHAR (1982) の提案した式(1)に対応するものとして式(2)を示した。

$$\delta^{13}\text{C}_p = \delta^{13}\text{C}_a - a - (c + b - a) \text{Pi} / \text{Pa} \dots(2)$$

$\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{13}\text{C}_a$ 、 a 、 b は式(1)と同様であり、 Pi と Pa は式(1)の Ca 、 Ci にあたる。 c は炭酸イオン固定の触媒酵素と糖代謝の重要な中間体の両者の影響による同位体分別、 ϕ は光合成でのCO₂の吸収と放出を示す定数である。この中で、定数は植物によって一定であり、温度などの気候因子に依らないことを示した。そして、MARINO *et al.* (1992) は、このC4植物の性質を用いて最終氷期における大気中のCO₂の $\delta^{13}\text{C}$ 値を推定が可能であることを示した。具体的には北米大陸にすむモリネズミが巣に持ち込んでいたC4植物である低木の*Atriplex confertifolia*の $\delta^{13}\text{C}$ 値を測定したものである。その結果より計算した大気中の炭素同位体比は、最終氷期では産業革命の前の頃の-6.3‰と比べて約1‰小さい炭素同位体比の-7.1‰を示した。

大気中のCO₂の変化を直接調べた例として、極地域の氷床中に残された気泡中のCO₂の研究がある。アイスコアより得られるCO₂の濃度は、最終氷期には約200 ppmvであり、産業革命前の約280 ppmvより低濃度を示している (LORIUS *et al.* 1985, BARNOLA *et al.* 1987, LEUENBERGER *et al.* 1992)。南極氷床のアイスコア内の気泡中のCO₂を測定した結果は、産業革

命の前の頃の大気中の $\delta^{13}\text{C}$ 値が-6.5‰で、最終氷期では-6.9‰である (LEUENBERGER *et al.* 1992)。この結果と木材試料の測定結果は、同様の傾向を示しており、最終氷期の方が $\delta^{13}\text{C}$ 値が小さくなっている。大気中のCO₂が光合成によって植物に取り込まれる時には、光合成によって大気中のCO₂が1 ppm減少すると $\delta^{13}\text{C}$ 値は0.05‰増加する (青木 1994)。アイスコアの測定結果の80 ppmvの差が、植物の光合成のみによって引き起こされたとする、最終氷期の大気中のCO₂の $\delta^{13}\text{C}$ 値は、逆に4‰増加していなければならない。また、同様に最終氷期は現在より生物量が大きいことになる。このようにし、氷期の大気中のCO₂の $\delta^{13}\text{C}$ 変化と濃度変化の関係は、植物による炭素固定のみでは説明できない。

気候因子と年輪幅との間に相関があり、年輪のセルロース中の $\delta^{13}\text{C}$ 値が気候因子と相関があるならば、 $\delta^{13}\text{C}$ 値と年輪幅(成長量)の間にも相関があると期待される。KITAGAWA & WADA (1993) は、伊豆半島で得られたスギ材 (*Cryptomeria japonica*) の1年輪内を5分割して、材の成長期のセルロースの $\delta^{13}\text{C}$ の変化を求め、年輪の $\delta^{13}\text{C}$ 値の1年の変動が平均して $1.40 \pm 0.34\%$ であり、樹木に固定される炭素の同位体比の変化のパターンがINOUE & SUGIMURA (1985) による筑波での大気中のCO₂の $\delta^{13}\text{C}$ 値の季節変化と類似していることを報告し、スギ材セルロースの $\delta^{13}\text{C}$ の季節変化は、大気中のCO₂の変化に対応していると考えた。

木材セルロースの $\delta^{13}\text{C}$ が、大気中のCO₂の変化に対応しているとするものに、スース効果(すーす効果)があげられる (Suess 1955)。これは、産業革命以後の大気への人為的な同位体的に軽いCO₂の放出の影響が木材中の $\delta^{13}\text{C}$ に現れるもので、FREYER & BELACY (1983) によれば、ヨーロッパで生育したオーク材では、A. D. 1850からA. D. 1980の間にセルロースに固定されている炭素の同位体比はおおよそ2‰減少していると報告している。

また、OGLE & McCORMAC (1994) は、北アイルランドのオークの年輪を24~35に分割して $\delta^{13}\text{C}$ 値の季節パターンを測定した。その結果、春先の芽吹きによる成長の大きな時期に $\delta^{13}\text{C}$ 値が小さくなり (spring depletion)、その後は大気の変化と類似したパターンをとることを発見した。

本研究では、(1)氷河時代の年輪内に残された $\delta^{13}\text{C}$ 値の変化と現世のそれを比較し、大気中のCO₂の $\delta^{13}\text{C}$ の変化を明らかにすること。(2)現世試料において確認されている年輪内の $\delta^{13}\text{C}$ の季節変動が、埋没試料においても存在するか否か確認すること。(3)最終氷期の大気中のCO₂の年周の変動を推定する可能性の検討。(4)樹木成長と年輪内 $\delta^{13}\text{C}$ 値との関係を明らかにすることを目的としている。

さらに、極地域のアイスコアの気泡中のCO₂の測定による最終氷期の大気中のCO₂の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ の関係と地表生物の総量変化との関係を明らかにしたいと考える。その為に、富士山噴出物である古富士泥流中の氷河時代の埋没試料と現世の試料を測定の対象とし、年輪内セルロースの同位体比の測定とともに年輪幅の測定も行った。

試 料

本研究では、最終氷期の地層に埋没していたヒノキ材と現世に生息するヒノキ材を用いた。その採取地を Fig. 1 に示す。

埋没材は1969年3月1日に静岡県富士宮市の古富士泥流より掘り出されたもの（以下 OLFC と呼ぶ）で、樹種鑑定は山梨林業試験場による。試料は富士宮市黒田の潤井川右岸に露出した古富士泥流層から直立して発見され、その長さは約2.2m、樹芯と辺材はなく幹の1/4ほどが発見された。年輪と垂直方向の大きさは最大30cmである。確認された年輪数は394で、平均の年輪幅は0.71mmである。この試料は、合成メタノールによる液体シンチレーション法で¹⁴C年代が求められ、18500±300 B.P. であることが山田 他 (1972) によって報告されている。この試料を1993年7月に富士宮市教育委員会より提供して頂いた。

