

課題名 RF-1011 東南アジアにおける違法伐採・産地偽装対策のためのチーク産地判別システムの開発

課題代表者名 香川 聡（独立行政法人森林総合研究所木材特性研究領域組織材質研究室主任研究員）

研究実施期間 平成22～23年度

累計予算額 22,842千円（うち23年度 11,128千円）
予算額は、間接経費を含む。

研究体制 東南アジアにおける違法伐採・産地偽装対策のためのチーク産地判別システムの開発
（（独）森林総合研究所）

研究概要

1. はじめに(研究背景等)

国内で消費する木材の8割を輸入に頼る我が国は、東南アジアを含む世界の森林に対し、木材の消費国としての責任を負っている。そこで、環境省は、グリーン購入法により政府調達の対象を合法性・持続可能性が証明された木材とする措置を開始した。違法伐採による全世界での経済的損失は約 1 兆円(OECD)と見積もられており、欧米では最近、木材の産地・樹種の情報を木材および木材製品に表示することが義務化されている。アメリカでは修正レーシー法を 2008 年 12 月より施行し、EU でも Due Dilligence 法が施行され、木材製品の産地表示が義務化された。

チーク輸出量世界第 2 位のインドネシアでは、主にジャワ産のチークが輸出されている。インドネシア産木材の中でもチークは最も高価な樹種であり、違法伐採の対象となっている。一方、チーク輸出量世界第 1 位のミャンマーは、世界のチーク市場の 7-8 割のシェアを占めている。現在、EU およびアメリカはミャンマー産チークの域内への輸入を禁止しているが、実際は中国の雲南省等を経由してミャンマー産のチークが中国産と偽装され、EU、アメリカ、日本等に輸出されている。そこで、チークの産地判別技術を確立するため、図1のような計画で本課題を行うこととなった。

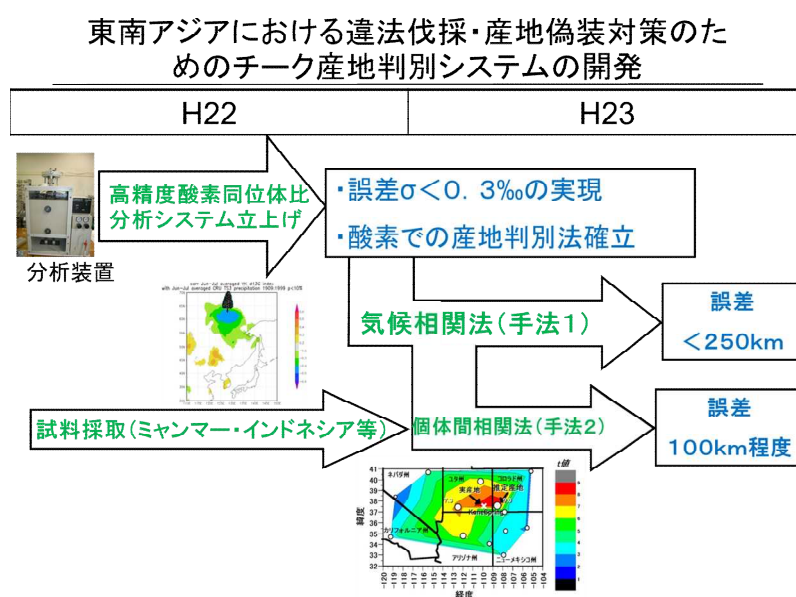


図 1 課題全体の研究計画

2. 研究開発目的

本課題では、材が高価なため違法伐採の対象となっている東南アジア産チークの産地を高精度・高的中率で判別する技術の開発を行うことを目的としている。具体的には、産地未知の木材の年輪の同位体比・年輪幅時系列を測定し、

(1)各地で採取した木材の同位体比・年輪幅時系列の参照データと比較して産地を判別する方法、(2)降水量履歴が同位体比・年輪幅時系列と相関する測候所を特定することにより産地を判別する方法、の有効性をミャンマー産、インドネシア産のチーク材を用いて調べた。

3. 研究開発の方法

(1) 安定同位体比・年輪幅・密度データベース構築によるチーク産地判別

ここでは、上記の「(1)各地で採取した木材の同位体比・年輪幅時系列の参照データと比較して産地を判別する方法」による産地判別方法を説明する。研究代表者の考案した産地判別手法は、「互いに近くに成育する木同士ほど、年輪の同位体比フィンガープリントの類似性が高い」という性質(図2)を利用している。産地未知木の年輪の同位体比時系列と、周辺各地の産地既知木の同位体比時系列との間の相関係数を計算し、相関係数が最大になる地点を探して産地を推定することができる(図3左)。この手法(手法1)が最も産地判別の精度が高いが、最高の精度を得るためには対象とする地域一帯に成育する樹木の年輪同位体比時系列のデータベースを構築する必要がある。手法1では、データベースの構築に時間を要し、すぐには産地判別が行えないという問題点がある。

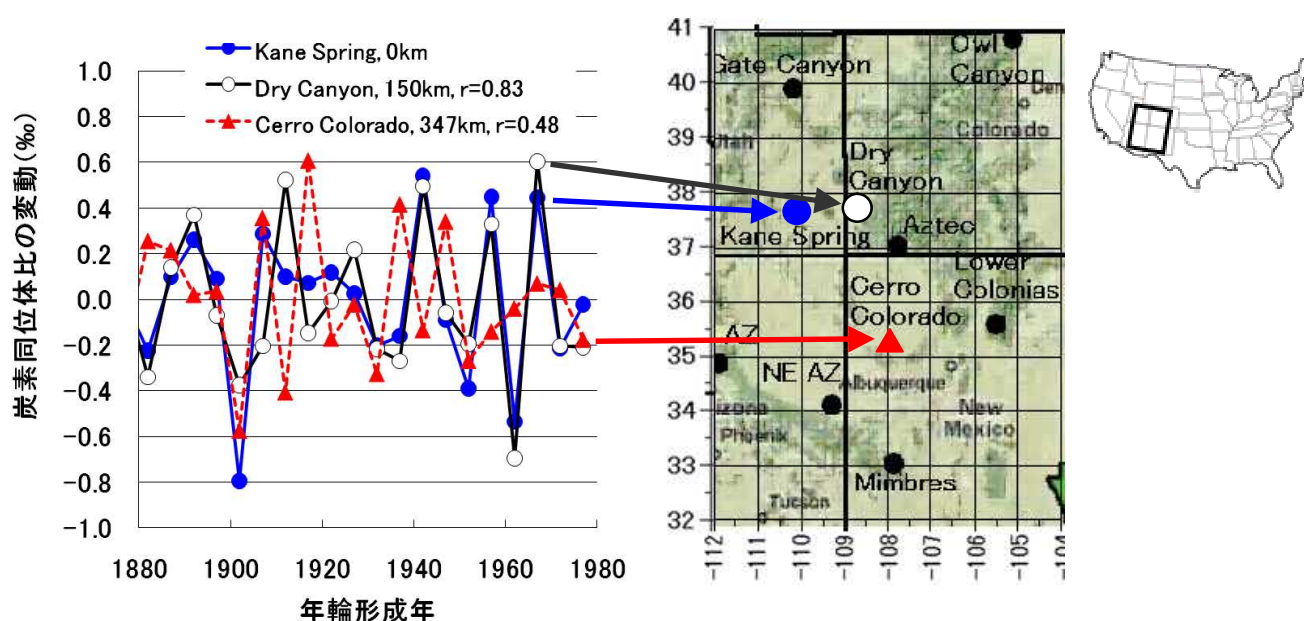


図2 2つの異なる産地に生育する樹木の炭素同位体比時系列間の相関係数と産地間距離との関係 距離の小さい●と○は類似している(150km, $r=0.83$)が、距離の大きい●と▲は類似性が下がる(347km, $r=0.48$)。

(2) 降水量データを用いた木材の産地判別手法

そこで我々は、産地判別の誤差は大きくなるものの、データベース構築を要しない降水量データを用いる産地判別法(手法2)を考案した(図3右)。年輪の同位体比・年輪幅は成育地の降水量・気温と相関があることが知られており、古気候復元に用いられてきた(McCaroll & Loader 2004)。この関係を逆に利用して、産地未知の木材の同位体比・年輪幅時系列がどの測候所の降水量データと最も高い相関を示すかを調べることで、木材の産地を推定することができる(香川、未発表)。年輪の同位体比時系列と世界各地の測候所の春-夏の降水量時系列との相関関係から、我々はすでに極東ロシア産アカマツ(図3右)、木曽ヒノキ、秋田スギ他の産地判別に成功している。同一サイト内の樹木個体を比較するために、複数の年輪の時系列に分散分析を適用し、変動が共通した部分をシグナル(S)、個体間でばらつく部分をノイズ(N)としてS/N比を計算できる。産地識別の精度はS/N比とともに高くなり、温帯産材の年輪の酸素同位体比・炭素同位体比・年輪幅時系列のS/N比はそれぞれ15, 7.8, 4.6となり(Nakatsuka et al. 2003, Kagawa & Leavitt 2010)、温帯・亜寒帯では酸素同位体比が産地判別に最も有効であることが既往の研究から分かっている。

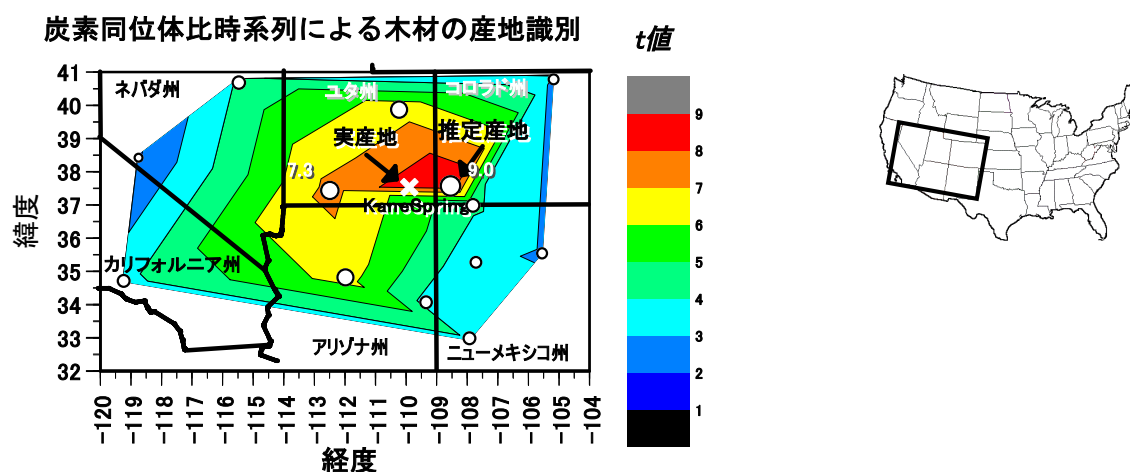


図3 (左)手法1による北米産マツ材の産地判別 本当は産地(×印)が分かっている木材を産地未知のものと仮定する。この木材の年輪の炭素同位体比時系列は、実際の産地の周辺の樹木と高い類似性(t 値、○印の直径)を示すので、類似性が最大になる地点(色等高線の赤色部分)として、木材の産地が推定できる。 t 値は相関係数(r)、年輪数(n)から計算される。(右)手法2によるシベリア産アカマツ材の産地判別 年輪の同位体比は降水量の復元に用いられている。この関係を逆に利用して、世界各地の測候所の降水量時系列と産地未知材の年輪の同位体比時系列との相関を計算し、相関係数が最も高くなる地点として、産地を推定できる。

(3) 同位体分析システムの立ち上げ・改良、年輪幅の測定

有機物の酸素同位体比($\delta^{18}\text{O}$)は農林水産物の産地推定でもすでに利用されており、近年の分析技術の自動化(Continuous-flow method, Farquhar et al. 1997)により、利用が急速に広まっている。自動分析では、セルロース等の有機物試料を無酸素・高温条件下で熱分解することにより一酸化炭素を発生させ、これを質量分析計に導入して質量数30($^{12}\text{C}^{18}\text{O}$)と28($^{12}\text{C}^{16}\text{O}$)の出力比から酸素同位体比を測定する(図4)。本課題では1400°C以上で有機物を熱分解する高温分解炉(Hekatech HTO)を用いた高精度(誤差 $\sigma < 0.3\%$)の酸素同位体比分析システムを立ち上げる。

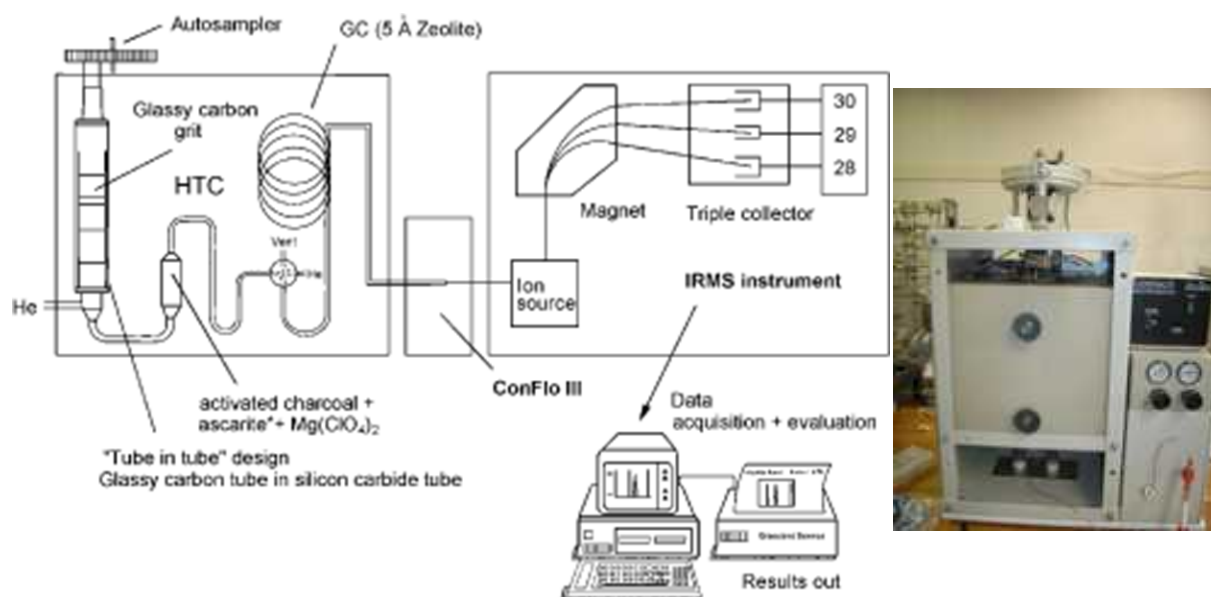


図4 高精度酸素同位体比分析システム 誤差が小さいほど産地判別の結果が正確になるため、できるだけ分析誤差を小さくすることが望ましい。

また、本産地判別手法は分析の前処理に時間がかかるという問題があったため、将来の産地判別の実用化に不可欠な同位体分析法の改良も行った。従来、年輪の同位体比分析は年輪を実態顕微鏡下でナイフを用いて一年輪毎に切り離し、年輪数分の試料からセルロース抽出する作業が必要だったため、分析試料作製に膨大な時間が必要であった。膨大な試料数をセルロース抽出する部分が分析時間の大部分を占めており、これが同位体を用いた産地判別技術を実用化する際に大きな障害となっていた。そこで、同位体分析にかかるコスト・時間を大幅に削減する方法を試みた。