OLFC の平均年輪幅と同じような平均年輪幅を持つ地域として木曽地域があげられる。木曽地域のヒノキ材（名古屋営林局（現・支局）付知営林所管内の材 東経137°30'北緯35°40'海拔 約1300~1600mより採集）

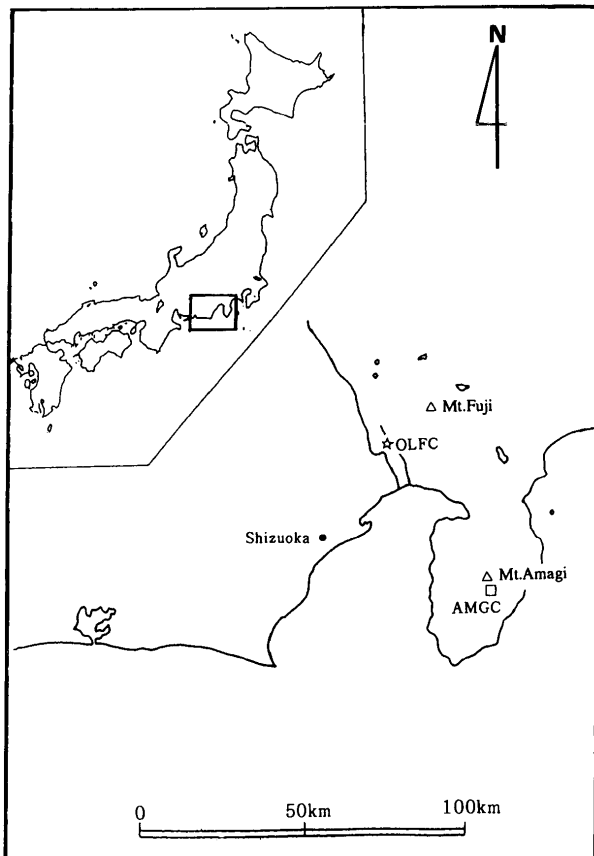


Fig. 1 Sampling localities of Hinoki trunks (Japanese cypress) studied in this study. Sampling sites of Japanese cypress from Mt. Amagi (AMGC) and from Old-Fuji mudflow (OLFC) are indicated by asterisk and square, respectively.

の平均年輪幅は0.69mmであり、OLFCの平均年輪幅とはほぼ等しい。従って、OLFCの生息環境として木曽地域と同様な気象条件が考えられる。

古富士泥流は古富士火山の活動により発生した火山泥流で、町田 (1964 a,b) は、その成因として、特に3~1.5万年前の最終氷期の厳寒期に富士山頂の氷河が、高温の火山噴出物によって溶かされて泥流が発生したという仮説を提唱した。さらにYAMAZAKI (1992) によって層序学的に研究が進められ、富士山南西部には5枚の泥流堆積物があることが報告されている。

現世のヒノキ材の試料（以下 AMGC）は、伊豆半島中央部の天城山南麓において、A.D. 1986に伐採された樹幹の円盤で、直径は約50cmである。A.D. 1986~ A.D. 1794の193年分確認された。A.D. 1986~ A.D. 1857の間の平均の年輪幅は1.27mmである。

実験方法

A. 樹木成長量の表記法

樹木の年輪幅は樹齢が進むにつれて狭くなる傾向にある。これは幹の外縁部になるほど同じ年輪幅であっても大きな生産量が必要となるため、実際の成長が大きく衰えていくわけではない。従って、本研究では樹木成長量として、横断面の面積を用いた。面積は年輪境界と樹芯との距離を平均し、幹が円形であると仮定して、 $S = \pi r^2$ の円の面積を求める公式に当てはめて計算した。

OLFCについては樹芯が失われてしまっているため、樹芯からの距離を正確に導き出すことができない。しかし、試料にはいくつかの「ふし」見付き、この「ふし」が樹芯に近いところにある時、その「ふし」は、樹芯方向から伸びていると仮定できる。その時それぞれの「ふし」の延長線が交差する点を樹芯として成長量を見積もった。

そして、その年の樹木の成長量を年輪幅を測定した期間（OLFC : ring No.60~393, AMGC : A.D. 1857~ A.D. 1986）の平均成長量で割ったものを標準成長量として指標に用いた。これにより、個体ごとの成長量の差を打ち消すことができ、1年ごとの成長が樹木の生育していた期間に対してどのような変化をしていったかを知ることができる。

B. セルロースの抽出

木材には様々な成分が含まれており、それぞれの持つ同位体比に違いがあることが、BENNEA *et al.* (1987) により報告されている。また、木材内の部位による各成分の含有率に違いがあることが、知られている（原口他 1985）。従って、各成分が混在する木材試料を相互に比較するためには、単成分であり、しかも抽出処理の簡便なセルロースの同位体比測定を行うことにした。

セルロースの抽出処理は、Fig. 2に示したフローチャートに沿って行った。脱リグニンの塩素処理についてはWiseの亜塩素酸塩法を元にした方法（KITAGAWA &

WADA 1993) を用いた。

ブロック状に切り出した試料の柾目面をマイクロームを用いて、 $150\mu\text{m}$ の厚さで10~20の年輪が含まれる薄状試料を作る。これをソックスレー抽出器にセットしてベンゼンとメタノールの2:1混合溶液を用い24時間抽出を行い、風乾し、続けてアセトンを用い24時間抽出を行い、木材に含まれる樹脂分を抽出する。次に、亜塩素酸ナトリウム0.5g、酢酸0.1ml、水75mlの割合で混合した溶液に試料を浸け、 60°C で4時間加熱し、リグニンを抽出する。乾燥させた試料を顕微鏡下でカミソリを用いて年輪と平行方向に分割する。OLFCはKITAGAWA & WADA (1993) にならって、早材部分を3つに晩材部分を2つの5つに分割し、AMGCは晩材部分が狭く2つに分割できないため晩材の分割は行わずに早材部分の3つと晩材部分の4分割を行った。分割した試料を試験管に入れ、17.5%水酸化ナトリウム溶液を加え、1時間超音波洗浄器にかけ、ヘミセルロース成分を溶出させる。これを蒸留水で洗浄し、同位体測定用のセルロース試料とした。

本研究で季節変動が測定された年輪は、OLFCでは年輪幅が一番広い部位とその周辺を、AMGCでは同一の薄状試料中の年輪幅の変化が大きい部位を選択した。

C. 木材セルロースの炭素同位体比測定法

セルロースの炭素同位体比の測定のためにセルロースを燃焼させ二酸化炭素ガスにしなければならない。これには、原理的にはCRAIG (1954) の燃焼装置が基本で、酸素気流中で燃焼ガスを循環させ二酸化炭素にする方法と、酸化剤を加えて真空封入して加熱し燃焼させる2通りの方法がある。

前者の方法では、微量での測定になると酸素ポンペに含まれる二酸化炭素ガスや炭化水素起源の二酸化炭素の影響が大きくなる(和田ほか 1984 a)。

後者の方法は、試料外起源の二酸化炭素が発生しない様な環境を整えることができ、低バックグラウンドで試料を燃焼させることができるため、本研究では後者の方法を採用した。

本研究で酸化剤に用いた酸化銅は、銅の金網を酸素気流中において 700°C で酸素を吸収しなくなるまで燃焼させ作製したもので、使用にあたって 800°C で5時間大気中で空焼きを行った。この酸化銅100mgを加えた空試験から、およそ $0.2\mu\text{l}$ の CO_2 が発生することを確認した。

試料を酸化銅とともに外径6mmのパイレックス管に入れ、セルロース抽出の際に塩酸を用いた試料については塩素ガスの発生を防ぐために銀線を入れる。このパイレックス管は、あらかじめ一方を閉じ 550°C 、2時間空焼きをしたものを用いた。試料を入れたパイレックス管をCajon ジョイントを用いて真空ラインに接続し、プロパンガス-酸素炎で焼き切り真空封入した。

酸化銅は 950°C 以上になると、封入管に使用しているガラスの石英と反応して珪酸塩を作る。すると、管に穴が開いたり割れたりする。また、パイレックス管の軟化点を考慮して、試料を 550°C で10時間加熱し、燃焼させた。

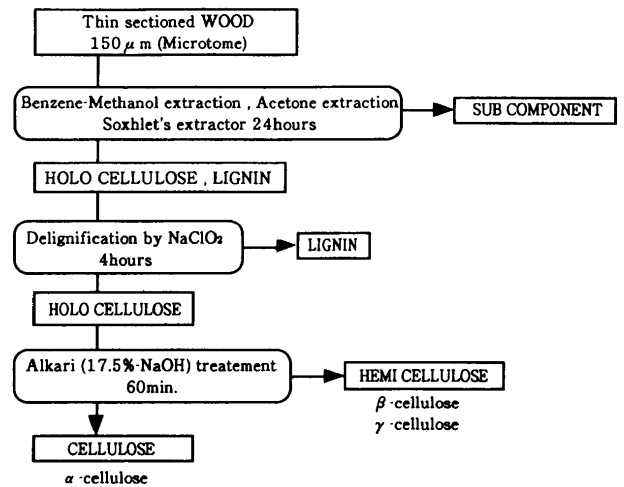


Fig. 2 Separating procedure of α -cellulose.

炭素同位体比測定は、静岡大学理学部地球科学教室に設置してある、Finnigan MAT社製MAT-250型質量分析計を用いた。二酸化炭素ガスの精製は、この質量分析計に直接接続されている、二酸化炭素ガス精製用ガラスラインを用いた。試料ガスに水蒸気が含まれていると、水分子から解離した水素イオン(質量数[1])が $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ (質量数[44])のイオンに影響を及ぼし、質量数[45]のカウント数が多くなり、見かけ上 $\delta^{13}\text{C}$ 値が大きくなってしまふ。和田ほか(1991)に従い試料ガスの精製を行うと、*n*-ペンタンの融点温度のトラップを使って CO_2 と H_2O の分離を行うが、冷却温度を常にモニタしていないため、時にはトラップ温度が上昇し、水分子が移動し、上記の様な $\delta^{13}\text{C}$ 値に影響があることが見られた。本研究ではこの現象を防ぐために、Horibe trapに従来の米国ネスラップ社製クライオクールによる約 -96°C のアルコールに代えて*n*-ペンタンの融点付近に温度をコントロールしたトラップをつけ試料ガスを通させ、また、常にその温度をモニタし、精製中の温度を -125°C ~- 130°C に保った。これにより、液体窒素・*n*-ペンタンの差し替えという方法をとらずに、二酸化炭素を精製することができる。このトラップは下部での温度が*n*-ペンタンの融点である -131°C であっても、トラップの液面近くの上部は高温になっている。トラップ液面より2cm以内の温度が -125°C 以下であれば、試料ガスの水蒸気は完全に取り除くことができる。また、トラップの温度が低すぎると、試料ガスの一部がトラップされ、同位体分別が引き起こされ、測定された $\delta^{13}\text{C}$ 値は小さくなる。従って、トラップの温度は厳密にコントロールする必要がある。

また、試料ガス精製の前述以外の方法及び、質量分析の測定方法は、和田ほか(1984 a,b)に従って行い、測定結果をPDB標準(CRAIG, 1957)を用いて表記している。

結果と考察

A. 微量セルロース試料測定法の検討

本研究での試料についての燃焼状況について試料の重量と発生した二酸化炭素ガスの量を Fig. 3 に示す。試料は110°C, 8時間の乾燥後, 電子ウルトラマイクロ天秤を用いて秤量した。bulkの試料は, 無処理の木材を封入, 燃焼させたもので, これにはセルロースの他にリグニン成分なども含まれている。リグニンはセルロースに比べて炭素含有量が高いために, 他の試料に比べ bulkの試料は高いガスの発生率を示し, ホロセルロース, セルロースとなるにつれてガスの発生率が低下していく。