年輪幅の測定に関しては、厚さ1mmの小口薄片を軟X線によりレントゲン写真と同様の原理で写真を撮影し、デンストメータ(Walesch Electronics Dendro 2003)により年輪幅・密度を測定した。

4. 結果及び考察

(1) 安定同位体比・年輪幅・密度データベース構築によるチーク産地判別の結果

中央ジャワ産チークの酸素同位体比の年変化・季節変化をしらべてみたところ、年変化とともに大きな季節変化もみられた(図5)。手法1および2で産地判別を行う場合、年変化で十分産地が判別できることが分かったので、本課題では年変化による産地判別に統一し、季節変化による産地判別は行わなかった。

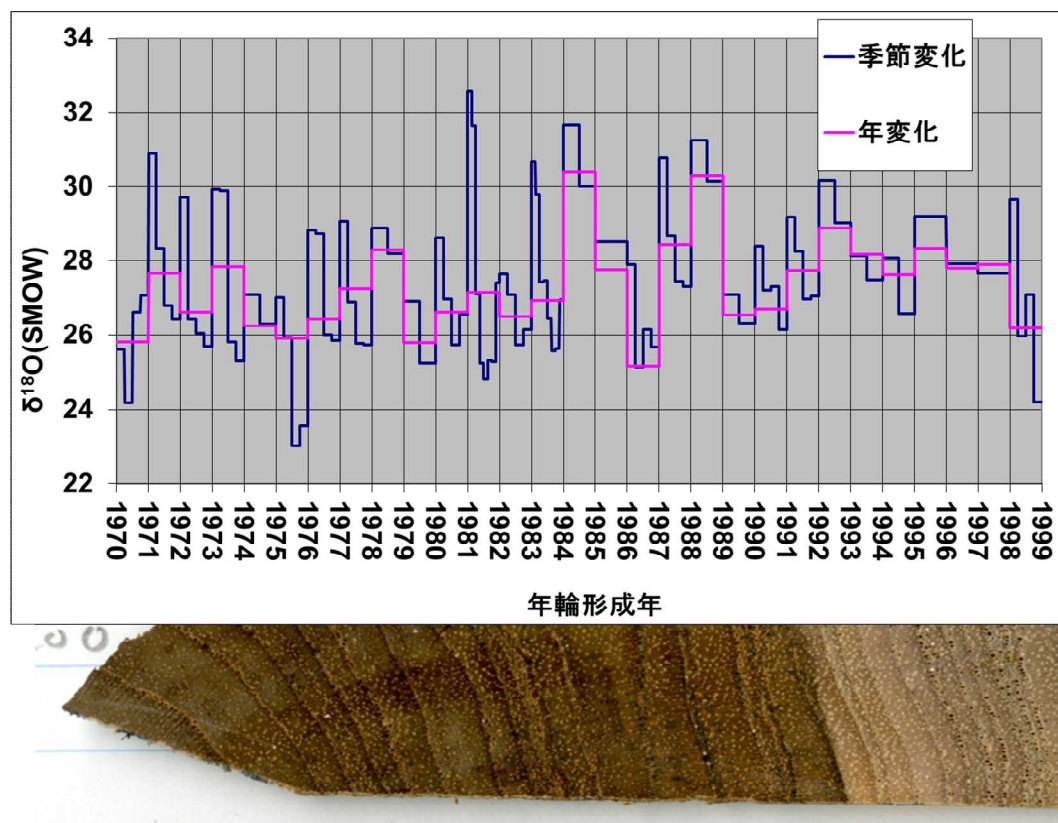


図5 チーク年輪の酸素安定同位体比の年変化(桃色)及び季節変化(青色) 年変動よりも、季節変動が大きく、雨期の最初・最後に形成される木部での酸素同位体比は高く、雨期中盤で低いという結果を示した。

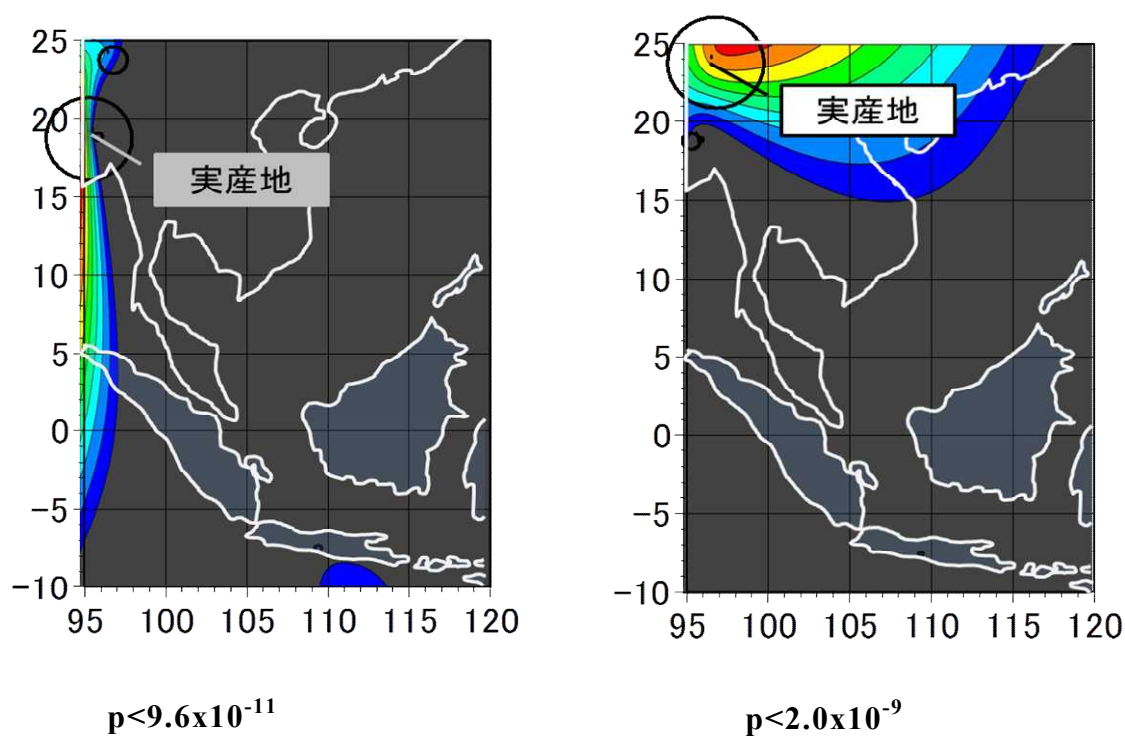


図6 年輪幅による産地判別結果 測定が容易な年輪幅による産地判別でも、産出国はほとんどの場合(98%)で正しかった。産地判別を間違える可能性がほぼゼロ(有意水準 $p < 100$ 万分の1)という条件を付けた場合の産地判別成功率は20%程度であった。

酸素同位体比の年変化を用いて、手法1によるチークの産地判別を試みたところ、市場流通材の大部分を占めるミャンマー産・インドネシア産のチーク材の産地判別に成功した。また、産地判別が成功した場合の産地判別結果の空間誤差は180km以下であった。測定の容易な年輪幅による簡易産地判別(図6)でも産地判別結果は98%以上の場合で正しかったが、産地判別結果が確信できる(有意水準 $p < 10^{-6}$)という条件をつけた場合の産地判別成功率は、酸素同位体比(図7)で83%、年輪幅で21%であった。炭素同位体比は産地判別の有効性が最も低かった。東南アジア各地から産地情報の明確なチーク材を高空間密度で採取し、詳細な同位体比・年輪幅時系列のデータベースを作成することにより、より正確な産地特定が実現できることが示された(図6、図7)。

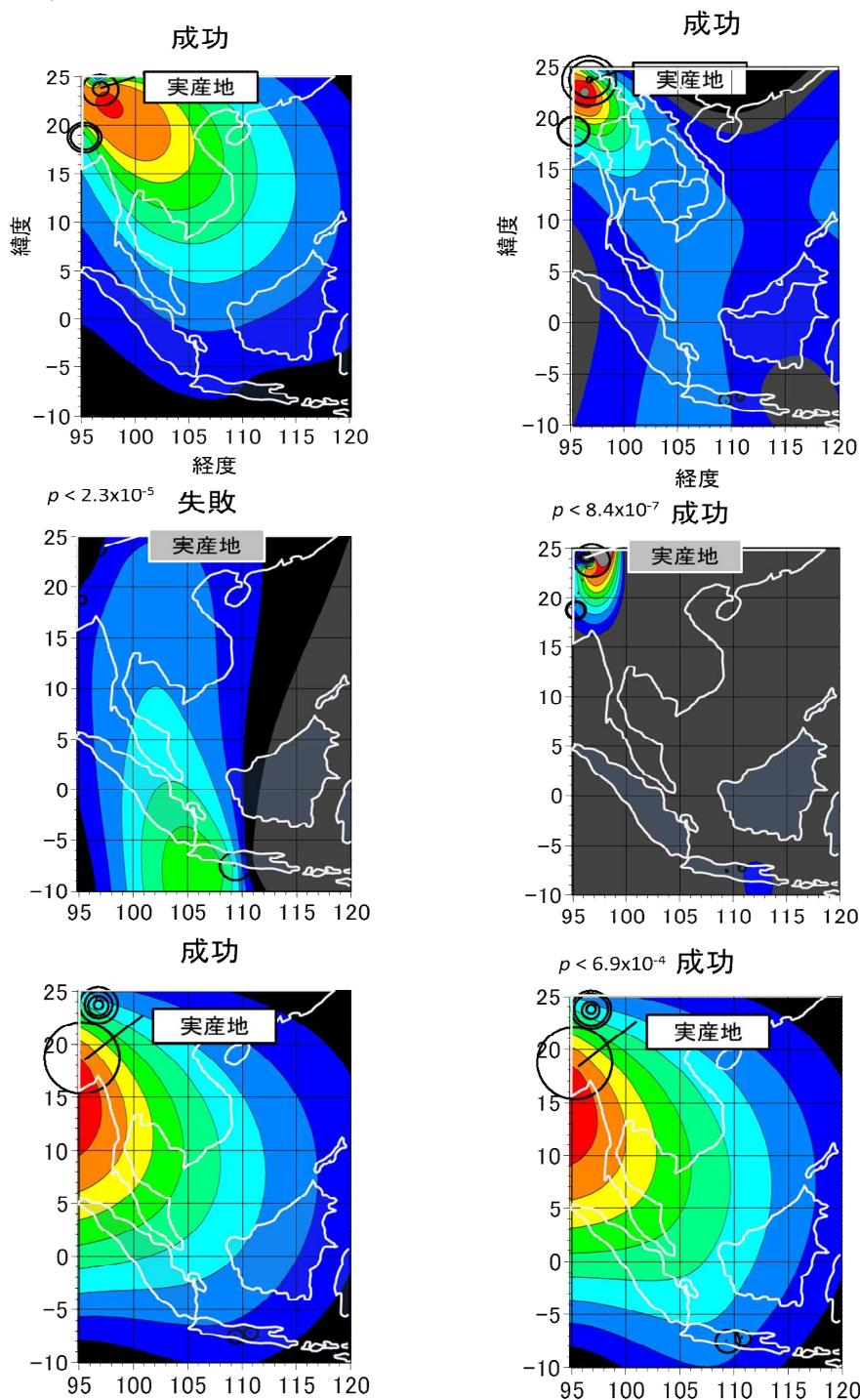


図7 酸素安定同位体比によるチーク材の産地判別 産地判別を間違える可能性がほぼゼロ(有意水準 $p < 100$ 万分の1)という条件を付けた場合でも、6個体中5個体(83%)で産地判別に成功した。産地判別に確実性が要求される場合は、同位体による産地判別が必要になる。

(2) 降水量データを用いた木材の産地判別結果

降水量データを用いた産地判別法では、東南アジア産チークの産地判別を行うことは多くの場合困難であった(図8)。温帯・亜寒帯では成功した本手法が熱帯域であまり有効でなかった理由については、東南アジア地域では測候所における降水量データの欠測が多く、測候所の密度も低いという原因が考えられる。温帯の場合では、実産地付近に降水量と高い相関を示す部分(図3右の青色部分)が見られるが、熱帯に属する東南アジアの場合はそのような高い相関を示す部分は見られなかった(図8)。降水量データを用いた産地判別が失敗した理由として、1.東南アジアは熱帯で四季が不明瞭なこと、2.測候所の数が少なく、欠測が多いこと、3.樹木の生長期間が温帯と比べて長いこと等、が理由として考えられる。

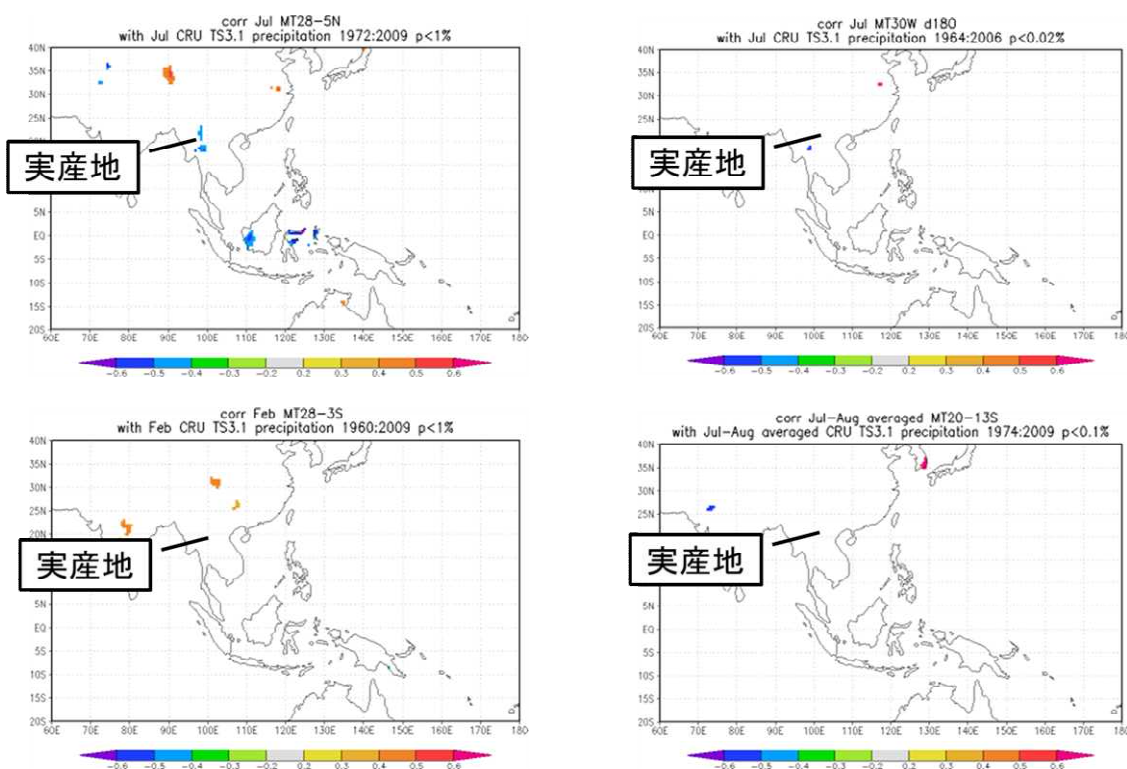


図8 降水量データによるチークの産地判別結果 温帯では半分程度は産地判別が成功する本手法も、熱帯である東南アジアでは、ほとんどの場合において、降水量を用いた産地判別は失敗した。

(3) 高精度酸素同位体分析、分析手法の改良の結果

産地判別結果を正確にするためには、酸素同位体比分析の誤差をできるだけ小さくすることが望ましい。そこで、本課題では酸素同位体比分析の誤差が小さい(標準偏差 $\sigma < 0.3\text{‰}$ 以下)分析システムを立ち上げることを目標とした。高温熱分解型元素分析計(Hekatech社HTO)を導入して、2種類のセルロース試料を交互に測定して誤差を評価したところ、標準偏差 $\sigma = 0.13 \sim 0.17\text{‰}$ となり(図9)、目標を達成することができた。

副次的な成果として、名古屋大学と共同して同位体分析に要する時間を10-100分の1に短縮する手法を開発することに成功した(図10)。木材の年輪の酸素同位体分析では、分析の前処理として、木材から α -セルロースを抽出する必要があるが、この工程が同位体の分析時間の大部分を占めていた。従来の方法では、実体顕微鏡下で木口薄片から年輪を1年毎に切り分けた後、一度に数十～数百個のサンプルの α -セルロースの抽出を行っており、試料数が多いため分析に長時間を要していた。今回開発した方法では木口薄片の形状を崩すことなしに1枚の薄片の α -セルロースの抽出を行った後で、板状の α -セルロースから年輪を1年毎に切り分けるので、試料の個数が数十～数百分の1になり、分析に要する時間を大幅に短縮することに成功した。

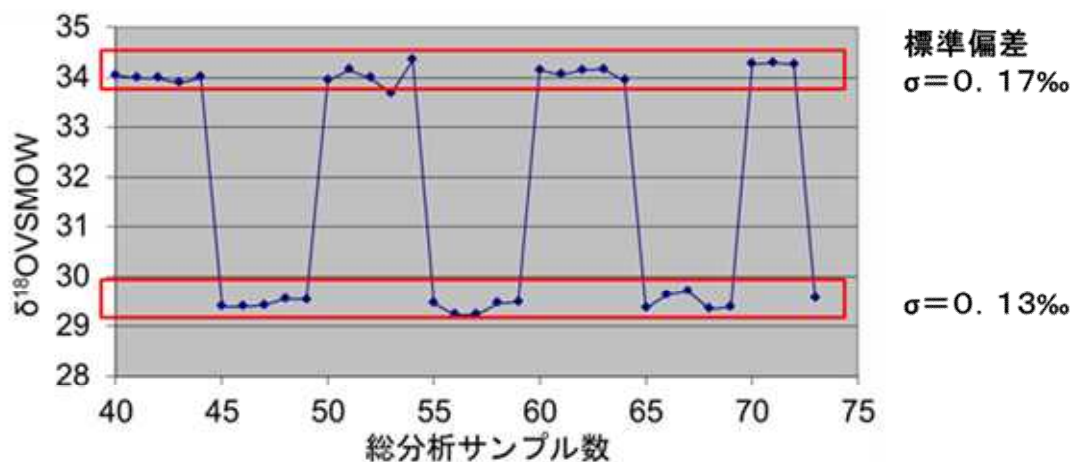


図9 酸素同位体比の分析精度 2種類のセルロース標準試料を交互に測定して精度を確認した結果、酸素同位体比分析誤差は0.13-0.17%となり、目標である誤差を0.3%以下にすることに成功した。

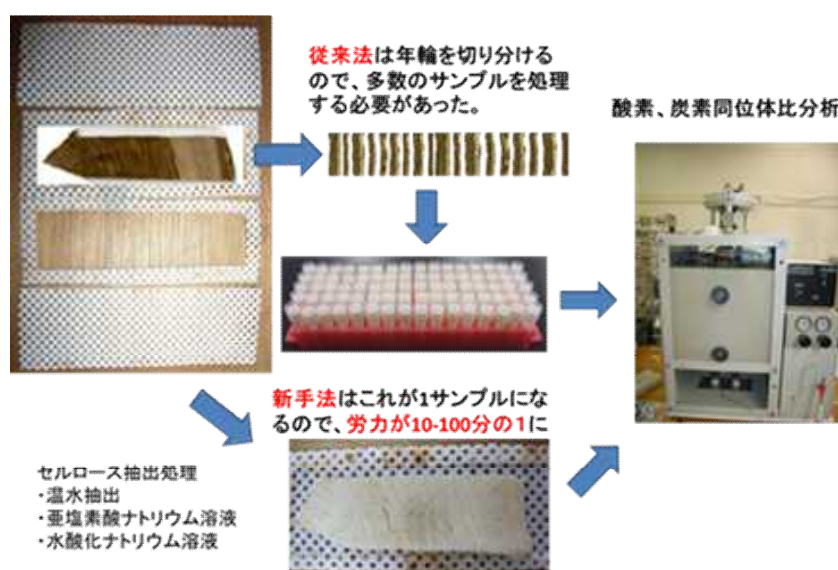


図10 年輪の酸素同位体比分析法の改善 この手法の改善により、同位体比の分析に要する時間・コストが10～100分の1になり、同位体比を用いた木材産地判別技術の実用化に1歩近づいた。

以上の成果をインドネシア産チーク等の産地判別に応用するにあたっては、以下の結論が得られた。

- 1) 今後もチークの主産地で産地情報の明確なチーク試料を採取し、年輪幅・酸素同位体比データベースを整備することが、産地判別の空間精度の向上に必要である。
- 2) 税関などでチーク丸太の抜き取り検査を行い、年輪幅で簡易判別を行った後、産地偽装の疑いが強い試料については、酸素同位体比で産地を確定させる方法が実用上、最も効率的である。

5. 本研究により得られた主な成果

(1) 科学的意義

本課題の遂行により、以下の新たな科学的知見が得られた。

- ・東南アジア産チークの場合、安定同位体比・年輪幅・密度データベース構築による産地判別法では、酸素同位体比が最も産地判別結果が正確で、次に年輪幅であった。
- ・一方、降水量データによる産地判別は困難であった。これは、東南アジア地域の気象データの不備等が原因として考えられる。
- ・東南アジア産チークの産地判別を実用化する場合、年輪幅で簡易な産地判別を行い、確実性が求められる場合には酸素同位体比で産地判別するのが最も効率的である。
- ・当初は予想しなかった成果として、年輪の安定同位体分析の作業時間の大部分を占めるセルロース抽出法

の効率化を達成した。従来は100年分の年輪を分析する際に100サンプルのセルロース抽出が必要であった。新手法では年輪を切り分ける前に1サンプルまるごと抽出することにより、作業量が100分の1に軽減され、より迅速な木材の産地判別法開発に貢献した。

(2) 環境政策への貢献

環境省は、グリーン購入法により政府調達の対象を合法性・持続可能性が証明された木材とする措置（詳細は、環境省 HP>地球環境・国際協力>森林・砂漠化対策>森林対策を参照）を開始しているが、本課題の成果は、税関等において欧米への禁輸措置が取られているミャンマー産のチークなど、申告産地を偽装した違法伐採材の検出に貢献が期待される。今後、年輪の同位体分析の自動分析装置を開発するなどして分析技術を改良し、木材1点当たりの産地判定にかかるコストを下げれば、本産地判別技術の事業化が現実的になると予想される。

6. 研究成果の主な発表状況

(1) 主な誌上発表

<査読付き論文>

特に記載すべき事項はない

(2) 主な口頭発表(学会等)

1) Kagawa A. Kuroda K. Fujiwara T. Marsoem S.N. Kyaw N.N.: *Proceedings of the 2nd Asian dendro conference*, Xian, China, 2012 “Preliminary results of isotope dendrochronology of teak from Southeast Asia.”

2) 香川聡、黒田克史、藤原健、Marsoem S.N., Kyaw N.N., Myint Z.W.: 第62回木材学会(2012)「安定同位体比・年輪幅によるチーク材の産地判別」

3) Kagawa A., Nakatsuka T., Zhang C., Yasue K., Helle G.: *Proceedings of the TRACE2012 conference*, Potsdam, Germany 2012 “A method for extracting alpha-cellulose directly from tree-ring laths.”

7. 研究者略歴

課題代表者: 香川 聡

1973年生まれ、京都大学農学部卒業、博士(地球環境科学)、現在、独立行政法人森林総合研究所 組織材質研究室 主任研究員

研究参画者

(1): 香川 聡 (同上)

(2): 黒田 克史

1970年生まれ、北海道大学農学部卒業、博士(農学)、現在、独立行政法人森林総合研究所 組織材質研究室 主任研究員

RF-1011 東南アジアにおける違法伐採・産地偽装対策のためのチーク産地判別システムの開発

(独) 森林総合研究所

木材特性研究領域 組織材質研究室

香川 聡・黒田 克史

平成22～23年度累計予算額：22,842千円

(うち、平成23年度予算額：11,128千円)

予算額は、間接経費を含む。

[要旨] 違法伐採は森林減少・劣化等の問題を引き起こし、世界全体の経済損失は年当たり約1兆円程度になるとOECDにより見積もられている。近年欧米では木材の産地表示(原産国)を義務化する動きが広がっており、アメリカではすでに2008年12月より修正レーシー法が施行され、EU域内でもDue Dilligence法案が2012年6月に採択される予定である。このように世界中で申告された木材の産地の真偽を判別する技術のニーズが高まっている。世界中の全ての木材は、その産地に特有な安定同位体フィンガープリントを有しており、年輪を形成する樹種の場合、それらは年輪の安定同位体比時系列として表現できる。熱帯域では、チークは年輪を形成する数少ない樹種の一つで、その材は高価なため違法伐採の対象となりやすい。そこで本研究では、温帯～亜寒帯(日本・北米・極東ロシア)ですでに有効性が確認できている安定同位体比・年輪幅時系列を用いた木材の産地判別法を違法伐採の深刻な熱帯域の樹種に世界で初めて適用し、産地判別法の熱帯域での有効性を調べた。ミャンマーおよびインドネシアで、胸高部で成長錐コアまたは円盤を採取し、年輪の酸素・炭素安定同位体比および年輪幅を測定した。次に、年輪の安定同位体比の経年変化を測定して時系列を構築した。降水量データと同位体比時系列との相関を計算して産地を推定する方法ではチークの産地判別は難しいものの、産地未知のチーク個体と各参照地点で採取したチーク個体との間で相関係数を計算することにより産地を推定する方法では、ほとんどの場合で産地判定が成功することがわかった。東南アジアでは、降水量データによる産地判別は難しいが、産地情報の明確なチーク参照試料を多数採取し酸素同位体比・年輪幅データベースを構築することにより、熱帯域でも温帯や亜寒帯域のような産地判別が可能であることが本課題により判明した。

[キーワード] 違法伐採、産地、年輪、安定同位体、グリーン購入法

1. はじめに

違法伐採抑止のための木材の合法性・違法性証明を行うには、産地判別誤差・誤判定の可能性が小さい木材の産地判別技術を開発する必要がある。1年生の農産物の産地判別と違い、樹木は数十年以上の間成長して年輪を形成する。そこで研究代表者はドイツ留学中の2007年に、「木材は年輪の同位体比時系列作成により多数の安定同位体比データを複数年にわたって比較することができるので、産地判別の精度が飛躍的に向上できるのでは」と予想した。そこで、古気候復元のために構築されたアメリカ産マツおよび日本産スギ・ヒノキの同位体比データを用いて本着想の検証を行ったところ^{1),2)}、木材の産地が誤差60-300kmで判別可能であり、木材産地認証技術として十分な精度が実現できることが分かった。本課題では、新たに考案した産地判別手法を違法伐採の対象となっているインドネシア、ミャンマー産のチーク産地判別に応用し、各産地のチーク年輪の酸素・炭素同位体比、年輪幅・密度時系列のデータベースを構築する。これにより、東南アジア産チークの産地判別を可能にし、違法伐採・産地偽装の抑止に役立てる。

OECDによると、違法伐採による世界全体の経済損失は約1兆円であると見積もられている。この損失には、木材が不当に安い価格で取引されることに加え、政府による税収の減収等も含まれている(図1)。