セルロース試料の重量と発生ガス量が, ほぼ直線関係になることから, 化学量論的に反応が進んでいることがわかる。

セルロースの構造単位は $C_6(H_2O)_5$ で表されることがから, その炭素含有量が44.4%であることが分かる。Fig. 3 に引かれた cellulose 100%のラインはその割合

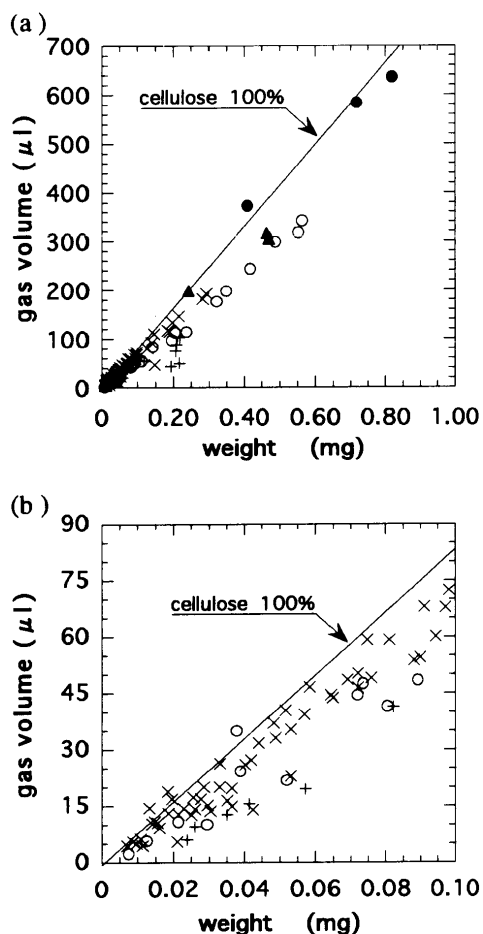


Fig. 3 Relationship between CO₂ gas evolved (μl) and sample amount (mg). The solid line shows estimation of CO₂ gas release from cellulose (44.4% carbon contents). ○: cellulose powder ●: bulk (OLFC) ▲: holo-cellulose (OLFC) ×: cellulose (OLFC) +: cellulose (AMGC) (a) Normal plot. (b) Small scale plot.

を利用してセルロースに含まれる炭素が, 全て二酸化炭素ガスになったとしたときに発生するはずの二酸化炭素ガスの量の理論上のラインである。本研究の試料においては, 二酸化炭素ガスの発生率は平均して571.7 μl / 1 mgであり, この理論線と比べて60%程の発生率しか得られていない。この差を生じさせる原因として秤量誤差や試料に含まれるセルロース以外の灰分や水分などの物質により試料重量が実際より重く量られている可能性が考えられる。秤量中にも空気中の水分を吸ってどんどん重くなっていくために, 特に水分の影響は大きいと考えられる。

B. 年周変動

1年をいくつかに分割した試料についての同位体比測定の結果を, Fig. 4 に示す。OLFC では11年分年輪内5分割, 54の測定をし, 各測定の最小値は-23.77‰, 最大値は-21.08‰で2.69‰の変動が確認された。各1年内の年輪中での変動幅は0.54‰から1.49‰の範囲であり, 平均すると 1.20 ± 0.32 (1σ) ‰ である。No.160の測定が5つの断片の3つ目の測定結果が無いために, この変動幅の議論ではNo.160の結果を除いている。AMGCでは3年分の測定があり, 最小で-23.07‰から最大の-21.41‰までの1.66‰の差が確認された。1年の中での変動幅は0.47‰から1.17‰の範囲であり, 平均すると 0.73 ± 0.38 (1σ) ‰ である。また, それぞれの平均値については, 後述の長期変化にて論じる。

これら2つの試料の1年間の年輪内同位体比の変動と標準成長量の関係を Fig. 5 に示す。2つ試料の1年間の年輪内同位体比の変動の平均値を t 検定すると, 現時点でのデータからは信頼度95%で有為な差は認められない。

現在の炭素循環のモデルでは, 植生の影響による1年間の炭素の移動量は大気との間で120 Gt C であるのに対して, 化石燃料の消費による炭素の放出量は, わずかに5 Gt C である。生物圏によって固定・放出される炭素量が化石燃料の消費によって大気に放出される量に比べて圧倒的に大きいことが, 現世試料と氷河期の試料の1年間の年輪内同位体比の変動は互いに有意な差が見られない一因と考えられる。

1年間の年輪内同位体比の温度因子による影響について考察する。樹木に固定される炭素の同位体比の変化を温度の係数として求めようとするときには, 樹木の成長期における温度の変化幅を正確に知る必要があり, 単純に1年間の年輪内同位体比の変動と気温データは比較できない。本研究で見いだされた季節変動は早材で小さな $\delta^{13}C$ 値から急激に増加し, 成長の終わりである晩材の最後では $\delta^{13}C$ 値がわずかだが再び小さくなる。この変化は春から夏にかけ温度が上がるに連れ, $\delta^{13}C$ 値が大きくなるので, 年輪内の $\delta^{13}C$ 値の変動と温度には見かけ上, 正の相関があることがわかる。しかし, 一般的に植物成長量の増大とともに, 大気中の二酸化炭素の同位体比は重くなっていく傾向がある。これは, 光合成によって, より軽い二酸化炭素ガスが固定され, 結果として相対的に重い二酸化炭素ガスが大気に取り残されるためと考えられる (INOUE &