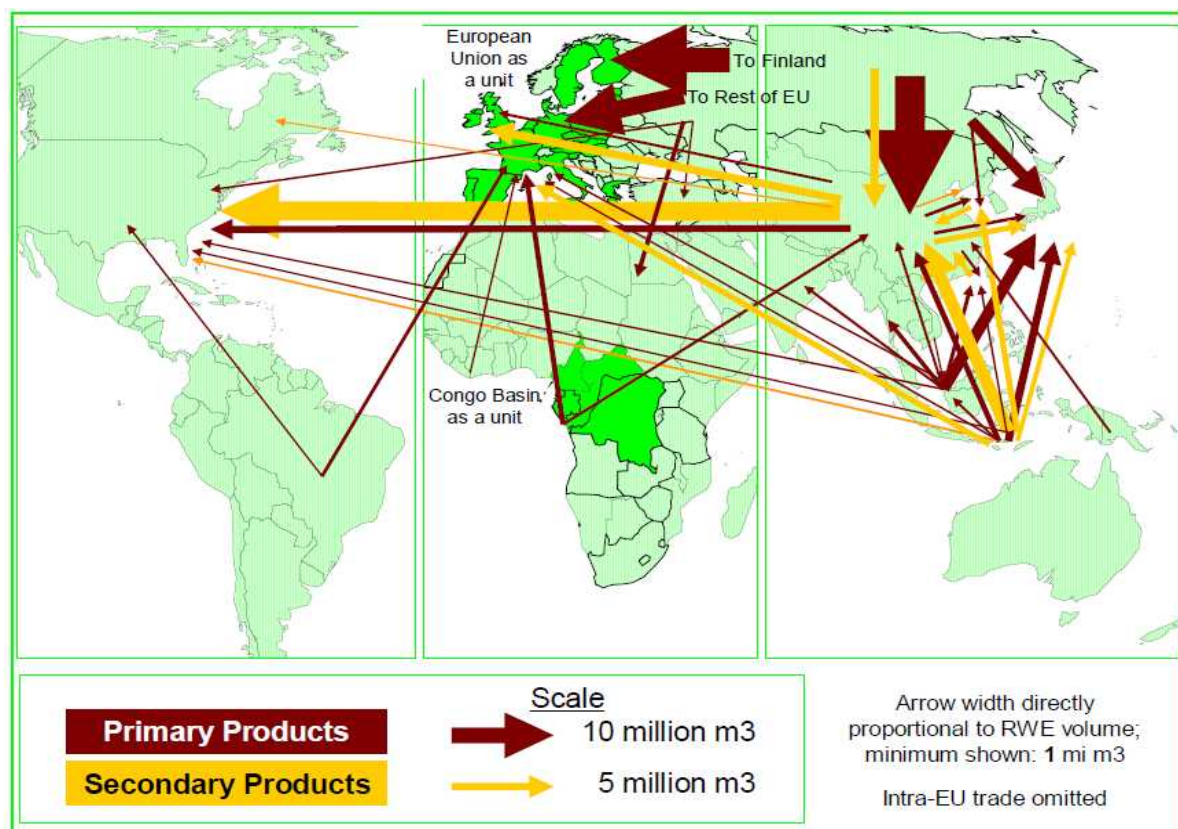


図1 全世界での違法伐採された木材の国際流通 違法場際による推定被害額はOECDにより、年間1兆円であると見積もられている。

IPCC第4次報告書によると、人為的な温室効果ガス排出の約2割は森林減少・森林劣化によるものである。森林減少・劣化を抑制するためには、持続可能な森林経営を世界中で実現していく必要があるが、その阻害要因の一つが違法伐採である。違法伐採問題は2008年神戸でのG8環境大臣会合においてもG8森林専門家により報告書が発表されている。リモートセンシングのデータによると、日本の周辺では、特に東南アジア（インドネシア、ミャンマー）の森林減少が著しい。国内で消費する木材の8割を輸入に頼る我が国は、東南アジアを含む世界の森林に対し、木材の消費国としての責任を負っている。そこで、環境省は、グリーン購入法により政府調達の対象を合法性・持続可能性が証明された木材とする措置を開始した（詳細は、環境省HP>地球環境・国際協力>森林・砂漠化対策>森林対策を参照）。

以上の違法伐採問題を取り巻く状況から、緊急の対策技術開発が求められている。リモートセンシングにより森林減少・劣化の状況を観測・評価するだけでなく、森林減少・劣化の原因そのもの（違法伐採）を抑制する技術の開発が排出量削減のために必要不可欠である。違法伐採抑止のための木材の合法性証明を行う上で、最も重要な情報は木材の産地情報であり、申告されている産地情報の真偽を高精度・高信頼度で判別する手法が必要である。

チーク輸出量世界第2位のインドネシアでは、主にジャワ産のチークが輸出されている。インドネシア産木材の中でもチークは最も高価な樹種であり、違法伐採の対象となっている。一方、チーク輸出量世界第1位のミャンマーは、世界のチーク市場の7-8割のシェアを占めている。現在、EUおよびアメリカはミャンマー産チークの域内への輸入を禁止しているが、実際は中国の雲南省等を経由してミャンマー産のチークが中国産と偽装され、EU、アメリカ、日本等に輸出されている。そこで、チークの産出国・地域を判別する技術が必要になる。

2. 研究開発目的

本課題はチーク材を対象とする。G8では、先進国が違法伐採対策技術を開発し、インドネシアへ技術提供することが合意されており、現在EU（ドイツ・イギリス等）、日本で木材の産地判別技術の開発が行われている。本課題の目的は、申請者が最近発案した木材の産地判別手法¹⁾を世界に先駆けて違法伐採が深刻なインドネシアをはじめとする東南アジア産チーク材に応用し、日本発の違法伐採抑止技術を国際標準技術として確立するための端緒とすることである。具体的には、以下の3つのステップから成る、高精度・高信頼度の木材の産地判別手法を東南アジア産チーク材に応用する（図2）。

第1に、チーク年輪の高精度酸素同位体比分析・炭素同位体比分析および年輪幅・密度測定を行い、チークの主産地であるインドネシア・ミャンマー・インド等のチーク年輪の時系列データベースを作成する。

第2に、産地未知のチーク年輪の同位体比等の時系列を測定し、データベース上の各産地のチークの同位体比等の時系列との相関を計算し、最も相関が高くなる時系列の産地を推定産地とする手法（クロノロジー相関法）により、チークの産地を州レベル（180km以下の誤差）で判別するためのデータベースを構築する。

第3に、チーク年輪の酸素・炭素同位体比時系列と降水量との相関を計算する方法（気候相関法）により、チークの産地を産出国レベル（250km程度の誤差）で判別する技術を開発する。

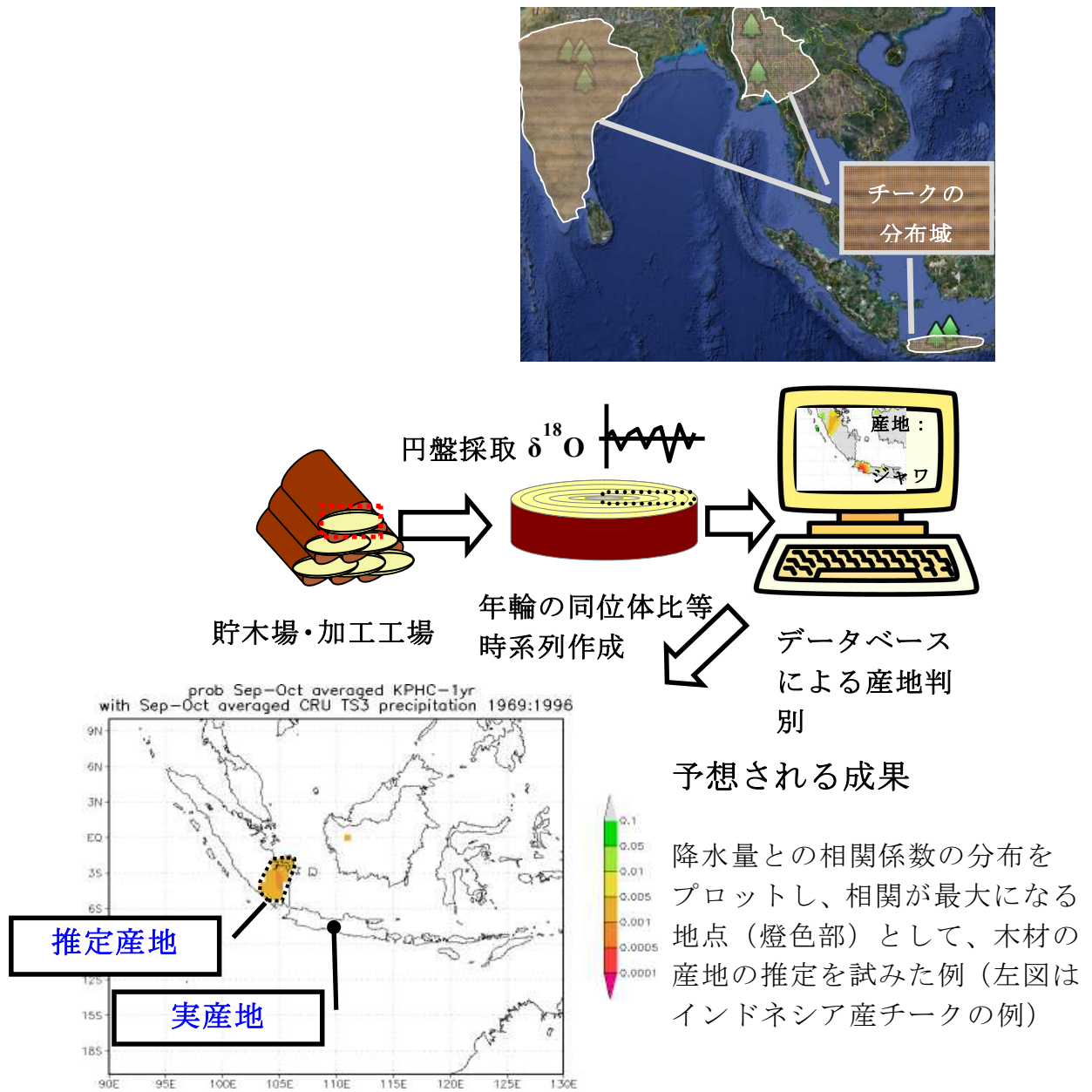


図2 本課題の背景・目的および予想される成果

3. 研究開発方法

本課題では、新たに考案した産地判別手法を違法伐採の対象となっているインドネシア、ミャンマー産のチーク産地判別に応用し、各産地のチーク年輪の酸素・炭素同位体比、年輪幅・密度時系列のデータベースを構築する。これにより、東南アジア産チークの産地判別を可能にし、違法伐採・産地偽装の抑止に役立つ。まずインドネシア・ジャワ島およびミャンマーにおいて成長錐または円盤試料を採取する(図 3)。作業全体の流れとしては、厚さ 1mm の木口薄片を年輪コア試料から切り出し、軟 X 線写真撮影による年輪幅測定、同位体分析の前処理としての α セルローズ抽出、実体顕微鏡下での年輪の切り分け・秤量、酸素・炭素安定同位体比分析を経て、統計解析による産地推定を行った。

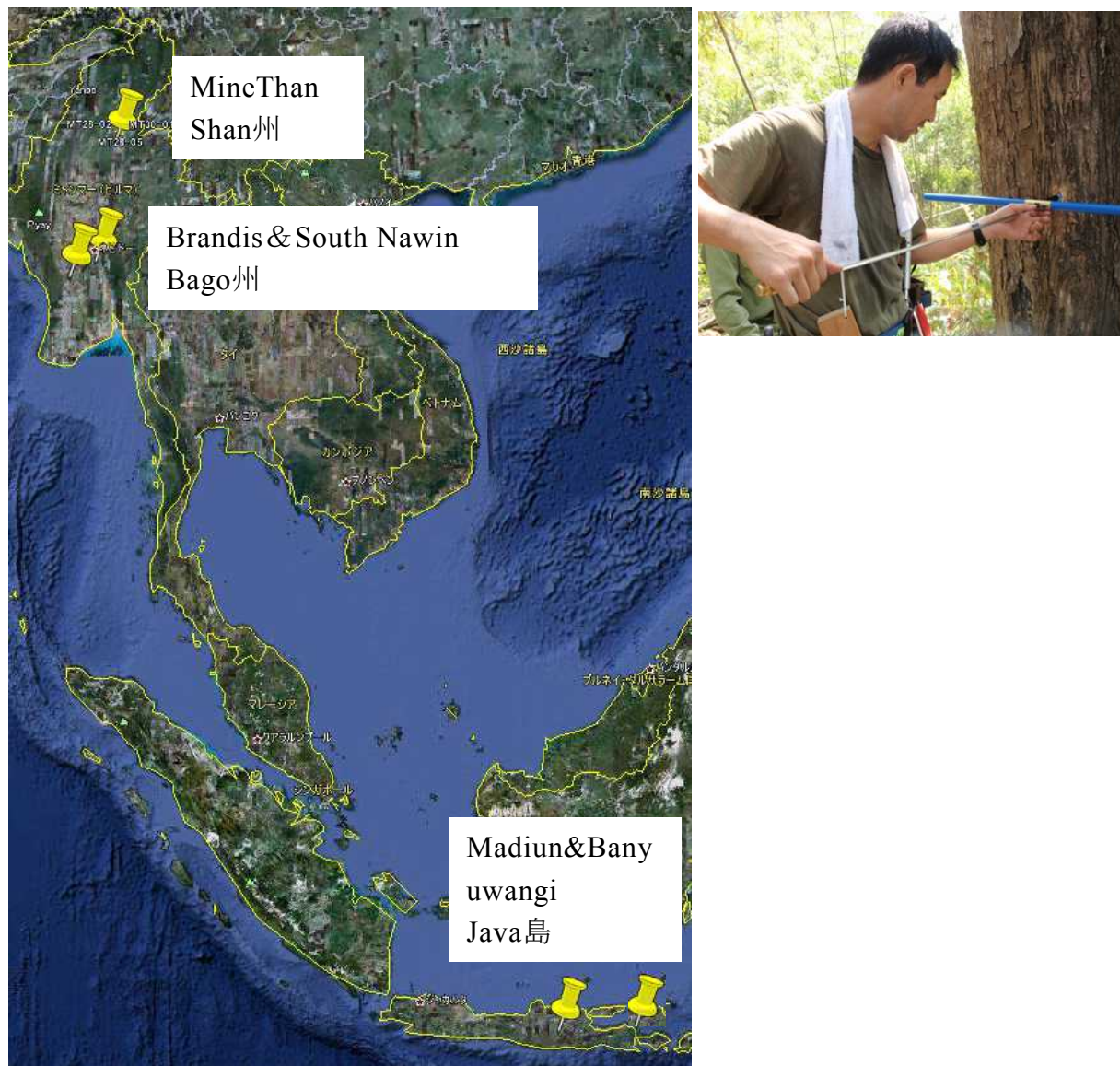


図3 左：試料採取地点（ミャンマーおよびインドネシア）、右：成長錐による試料採取の様子

(1) 年輪幅・密度の測定方法およびそれらを用いた産地判別法

一般に、熱帯材には年輪が形成されないため、同一形成年の木部同士での同位体比の比較が不可能であるという問題があるが、熱帯でもチークは雨季・乾季の明瞭な地域では生長輪を形成するので、年輪幅・密度を測定し、産地判別を試みることができる。年輪情報に基づく産地識別は、主要な産地別に標準パターンを作成することが必要となるが、熱帯地域についてはこれらの研究は行われていない。違法伐採が深刻なロシア材などの冷温帯樹種や、熱帯でもチークのように年輪の形成される樹種では、同一形成年の木部同士を比較できるため、より精度の高く実用的な木材の産地識別が期待できる。年輪幅・密度は安定同位体比に比べて比較的lowコスト・時間で計測することができるため、産地偽装材検出のための簡易産地判別に用いることができる。個体間の年輪幅変動を比較する手法に加えて安定同位体比の年変動時系列の比較を行うことで、より精度の高い木材の産地識別手法を確立できる。

1) 年輪試料採取

産地判別の参照試料を充実させるために、チークのシェアが世界でそれぞれ第1・2位であるミャンマーおよびインドネシアに出張し、チーク試料を採取した。また、すでに保有している産地情報・伐採年の明確なインド・インドネシア産チーク試料も用いた。2011年1月15日～25日、2012年1月24日～31日にインドネシアのジョグジャカルタを訪問し、産地情報が明確なインドネシア・中央および東ジャワ産(図3)のチーク試料を新たに2地点・15個体入手した。また、2011年3月1日～17日にミャンマーを訪問し、2地点・31個体(表1)の試料採取を行った。特に、市場流通チークの7-8割程度を占めるといわれるミャンマーにおいて、中国との国境近くで実際に違法伐採が行われている地域のチーク天然林においての参照試料の採取に成功したことは大きな成果であった。なぜなら、これにより同地域での産地判別が可能になるからである。試料採取は各個体それぞれ4方向のコア試料の採取を行った。このチーク天然林は中国国境からわずか80kmに位置し(北緯23度40分、東経96度40分付近)、実際に違法伐採の摘発により押収されたチーク材が保管されているのを現地を確認できた。植林地(北緯18度47分、東経95度13分付近)ではPyay近郊のチーク植林地2地点合計で各個体4方向、15個体からのコア試料採取に成功した。採取したコア試料は樹皮を取り除いたのちすぐに乾燥させ、ミャンマー森林省の許可を受け日本に持ち帰った。

2) 年輪幅情報を用いた産地判別方法

木材の産地を判別する手法として、年輪幅時系列を用いる方法がすでに存在し、Dendroprovenancingと呼ばれている³⁾。この手法は、お互いに産地が近接している樹木では、年輪幅の変動が似ているが(図4、茨城県北部産スギ2個体)、お互いに産地が離れた樹木では年輪幅時系列の類似性が下がる(図4、高知県産スギ)という原理に基づいている。そこで、産地が未知の試料の年輪幅時系列を、産地が分かっている参照試料のものと比較してどの産地のものと一致するかを調べることにより、木材の産地を推定できる(図5)。東南アジアのような熱帯域の場合、樹木は明瞭な年輪を持たないことが一般的であるが、チークは熱帯域でも雨季・乾季が存在する地域では明瞭な成長輪を形成する数少ない樹種である(図6)。そこで本課題では、東南アジア産チークに、Dendroprovenancing法を適用し、年輪幅による簡易産地判別への有効性を調べた。

表1 年輪幅・密度・安定同位体比分析に用いたミャンマー・インドネシア産年輪試料

個体名	採取日	採取地	緯度	経度
MT30-01	2011/3/6	Minethan reserve forest	23.812	96.727
MT28-02	2011/3/6	Minethan reserve forest	23.827	96.719
MT28-03	2011/3/6	Minethan reserve forest	23.817	96.719
MT28-04	2011/3/6	Minethan reserve forest	23.817	96.718
MT28-05	2011/3/6	Minethan reserve forest	23.816	96.718
MT20-06	2011/3/7	Minethan reserve forest	23.725	96.691
MT20-07	2011/3/7	Minethan reserve forest	23.725	96.691
MT20-08	2011/3/7	Minethan reserve forest	23.724	96.690
MT20-09	2011/3/7	Minethan reserve forest	23.724	96.689
MT20-10	2011/3/7	Minethan reserve forest	23.724	96.689
MT20-11	2011/3/7	Minethan reserve forest	23.726	96.692
MT20-12	2011/3/8	Minethan reserve forest	23.724	96.694
MT20-13	2011/3/8	Minethan reserve forest	23.724	96.693
MT20-14	2011/3/8	Minethan reserve forest	23.725	96.693
MT20-15	2011/3/8	Minethan reserve forest	23.725	96.693
MT20-16	2011/3/8	Minethan reserve forest	23.725	96.692
MT20-17	2011/3/8	Minethan reserve forest	23.726	96.692
BR01	2011/3/13	Brandis plantation	18.798	95.224
BR02	2011/3/13	Brandis plantation	18.798	95.225
BR03	2011/3/13	Brandis plantation	18.799	95.225
BR04	2011/3/13	Brandis plantation	18.799	95.225
BR05	2011/3/13	Brandis plantation	18.799	95.224
BR06	2011/3/15	Brandis plantation	18.799	95.225
BR07	2011/3/15	Brandis plantation	18.799	95.224
SN-01	2011/3/14	Compartment 20	18.901	95.797
SN-02	2011/3/14	Compartment 20	18.901	95.797
SN-03	2011/3/14	Compartment 20	18.901	95.798
SN-04	2011/3/14	Compartment 20	18.900	95.798
SN-05	2011/3/14	Compartment 20	18.900	95.798
SN-06	2011/3/14	Compartment 20	18.901	95.798
SN-07	2011/3/14	Compartment 20	18.901	95.798
I-T	1998/1/1	Cilacap	109.353	7.477
I-U	1998/1/1	Cilacap	109.353	7.477
I-S	1998/1/1	Cilacap	109.353	7.477
I-B	1998/1/1	Cilacap	109.353	7.477
III-T	1998/1/1	Cilacap	109.353	7.477
III-U-1	1998/1/1	Cilacap	109.353	7.477
III-U-2	1998/1/1	Cilacap	109.353	7.477
III-S	1998/1/1	Cilacap	109.353	7.477
III-B	1998/1/1	Cilacap	109.353	7.477
V-T-1	1998/1/1	Cilacap	109.353	7.477
V-T-2	1998/1/1	Cilacap	109.353	7.477
V-U	1998/1/1	Cilacap	109.353	7.477
V-S	1998/1/1	Cilacap	109.353	7.477
V-B	1998/1/1	Cilacap	109.353	7.477
MAD-1	2009/6/23	Wonosari	110.601	7.943
MAD-2	2009/6/23	Wonosari	110.601	7.943
MAD-3	2008/5/16	Boyolali	110.752	7.176

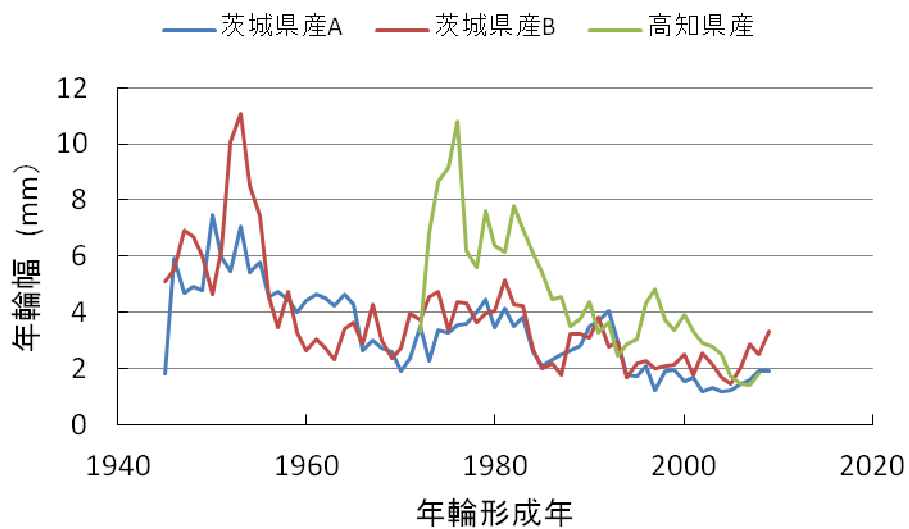


図4 成育地が異なるスギの成長経過

茨城県北部産のスギ2個体と高知産のスギ1個体の成長経過を比較すると、茨城県産の2個体はよく似た成長経過を示している。

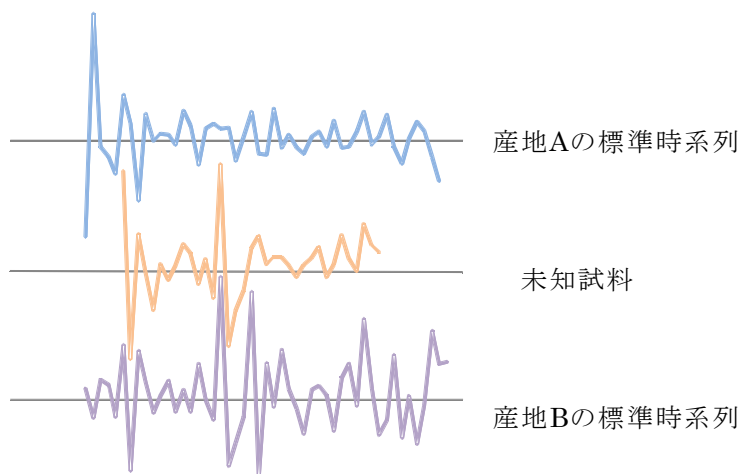


図5 標準時系列との比較による産地判別の例

産地が未知の試料について測定した年輪時系列を産地別の標準時系列と比較する。この図の場合だと、未知試料の産地はBと判別される。

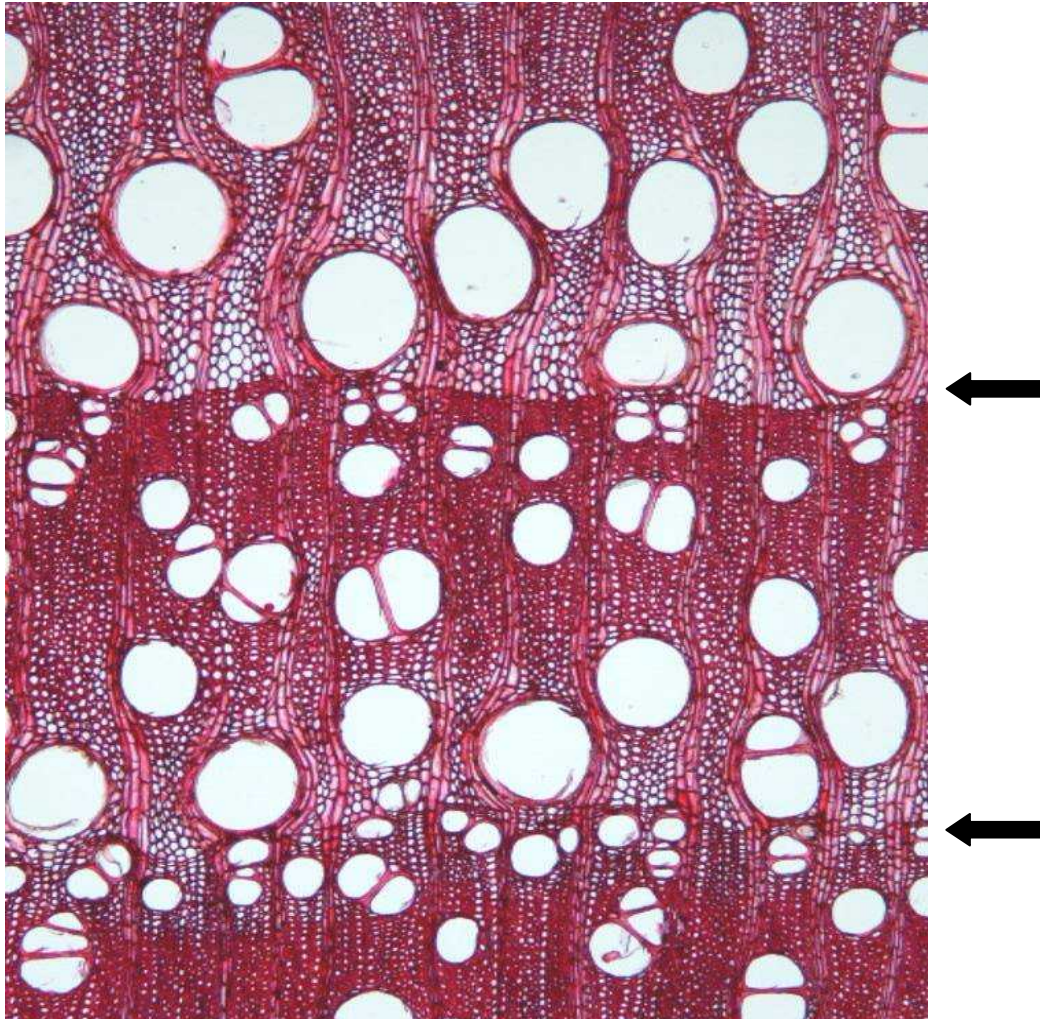


図6 チークの年輪

直径の大きい道管が成長期のはじめに形成されていることによって年輪の境界が認識できる。矢印が年輪の境界を示す。

試料としては、インドネシア産、ミャンマー産、インド産、ガーナ産のチークの円盤あるいは直径5mmまたは12mmの成長錐コアを用いた。試料を1.0-1.5 mm厚さの木口薄片に加工し、軟X線デンシトメトリにより年輪幅を測定した。個別の年輪幅時系列を常法にしたがってクロスデートし、年輪形成年代を決定した。個別の年輪幅時系列を下式によって指数に変換し³⁾、さらに国別に平均することによって国別標準年輪幅時系列を作成した。

$$I_i = \log \left(\frac{y_i}{y_{i+1}} \right)$$

I_i : i 年における指数、 y_i : i 年における年輪幅、 y_{i+1} : $i+1$ 年における年輪幅

年輪幅の測定に関しては、厚さ1mmの小口薄片を軟X線によりレントゲン写真と同様の原理で写真を撮影し、デンシトメータ (Walesch Electronics Dendro 2003) により年輪幅・密度を測定した。個体別、方向別に作成したチークの年輪幅指数時系列と国別に作成した4つの標準年輪幅指数時系列との間で回帰を行い、相関係数 R 、 t 値及び p 値を計算により得た。このとき、 R が正でかつ p 値が最小となった国を産地とした。