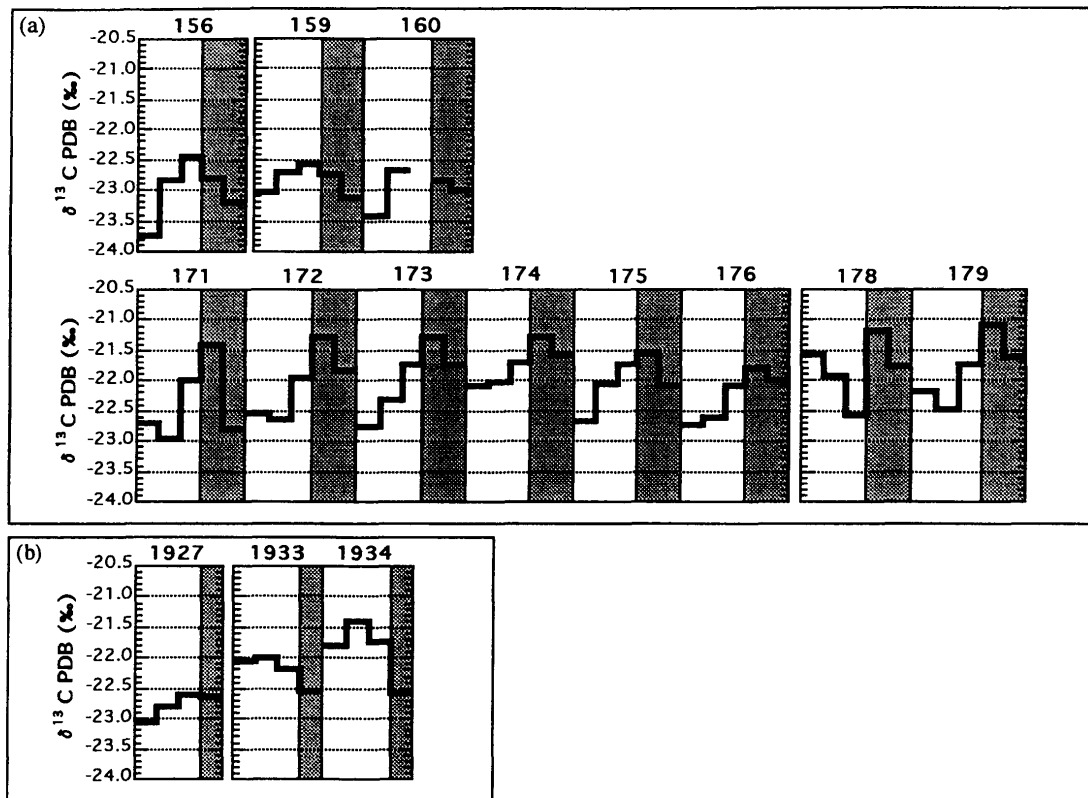


Fig. 4 Seasonal fluctuations within rings of Japanese cypress. The shadowed parts show latewood. (a): Japanese cypress from Old-Fuji mudflow (OLFC). Numbers indicate the ring numbers counted up from the innermost ring. (b): Japanese cypress from Mt. Amagi (AMGC). Numbers indicate the year of growth, A.D.

SUGIMURA 1985). すると生物生産が大きくなるにつれて、年輪内の炭素同位体比の季節変動の変動が大きくなることが予想される。

ヒノキ材の成長量がそのまま植物生産量を代表しているわけではないが、樹木の1年間の年輪内の炭素同位体比の季節変動が、KITAGAWA & WADA (1993) で述べられているように、大気中の二酸化炭素ガスの同位体比の変化を示しているのならば、生物生産量が大きいほど1年間の大気中の二酸化炭素ガスの同位体比の変化は大きくなる。しかし、Fig. 5 .a に示された ring No.171~179 の9年分での標準成長量とその年の年輪内 $\delta^{13}\text{C}$ 値の変化では、標準成長量の増加とともに1年間の年輪内同位体比の変動が小さくなっていく傾向が見られ、前述の成長と大気中の二酸化炭素ガスの同位体比変化の関係と相容れない。測定数は少ないが、AMGC では逆の傾向が見られる。北川 (1986MS) と黒田 (1987 MS) のスギ材に見られるように、現状では年輪幅と樹木セルロースの $\delta^{13}\text{C}$ 値の間には相関関係は認められない。1年の年輪内同位体比の変動は、樹木成長に関わる気象要素よりむしろその時々の大気中の二酸化炭素ガスの同位体比の変化を反映していると考えの方が妥当であろう。

C. 経年変化

OLFC について、それぞれの季節変化の測定結果を

平均した1年ごとの測定結果を ring No. で示したものが Fig. 6 となり、樹木年輪の成長量との関係を示したものが Fig. 7 になる。No.160の5つの季節断片のうち3つ目の測定結果が無いため、このプロットではNo.160を除いている。これらの $\delta^{13}\text{C}$ 値は最小 -23.00‰ から最大 -21.60‰ で、平均すると -22.16 ± 0.40 (1σ) ‰ になる。

AMGC については測定数が少なく不確かであるが Table 1 に示したように、最小 -22.78‰ から最大 -21.88‰ で、平均すると -22.29 ± 0.45 (1σ) ‰ になる。OLFC と AMGC のふたつの平均値を t 検定を行うと95%の信頼度で有為な差は認められない。

また、KITAGAWA (1988MS) によると伊豆の長九郎山から得られたヒノキ材の1930年頃の $\delta^{13}\text{C}$ 値は -21.7‰ であり、本研究の AMGC の測定結果より 0.6‰ 大きな値を示した。また、天城山から得られた現世のスギ材の1930年頃の $\delta^{13}\text{C}$ 値は -22.6‰ であり (北川, 1986MS)、ヒノキのセルロースの $\delta^{13}\text{C}$ 値は同じ年代のスギのセルロースと比べて、約 1‰ 程大きな値をとる。今回の AMGC の $\delta^{13}\text{C}$ 値は、スギ材の $\delta^{13}\text{C}$ 値には比べてなお 0.3‰ 程大きな値をとる。また、OKADA *et al.* (1995) によれば、静岡県水窪に生育したヒノキ材の1680年から1989年までの $\delta^{13}\text{C}$ 値は、 -23.1‰ から -20.4‰ を示しており、今回の現世ヒノキの $\delta^{13}\text{C}$ 値と似ている。北川 (私信) によると屋久スギのセルロース $\delta^{13}\text{C}$ 値は生育地の平均