(2) 年輪の安定同位体比の測定方法およびそれを用いた産地判別法

研究代表者の考案した産地判別手法は、「互いに近くに成育する樹木同士ほど、年輪の安定同位体比フィンガープリントの類似性が高い」という性質 (図7) を利用している。産地未知木の年輪の安定同位体比時系列と、周辺各地の産地既知木の同位体比時系列との間の相関係数を計算し、相関係数が最大になる地点を探して産地を推定することができる (図8左)。この手法 (個体間相関法、手法1) が最も産地判別の精度が高いが、最高の精度を得るためには対象とする地域一帯に成育する樹木の年輪同位体比時系列のデータベースを構築する必要がある。手法1では、データベースの構築に時間を要し、すぐには産地判別が行えないという問題点がある。

1) 降水量データを用いた木材の産地判別手法

そこで我々は、産地判別の誤差は大きくなるものの、データベース構築を要しない降水量データを用いる産地判別法 (手法2) を考案した (図8右)。年輪の同位体比・年輪幅は成育地の降水量・気温と相関があることが知られており、古気候復元に用いられてきた⁵⁾。この関係を逆に利用して、産地未知の木材の同位体比・年輪幅時系列がどこの測候所の降水量データと最も高い相関を示すかを調べることにより、木材の産地を推定することができる²⁾。年輪の同位体比時系列と世界各地の測候所の春-夏の降水量時系列との相関関係から、我々はすでに極東ロシア産アカマツ (図8右)、木曽ヒノキ、秋田スギ他の産地判別に成功している。同一サイト内の樹木個体を比較するために、複数の年輪の時系列に分散分析を適用し、変動が共通した部分をシグナル(S)、個体間でばらつく部分をノイズ(N)として S/N 比を計算できる。産地識別の精度は S/N 比とともに高くなり、温帯産材の年輪の酸素同位体比・炭素同位体比・年輪幅時系列の S/N 比はそれぞれ 15, 7.8, 4.6 となり^{1), 6)}、温帯・亜寒帯では酸素同位体比が産地判別に最も有効であることが分かっている。

2) 安定同位体比情報を用いた産地判別手法

インドネシア・ジャワ島中部のBoyolaliにおいて入手した試料を年輪ごとに厚さ1mmの木口薄片を切り出し、後述する新手法で α -セルロースを抽出した後、酸素・炭素同位体比時系列を作成した。円盤の2半径方向で時系列を作成し、成長期の降水量との相関により産地判別を試みた。また、本研究課題の経費で導入した高温熱分解型元素分析計（Hekatech社HTO、図9）を導入し、2種類のセルロース標準試料の酸素同位体比の測定により精度を検証した（図10）。さらに、インドネシア・ジャワ島中部のCilacapにおいて入手した試料について、高温熱分解型元素分析計年輪ごと及び年輪をさらに4~16等分した季節ごとの酸素同位体比時系列を作成した。

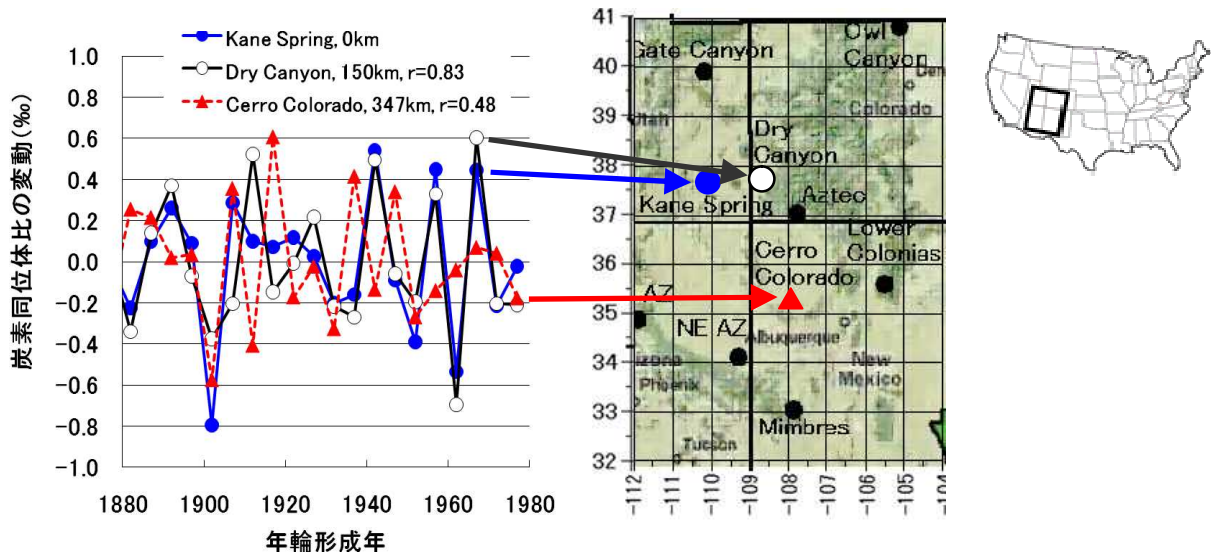


図7 2つの異なる産地に生育する樹木の炭素同位体比時系列間の相関係数と産地間距離との関係。距離の小さい●と○は類似している(150km, $r=0.83$)が、距離の大きい●と▲は類似性が下がる(347km, $r=0.48$)。

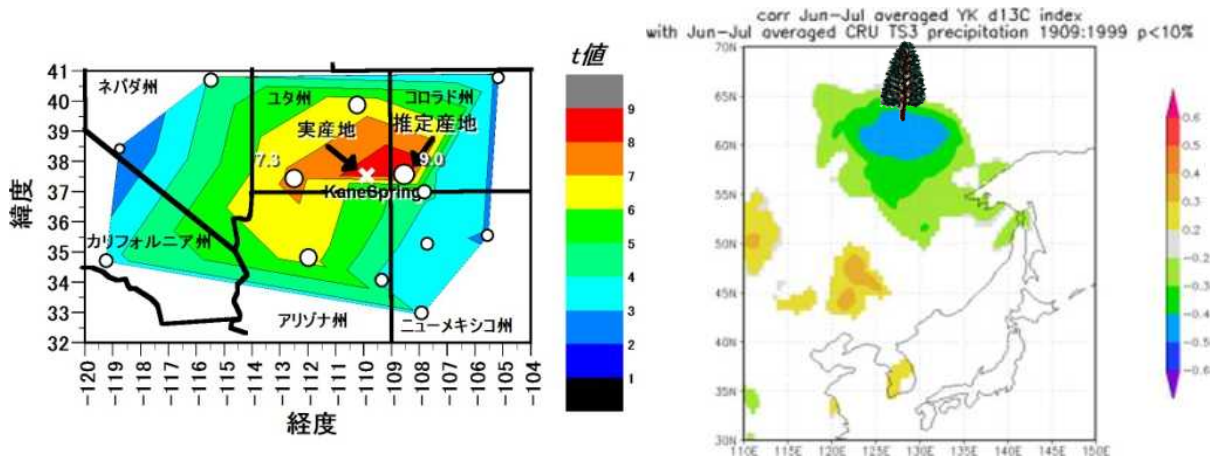


図8 (左) 手法1による北米産マツ材の産地判別 本当は産地(×印)が分かっている木材を産地未知のものと仮定する。この木材の年輪の炭素同位体比時系列は、実際の産地の周辺の樹木と高い類似性(t 値、○印の直径)を示すので、類似性が最大になる地点(色等高線の赤色部分)として、木材の産地が推定できる。 t 値は相関係数(r)、年輪数(n)から計算される。(右) 手法2によるシベリア産アカマツ材の産地判別 年輪の同位体比は降水量の復元に用いられている。この関係を逆に利用して、世界各地の測候所の降水量時系列と産地未知材の年輪の同位体比時系列との相関を計算し、相関係数が最も高くなる地点として、産地を推定できる。

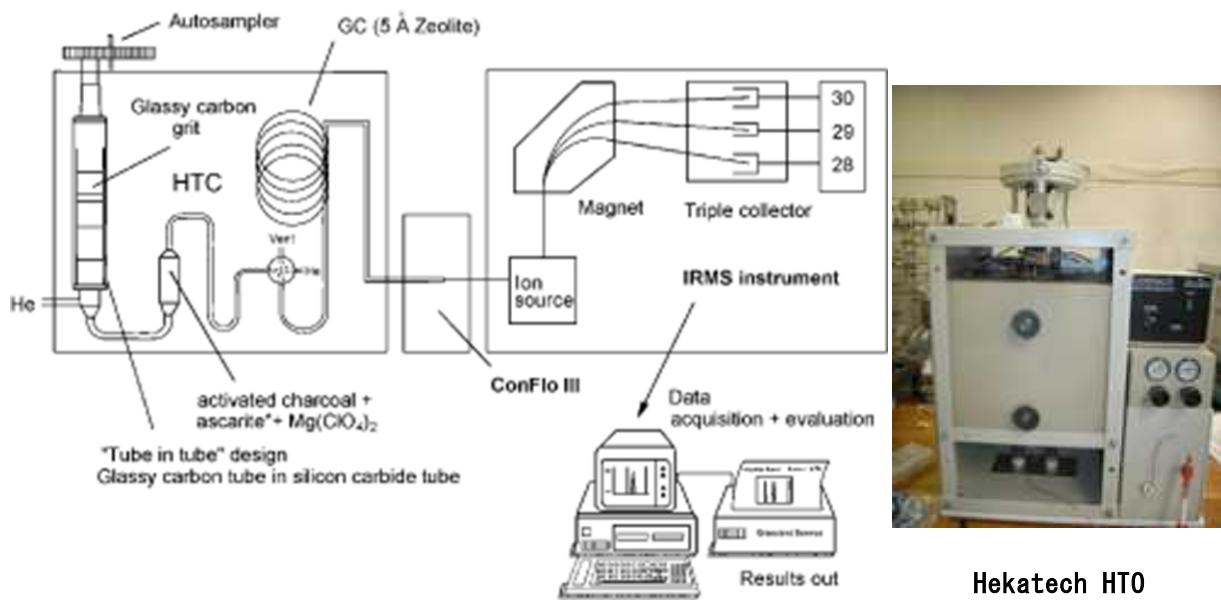


図 9 高精度酸素同位体比分析システム 誤差が小さいほど産地判別の結果が正確になるため、できるだけ分析誤差を小さくすることが望ましい。

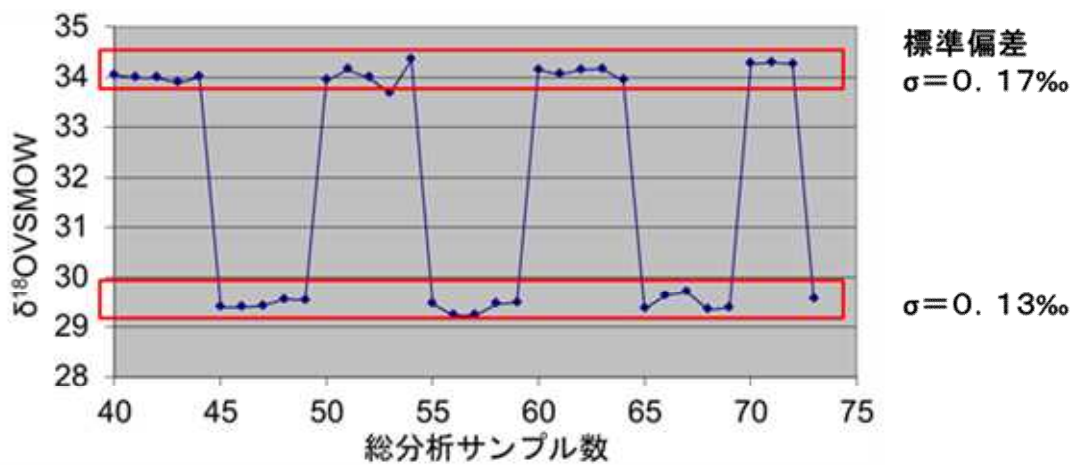


図 10 酸素同位体比の分析精度 2 種類のセルロース標準試料を交互に測定して精度を確認した結果、酸素同位体比分析誤差は 0.13-0.17‰ となり、目標である誤差を 0.3‰ 以下にすることに成功した。

(3) 同位体分析システムの立ち上げ・分析前処理法の効率化

1) Hekatech HTO による酸素同位体比分析システム立ち上げ

有機物の酸素同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$) は農林水産物の産地推定でも利用されており、近年の分析技術の自動化(Continuous-flow method)⁷⁾により、利用が急速に広まっている。自動分析では、セルロース等の有機物試料を無酸素・高温条件下で熱分解することにより一酸化炭素を発生させ、これを質量分析計に導入して質量数 30($^{12}\text{C}^{18}\text{O}$)と 28($^{12}\text{C}^{16}\text{O}$)の出力比から酸素同位体比を測定する(図9)。本課題では 1450°C以上で有機物を熱分解する高温分解炉(Hekatech HTO)を用いた高精度(誤差 $\sigma < 0.3\text{‰}$)の酸素同位体比分析システムを立ち上げた。

また、将来の産地判別の実用化には同位体分析に必要なコスト・時間を減らすことが不可欠なので、同位体分析法の改良も行った。従来、年輪の同位体比分析は年輪を実体顕微鏡下でナイフを用いて一年輪毎に切り離し、年輪数分の試料からセルロース抽出する作業が必要だったため、分析試料作製に膨大な時間が必要であった(図11)。膨大な試料数をセルロース抽出する部分が分析時間の大部分を占めており、これが同位体を用いた産地判別技術を実用化する際に大きな障害となっていた。そこで、同位体分析にかかるコスト・時間を大幅に削減する方法を試みた。