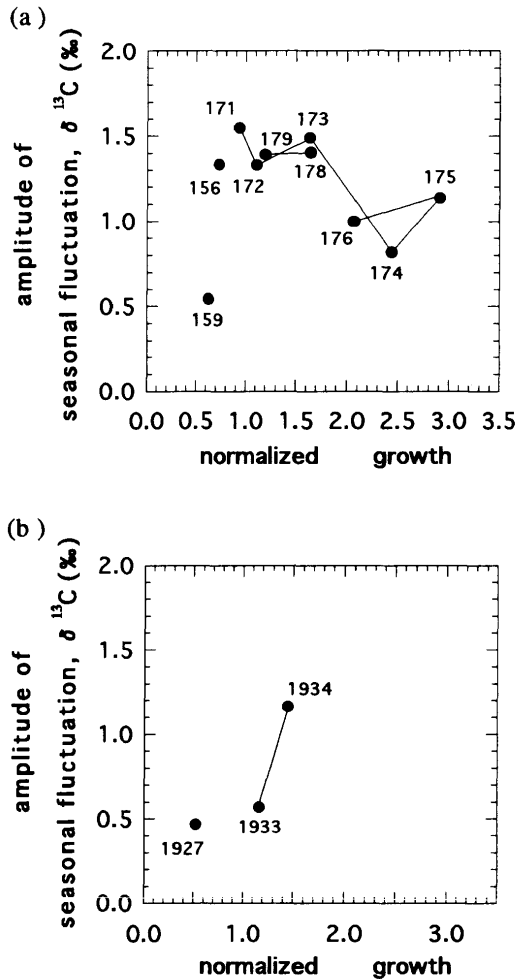


Fig. 5 Relationship between the amplitude of seasonal $\delta^{13}\text{C}$ fluctuation of tree-ring cellulose and normalized growth. (a): Japanese cypress from Old-Fuji mudflow (OLFC). Numbers indicate the ring number counted up from the innermost ring. (b): Japanese cypress from Mt. Amagi (AMGC). Numbers indicate the year of growth, A.D.

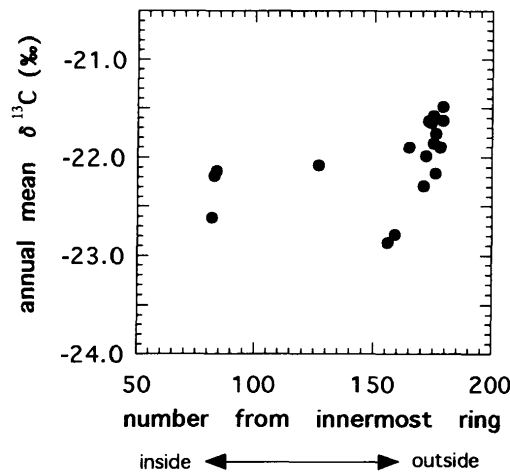


Fig. 6 The secular variation of annual mean $\delta^{13}\text{C}$ value of tree-ring cellulose of Japanese cypress from Old-Fuji mudflow (OLFC) (from ring No. 82 to No. 179).

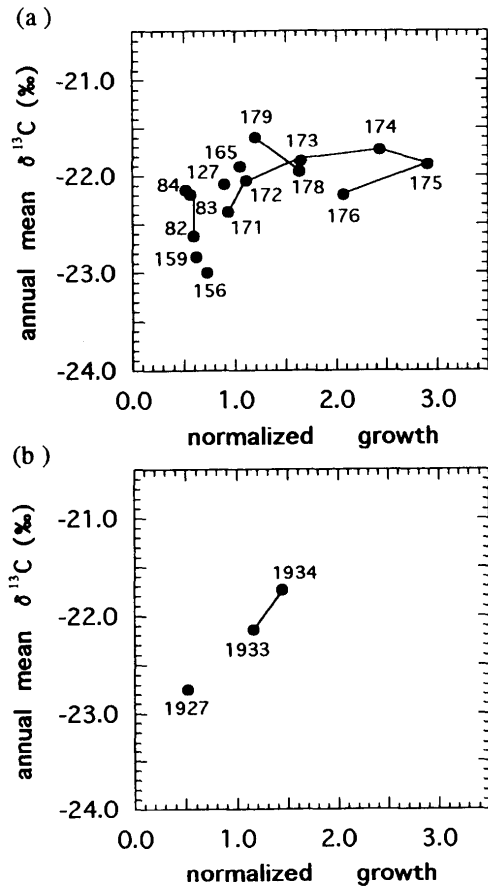


Fig. 7 Relationship between annual mean $\delta^{13}\text{C}$ value of tree-ring cellulose within rings and normalized growth. (a): Japanese cypress from Old-Fuji mudflow (OLFC). Numbers indicate the ring number counted up from the innermost ring. (b): Japanese cypress from Mt. Amagi (AMGC). Numbers indicate the year of growth, A.D.

気温が低くなる程 $\delta^{13}\text{C}$ に富む傾向にあり、また、年輪成長量も大きい。これにより同位体分別の温度勾配を計算し、 -0.30°C を示した。

KITAGAWA & WADA (1993) によれば伊豆半島天城山のスギ材セルロース $\delta^{13}\text{C}$ 値は、産業革命以降確実に減少傾向を示し、1960年代には、ヨーロッパ等でも見られたような $\delta^{13}\text{C}$ 値の増加が一時認められ、1980年頃にかけて再び減少している。この変化は大気 CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ 値の変化と大変よく似ていて、樹木年輪セルロースの $\delta^{13}\text{C}$ 値は、大気 CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ 値の変化を反映していることは、かなり確かであると考えられる。KITAGAWA & MATSUMOTO (1993) の屋久スギの結果も同様の傾向が認められ、本研究で用いたヒノキ材の $\delta^{13}\text{C}$ 値に対応する1930年頃の気候は、産業革命以前の気候に比べて0.5%程 $\delta^{13}\text{C}$ 値が小さかったと考えられる。これを補正して、AMGCの測定結果からそれぞれ0.5%を加算したものの平均とOLFCの平均とをt-検定すると信頼度95%では有為な差が認められないものの、80%では有為な差が認められる。その平均値の差は0.4%あり、最終氷期の試料の方が現世の試料より軽い $\delta^{13}\text{C}$ を示す。これらは、LEUENBERGER *et al.* (1992) による氷床のアイスコア内の気泡の中の CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ 値は産業革命の前の大気中 CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ 値より0.4%程 ^{12}C に

Table 1 Lists of isotopic results. (a): Japanese cypress from Old-Fuji mudflow (OLFC). (b): Japanese cypress from Mt. Amagi (AMGC). E and L indicate earlywood and latewood, respectively.

(a)		$\delta^{13}\text{CPDB} (\text{‰})$			
ring no.		seasonal	annual mean		
82			-22.62	175 E1	-22.67
83			-22.19	E2	-22.05
84			-22.15	E3	-21.73
127			-22.09	L1	-21.53
156 E1	-23.73			L2	-22.10
E2	-22.84				-22.02
E3	-22.44			E1	-22.38
L1	-22.80			E2	-21.75
L2	-23.18	-23.00		L1	-21.53
159 E1	-23.03			176 E1	-22.73
E2	-22.69			E2	-22.61
E3	-22.58			E3	-22.09
L1	-22.74			L1	-21.79
L2	-23.13	-22.83		L2	-21.98
160 E1	-23.41			178 E1	-21.57
E2	-22.66			E2	-21.94
L1	-22.85			E3	-22.58
L2	-23.01			L1	-21.18
165 E	-22.18			L2	-21.75
L	-21.47	-21.83		179 E1	-22.19
171 E1	-22.70			E2	-22.47
E2	-22.96			E3	-21.74
E3	-22.00			L1	-21.08
L1	-21.41			L2	-21.60
L2	-22.81	-22.38		E	-21.88
172 E1	-22.55			L	-21.04
E2	-22.62				-21.46
E3	-21.96				
L1	-21.29				
L2	-21.83	-22.05			
173 E1	-22.76				
E2	-22.30				
E3	-21.72				
L1	-21.27				
L2	-21.73	-21.96			
174 E1	-22.10				
E2	-22.02				
E3	-21.70				
L1	-21.28				
L2	-21.56	-21.73			
E2	-22.39				
L2	-21.40				

(b)		$\delta^{13}\text{CPDB} (\text{‰})$	
year		seasonal	annual mean
1927 E1	-23.07		
E2	-22.81		
E3	-22.60		
L	-22.63	-22.78	
1933 E1	-22.06		
E2	-21.98		
E3	-22.20		
L	-22.55	-22.20	
1934 E1	-21.80		
E2	-21.41		
E3	-21.72		
L	-22.58	-21.88	

富んでいる報告や MARINO *et al.* (1992) の結果と同様な結果を示す。

最終氷期の埋没林のセルロース $\delta^{13}\text{C}$ 値から大気 CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ 値を推定する方法は、気象因子、特に湿度による気孔の開閉の効果による変化が大きい砂漠や半乾燥地域では否定的な見解が多いが、日本のような樹木成長時期が多湿である地域においては、大気 CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$

値との相関があると考えられる。

本研究の測定結果より、最終氷期の大気の CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ 値の変化を知るためには、樹木の生理的同位体分別効果を詳しく知る必要があるが、年周変化が現世のみならず約 2 万年前の埋没樹幹の年輪にも同様に認められたのは新たな発見である。これらの変化が大気中の CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ 値と関係しているならば、長期的な大気中 CO_2

の $\delta^{13}\text{C}$ 値の変化とも確実に関連しているはずである。

結 論

・古富士泥流中から発見されたヒノキ試料と、伊豆半島天城山から採集したヒノキ試料の年輪内に炭素同位体組成に年周の季節変動が確認できた。古富士泥流中から発見されたヒノキ試料については、その $\delta^{13}\text{C}$ 値は、早材前期から晩材前期にかけて上昇していき、晩材後期には減少する傾向が見られた。

・古富士泥流から発見された試料の同位体比は、平均 $-22.16\pm 0.40\%$ 、年間の季節変動の幅は、平均 $1.20\pm 0.32\%$ である。また、伊豆半島天城山から採集したヒノキ試料では、それぞれ $-22.29\pm 0.45\%$ と $0.73\pm 0.38\%$ の値を示す。平均値の変化が大気中 CO_2 の変化と仮定し、人為的 CO_2 放出による大気中 $\delta^{13}\text{C}$ 値の減少を考えた場合、アイスコアの CO_2 やC4植物から推定される氷期の炭素同位体比の記録と同様な傾向を示している。

謝 辞

本研究にあたり静岡大学理学部の鈴木款博士には多くの助言を頂くとともに本稿の査読をして頂いた。また、名古屋大学農学部の米延仁志博士に多くの助言を頂いた。測定にはM. SATISHI氏、試料採集時の情報について富士宮市教育委員会の伊藤昌光氏の協力を得た。さらに森林総合研究所の岡田直紀博士に本稿の査読をして頂き、静岡大学理学部のR. ROSS博士には英語の校正をして頂いた。記して感謝いたします。