2) 効率化されたセルロース抽出方法

a セルロース抽出用の試料の作成

直径 5mm または 12mm の成長錐コアを木口面が上面になるように接着面を調整し、アセトンで容易に除去できる接着剤(セメダイン)でコの字型の柾木(図12A)に埋め込み、接着した(図12B)。次に、丸鋸またはローズスピードダイヤモンドホイールソー(Leica SP1600)を用いて(図13)、木口面に平行に、コアから厚さ 1.0mm の幅の木口薄片を切り出した(図12C)。従来は丸鋸を用いてこの作業を行うが、ダイヤモンドソーを用いた場合は薄片の表面がより平滑になり、年輪界などの組織構造が明瞭な薄片の作成が可能である(図13)。薄片切断後、薄片の添え木を取り除くため、メスシリンダー内でアセトンを入れ、接着剤を溶かすことにより添え木を取り除いた(図12D)。円板試料から切り出した年輪ブロックは柾木に接着作業を行うことなくそのまま薄片を切断した。

b 抽出成分除去

樹脂などの抽出成分を除去するため、ソックスレー抽出機および温水(図12F)でそれぞれ2日間程度処理した。有機溶媒による脂質の抽出では、トルエン:エタノール=1:1で2日間抽出した。また、残存する接着剤を完全に除去するため、アセトンを用いて同様な抽出を行った(図12E)。有機溶媒抽出後、沸騰水中で2日間程度薄片を温水抽出した(図12F)。セルロース抽出後、年輪を切り出すときに、元の年輪界が判別しやすいように、以下の薬品処理に移る前に、薄板の画像を、スキャナーを使って、できるだけ高解像度(1200dpi~2400dpi)で取り込んだ(図12G)。

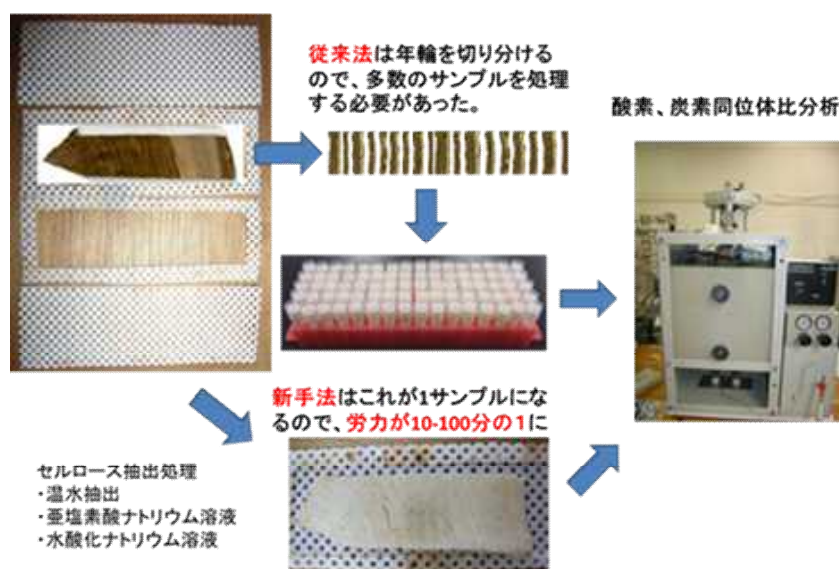


図 11 年輪の酸素同位体比分析法の改善 この手法の改善により、同位体比の分析に要する時間・コストが 10～100 分の 1 になり、同位体比を用いた木材産地判別技術の実用化に 1 歩近づいた。

c 反応管への試料の導入

抽出成分の除去が終了した 1.0mm 厚の薄板を、テフロンパンチシート（フロン工業社製、厚さ 0.5mm、孔サイズ 1.5mm、ピッチ 3mm）に木綿の糸で挟み、縫い合わせて封入し（図 12H）、直径 18mm の平底ガラス管に入れた（図 12I）。これにより、もろいセルロース試料の崩壊を防ぐことができる。溶液の蒸発を防ぐために、平底ガラス管の上端に軽く蓋（アズワン、ミニカップ）をしてステンレス製の試験管立てに立て、超音波洗浄機に漬けて、30 分間試料を攪拌した。その後、平底ガラス管ごと、試料を乾燥させた。

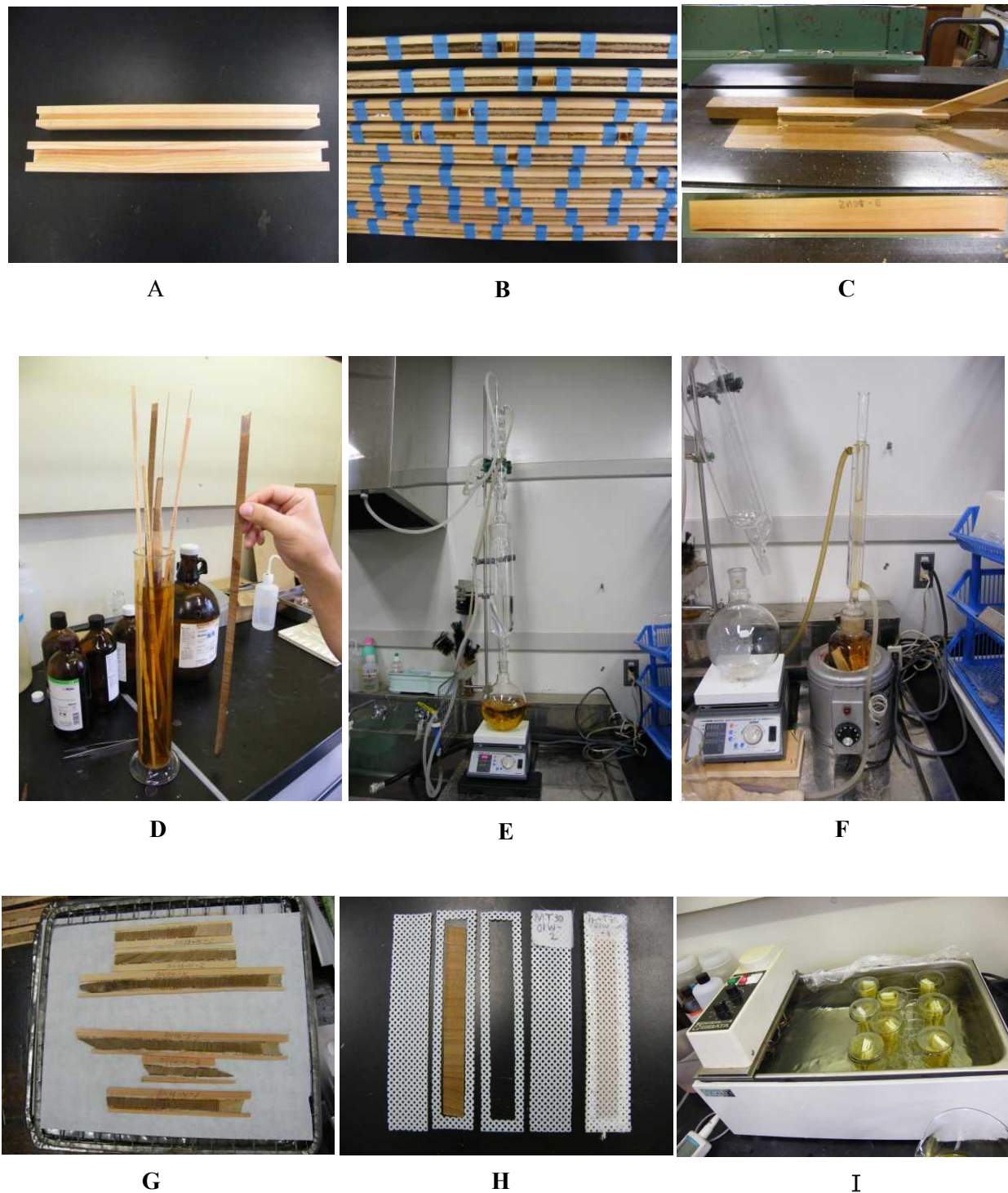


図12 チーク薄片の作成・テフロンケースへの試料の封入・抽出成分およびリグニン除去

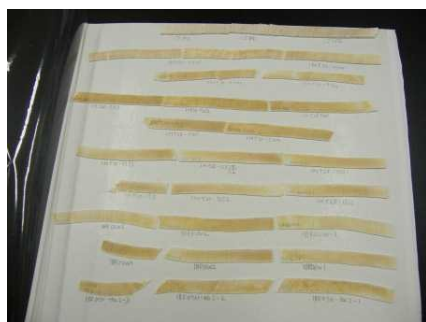
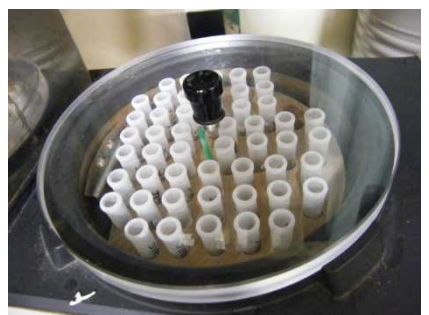
**J****K****L****M****N****O****P****Q****R**

図 12 (続き) ヘミセルロース除去・凍結乾燥・年輪の切り分け・ホモジナイズ・秤量作業

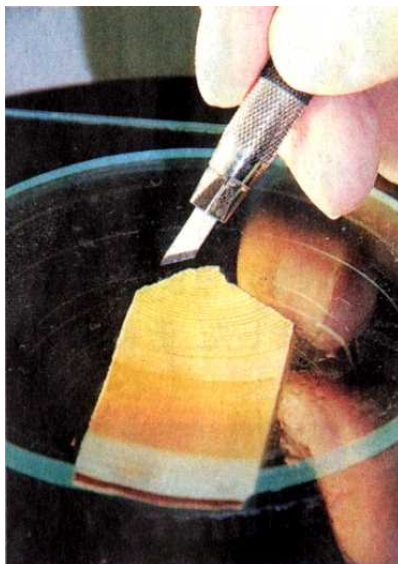
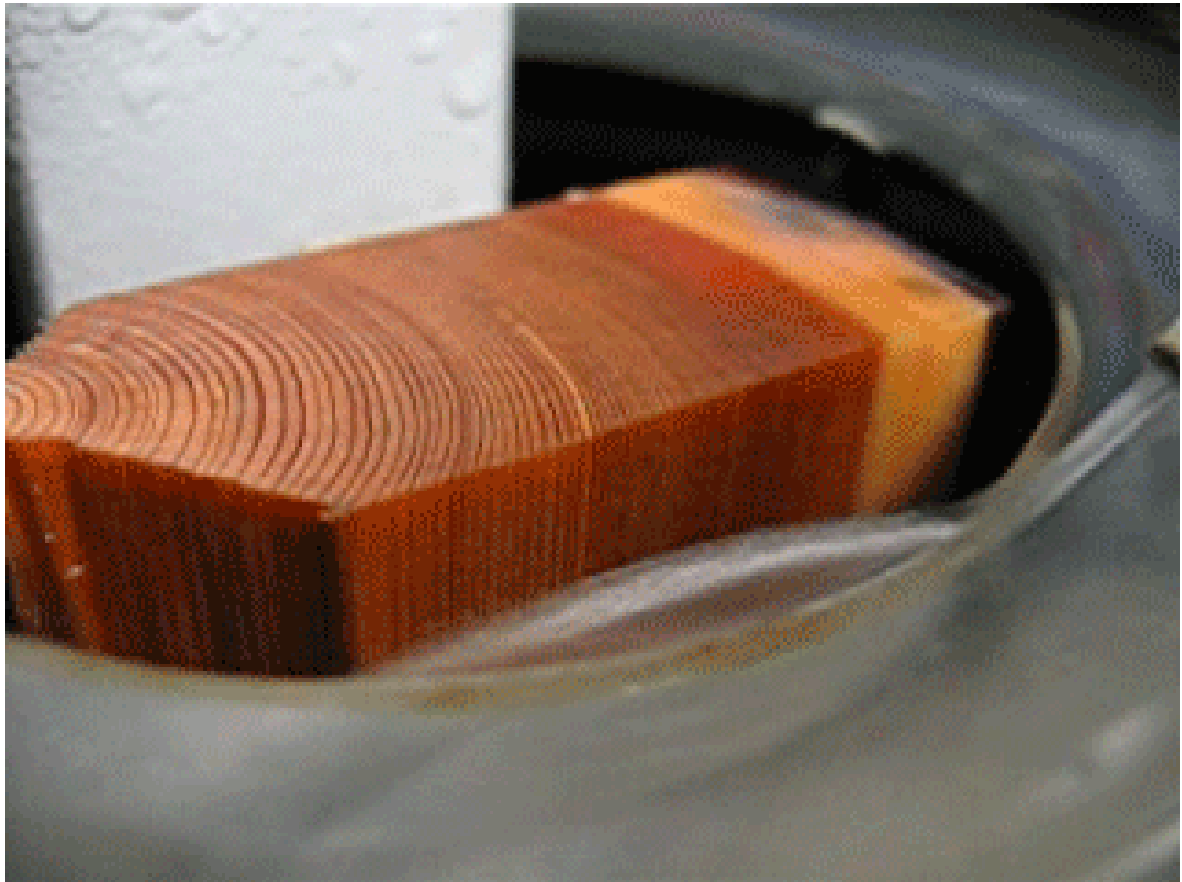


図 13 ダイヤモンドソーによる木口薄片の作成 通常の丸鋸による薄片に比べ、ダイヤモンドソーを用いることで、年輪境界を含む組織構造が明瞭な切片を作成することが可能になった。

d 漂白（脱リグニン）

蒸留水から作った湯をビーカーの中に 350ml 入れ、空の平底ガラス管に注ぎ入れた。ドラフト中で、それぞれの平底ガラス管に亜塩素酸ナトリウムを 10.0g、酢酸を 5ml 加えて、攪拌した（お湯と試薬の量は、この比を保ったまま、必要に応じて増減させた）。多量の塩素の泡が発生するのを確認後、泡が出てこなくなるまでしばらく待ち、次に続く試薬を加えた。これは、泡が反応中の試料に大量に付着すると、試薬の反応性が落ちるからである。

サンプルの薄板が入った平底ガラス管の中に、試料が余裕を持って浸る程度に上で調整した反応液を加えた。次に、ミニカップで軽く蓋をした平底ガラス管を試験管立てに立て、水温 70℃のウォーターバスに入れて 1 時間静置した。その後、平底ガラス管の中の反応溶液を新しいものに交換して、再び、水温 70℃のウォーターバスに入れて、1 時間静置することをさらに 3 回繰り返した（この 1 時間静置の間に塩素が抜けてしまうのを防ぐために、最初にまとめて反応溶液を作らないように注意しなければならない）。

e 蒸留水（蒸留湯）による洗浄（3回）

漂白反応が終わったサンプルの入っている平底ガラス管に蒸留湯を加え、超音波洗浄機で 5 分間洗浄した。蒸留水を入れ替えて、真空デシケーターに入れて泡を取り除き（図 12J）、しばらく静置した後、蒸留水を捨てた。この作業を 3 回、繰り返した。