引用文献

- 青木周司(1994), 二酸化炭素のゆくえについて. 天気, 41, 721 - 727.
- BARNOLA J. M., RAYNAUD D., KOROTKEVICH Y. S. & LORIUS C. (1987), Vostok ice core provides 160,000 - year record of atmospheric CO_2 . *Nature*, **329**, 408 - 414.
- BENNEA R., FOGEL M. L., SPRAGUE E. K. & HODSON R. E. (1987), Depletion of ^{13}C in lignin and implications for stable carbon isotope studies. *Nature*, **329**, 708 - 710.
- CRAIG H. (1954), Carbon-13 variations in *Sequoia* rings and the atmosphere. *Science*, **119**, 141 - 143.
- CRAIG H. (1957), Isotopic standards for carbon and oxygen and correction factors for mass - spectrometric analysis of CO_2 . *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **12**, 133 - 149.
- FRANCEY R. J. & FARQUHAR G. D. (1982), An explanation of $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ variation in tree rings. *Nature*, **297**, 28 - 31.
- FREYER H. D. & BELACY N. (1983), $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ records in Northern Hemispheric trees during the past 500 years - Anthropogenic impact and climatic superpositions. *Journal of Geophysical Research*, **88**, 6844 - 6852.
- 原口隆英・寺島典二・白田誠人・越島哲夫・坂井克己・諸星紀幸・寺谷文之・甲斐勇二・志水一允・榎原彰 (1985), 木材の化学. 文永堂
- INOUE H. & SUGIMURA Y. (1985), The carbon isotope ratio of atmospheric carbon dioxide at Tsukuba, Japan. *Journal of Atmospheric Chemistry*, **2**, 331 - 344.
- 北川浩之 (1986MS), 木材セルロースの炭素同位体組成. 静岡大学理学部地球科学科卒論. **121**,
- KITAGAWA H. (1988MS), Stable carbon isotopes in tree - ring cellulose. Masters thesis of Shizuoka University, **18**, 41p.
- KITAGAWA H. & MATSUMOTO E. (1993), $\delta^{13}\text{C}$ records of Japanese cedars from Yakushima Island and past atmospheric CO_2 . *Geochemical Journal*, **27**, 397 - 402.
- KITAGAWA H. & WADA H. (1993), Seasonal and secular $\delta^{13}\text{C}$ variations in annual growth rings of a Japanese cedar tree from Mt. Amagi, Izu Peninsula, Central Japan. *Geochemical Journal*, **27**, 391 - 396.
- 黒田晃弘 (1987MS) 杉材による年輪年代法の研究. 静岡大学理学部地球科学科卒論, **148**, 93p.
- LEAVITT S. T. & LONG A. (1982), Evidence for $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ fractionation between tree leaves and wood. *Nature*, **298**, 742 - 744.
- LEAVITT S. T. & LONG A. (1991), Seasonal stable - carbon isotope variability in tree rings: possible paleoenvironmental signals. *Chemical Geology*, **87**, 59 - 70.
- LEUENBERGER M., SIEGENTHALER U. & LANGWAY C. C. (1992), Carbon isotope composition of atmospheric CO_2 during the last ice age from an Antarctic ice core. *Nature*, **357**, 488 - 490.
- LORIUS C., JOUZEL J., RITZ C. MERLIVAT L., BARKOV N. I., KOROTKEVICH Y. S. & KOTLYAOV V. M. (1985), A 150,000 - year climatic record from Antarctic ice. *Nature*, **316**, 591 - 596.
- 町田 洋 (1964a) Tephrochronology による富士火山とその周辺地域の発達史 - 第四記末期について - (その1). 地学雑誌, **73**, 293 - 308.
- 町田 洋 (1964b) Tephrochronology による富士火山とその周辺地域の発達史 - 第四記末期について - (その2). 地学雑誌, **73**, 337 - 350.
- MARINO B. D. & McELROY M. B. (1991), Isotopic composition of atmospheric CO_2 inferred from carbon in C4 plant cellulose. *Nature*, **349**, 127 - 131.
- MARINO B. D., McELROY M. B. & SALAWITCH R. S. (1992), Glacial - to - interglacial variations

- in the carbon isotopic composition of atmospheric CO₂. *Nature*, **357**, 461 - 466.
- 光谷拓実 (1984), 日本における年輪年代学. 名古屋営林局誌「みどり」, 312.
- OGLE N. & McCORMAC F. G. (1994), High-resolution $\delta^{13}\text{C}$ measurements of oak show a previously unobserved spring depletion. *Geophysical Research Letters*, **21**, 2373 - 2375.
- OKADA N., FUJIWARA T., OHTA S. & MATSUMOTO E. (1995), Stable carbon isotopes of *Chamaecyparis obtusa* grown at a high altitude region in Japan: within- and between-tree variations. *In: Abstracts of International Workshop on Asian and Pacific Dendrochronology*, 6. 1.
- RAMESH R., BAHATTACHARYA S K. & GOPALAN K. (1986), Climatic correlations in the stable isotope records of silver fir (*Abies pindrow*) trees from Kashmir, India. *Earth and Planetary Science Letters*, **79**, 66 - 74.
- SMITH B. N. & EPSTEIN S. (1971), Two categories of $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratios for higher plants. *Plant Physiology*, **47**, 749 - 753.
- Suess H. E. (1955), Radiocarbon concentration in modern wood. *Science*, **122**, 415 - 417.
- SUKUMAR R., REMESH R., PANT R. K. & RAJAGEOPALAN (1993), A $\delta^{13}\text{C}$ record of climate change from tropical peats in southern India. *Nature*, **364**, 703 - 706.
- VAN KLINKEN G. J., VAN DER PLICHT H. & HEDGES E. M. (1994), Bond $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratios reflect (palaeo-) climatic variations. *Geophysical Research Letters*, **21**, 445 - 448.
- 和田秀樹・伊藤良三・秋山文孝 (1984a), 微量石墨の炭素同位体分析用試料の調整と測定. 静岡大学地球科学研究報告, **10**, 133 - 141.
- 和田秀樹・藤井昇・新妻信明 (1984b), MAT250 による超微量炭酸ガス試料の安定同位体比測定法. 静岡大学地球科学研究報告, **10**, 103 - 112.
- 和田秀樹・長井洋一・安藤隆丸・新妻信明 (1991), MAT250 による同位体比測定のための微量炭酸ガス試料精製用新型トラップ. 静岡大学地球科学研究報告, **17**, 161 - 167.
- WILSON A. T. & GRINSTED M. J. (1977), $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ in cellulose and lignin as palaeothermometers. *Nature*, **265**, 133 - 135.
- 山田治・和田秀樹・鯨島輝彦 (1972), 合成メタノール法による ^{14}C 液体シンチレーション年代測定と本法による富士火山噴出物の年代測定結果. 地質学雑誌, **78**, 235 - 239.
- YAMAZAKI H. (1992), Tectonic of plate collision along the northern margin of Izu Peninsula, central Japan. *Bulletin of Geological Survey of Japan*, **43**, 603 - 657.