この段階では、木材の薄板は、確実に元の形状を保っていた。このあとに行うアルカリ反応では薄板の物理的強度が弱くなるため、なるべく試料に物理的衝撃を与えないように（テフロンケース中の薄片を壊さないように）、慎重に溶液を加える、または除去する必要がある。

f アルカリ反応（脱ヘミセルロース&脱リグニン）

アルカリ反応は 3 回行った。抽出を始める前に 17.5% (wt/wt) NaOH 溶液をあらかじめ必要量作った。上記の洗浄が終わったサンプル薄板の入った平底ガラス管の中に、17.5%NaOH 溶液を、サンプルが浸るまで入れた。反応中、テフロンパンチシートに吸着した泡を取り除くために真空デシケーターで真空引きをして泡を除去した（図 12J）。反応終了後、平底ガラス管にミニカップで再び蓋をして試験管立てに立て、水温 80℃のウォーターバスに浸けて 60 分間静置した。その後、平底試験管の中の NaOH 溶液を、新しいものと取り替えた。以上の液温 80℃での 60 分間の反応を、3 回繰り返した。

g 蒸留水と弱塩酸による洗浄（数回）

アルカリ抽出が終わったサンプルの薄板が入っている平底試験管に蒸留水を入れ、テフロンパンチシートに吸着した泡を取り除くために真空デシケーターで真空引きを行い泡を除去した。その後、しばらく静置して洗浄水を捨てた（図 12J）。この作業を、2,3 回繰り返して、pH が 10 以下であることを確認してから、pH2 程度の弱塩酸を加えて、同様に真空デシケーターで泡を取ってから、しばらく静置した。以後、残留している試薬を完全に除去するため、上記と同じ蒸留水による洗浄操作を液の pH が 5-7、電気伝導度が 10 μ S/cm 以下の範囲に入るまで繰り返した。

h セルロース試料の乾燥と回収

洗浄の終わったサンプルの薄板は、平底ガラス管に入れたまま試験管立てに立て、恒温機の中で 80°C で一晩乾燥させた。乾燥するときに試料形状が崩壊する恐れがある場合は、試料の崩壊を防ぐために、薄片中の水を t-butyl-alcohol に置換して真空乾燥させる方法を必要に応じて用いた。乾燥後、試料は写真用の粘着バインダー（ナカバヤシ フエルアルバム ア-LDR-5）に挟んで保管した（図 12M、試料がバラバラに崩壊した場合は、ジグソーパズルを解くように元の形に復元した）、実体顕微鏡下で、カッターナイフを用いて年層毎に分割し（図 12N）、エッペンドルフチューブ（No 95170）に入れた。その際、早材から晩材へと至る年輪の構造を破壊しないように、慎重に試料を切り取った。切り取った年輪試料の入ったエッペンドルフチューブに 1-2ml の蒸留水を入れ、本課題で導入した超音波ホモジナイザー（Branson Sonifier 250 アナログ+1/8"マイクロチップ）を用いて超音波をかけてセルロース試料をホモジナイズした（図 12O）。ホモジナイズ後、セルロース試料は凍結乾燥機で乾燥し、脱脂綿状の同位体分析試料を得た（図 12P,Q）。

3) 試料の銀カプセルへの梱包と同位体比の測定

上記の脱脂綿状試料から約 150~250 μ g のセルロースを秤量した。1 サンプルにつき 2 回の繰り返し測定を行うため、2 つの銀箔（厚さ 4 μ m で、7 x 7mm 四方に切ったもの）上に秤量し、ピンセットを用いて梱包した。銀箔に包んだ試料は、真空乾燥機を用いて、1 晩乾燥させた後、Hekatech HTO に Thermo Scientific MAT252 を接続したシステムで、酸素同位体比を測定した。

4) 気候相関法及び個体間相関法による産地判別

得られた酸素・炭素同位体比の年変化の時系列（図 14, 15）と世界各地の月別降水量データとの相関係数・有意水準を計算して産地判別を行うために、オランダの Climate explorer (<http://climexp.knmi.nl>) 上に時系列をアップロードし、コンピューターによりシミュレートされた全世界の降水量グリッドデータ（1901-2006: CRU TS 3.1 (land) 0.5°）を用いて相関係数・有意水準の分布を計算した。まず、産地が分からないと仮定したチークの同位体比・年輪幅時系列と実産地付近の測候所で得られた気温・降水量等の気候因子データとの相関を計算し（図 16）、次に年輪の同位体比・年輪幅時系列と有意な相関が見られた月の気候データとの相関を世界地図上にプロットし（図 17-1）、相関係数の有意水準を徐々に高くしていき（ $p < 10\%$ から $p < 0.5\%$ 程度まで段階的に変えていく）、世界中で最も気候因子との相関が高くなる地点を推定産地とした（図 17-2）。個体間相関法による産地判別に必要な統計計算は、マイクロソフト社 Excel の分散分析（ANOVA）統計パッケージを用いて行った。

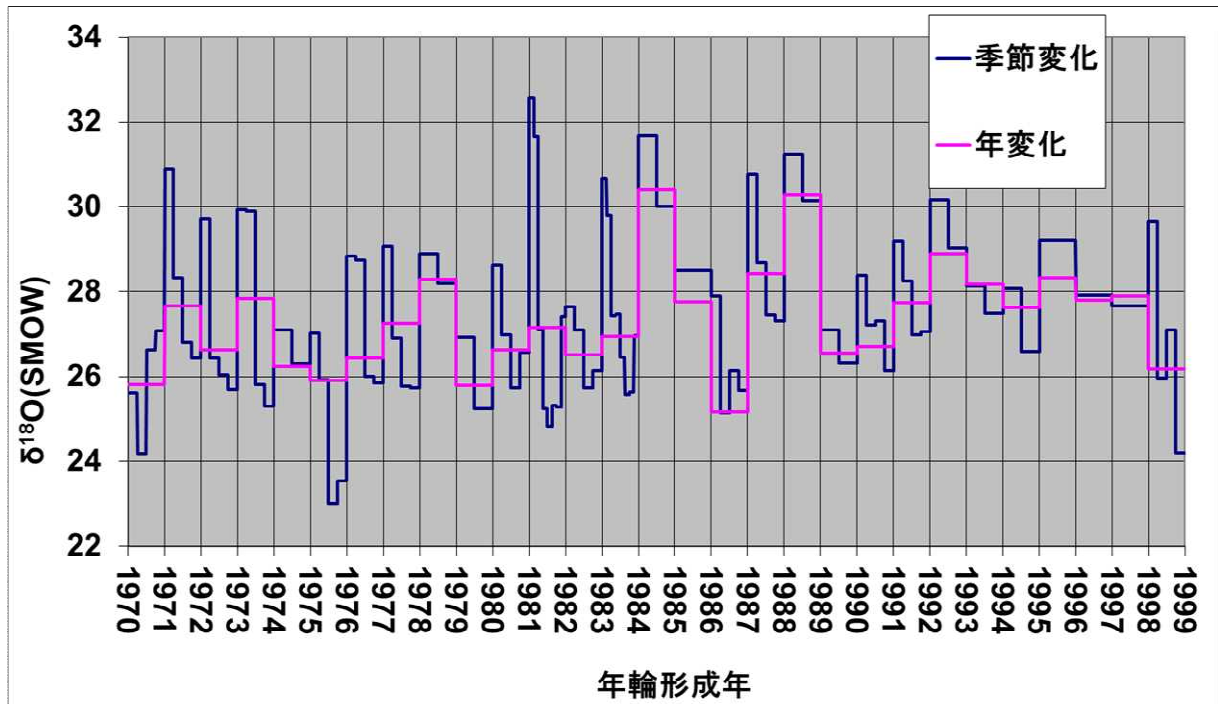


図 14 チーク年輪の酸素安定同位体比の年変化（桃色）及び季節変化（青色） 年変動よりも、季節変動が大きく、雨期の最初・最後に形成される木部での酸素同位体比は高く、雨期中盤で低いという結果を示した。

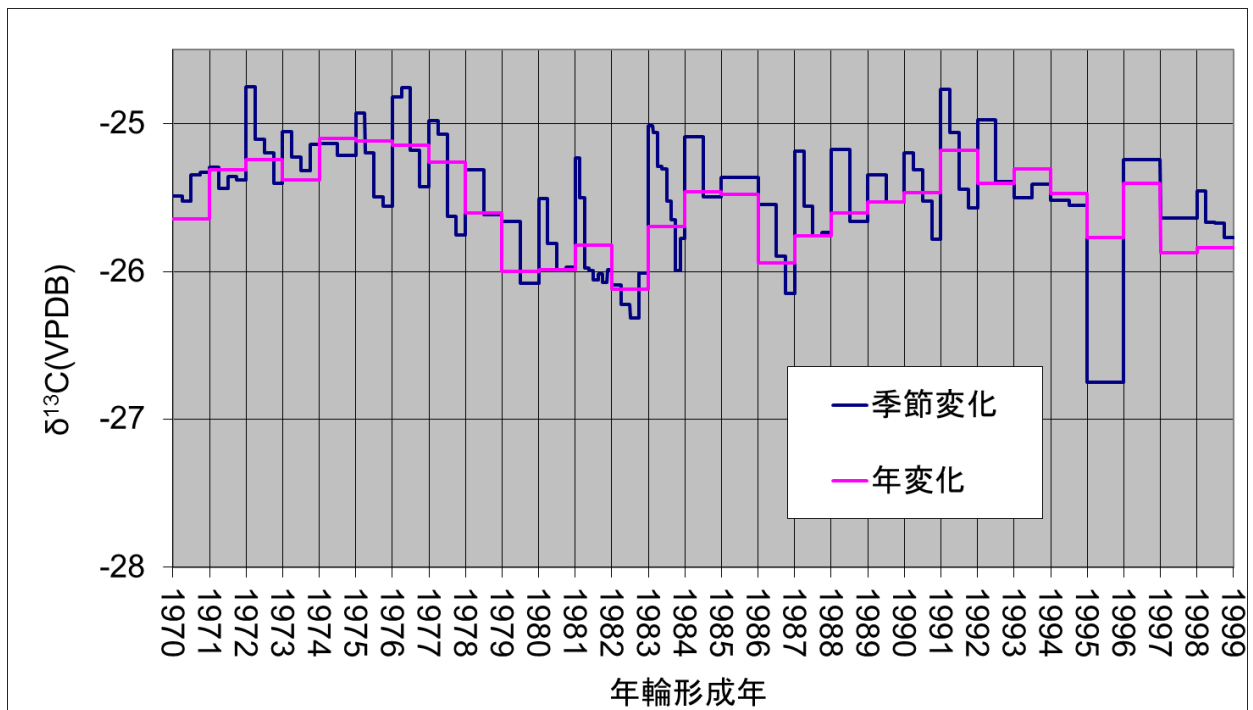


図 15 チーク年輪の炭素安定同位体比の年変化（桃色）及び季節変化（青色） 酸素同位体比の季節変化と同様に、雨期の最初・最後に形成される木部での炭素同位体比は高く、雨期中盤で低いという結果を示した。

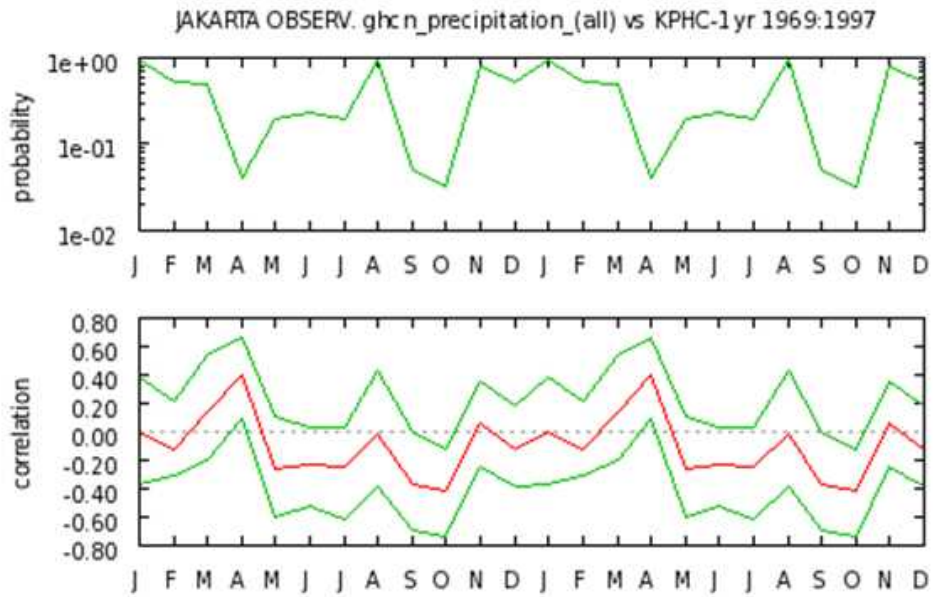
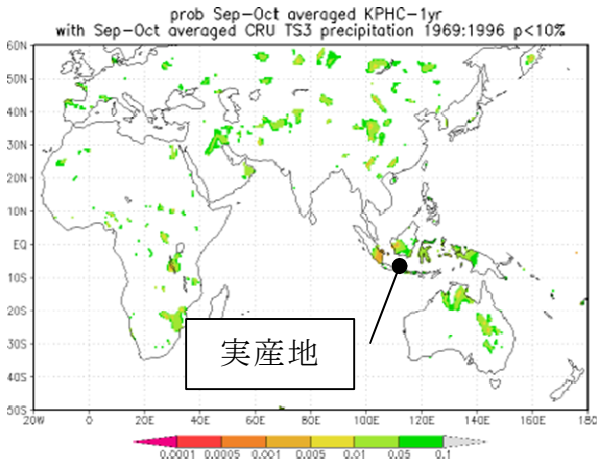
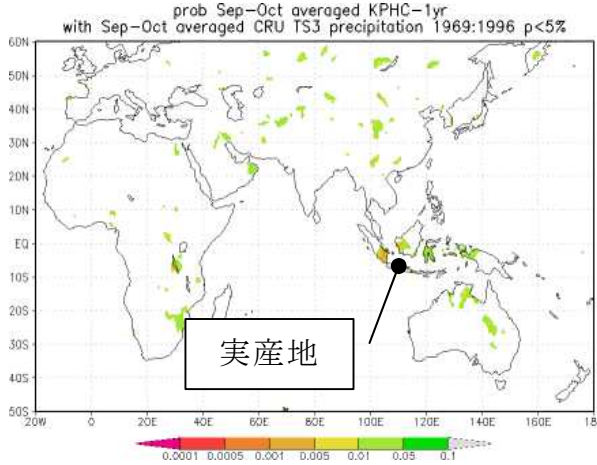


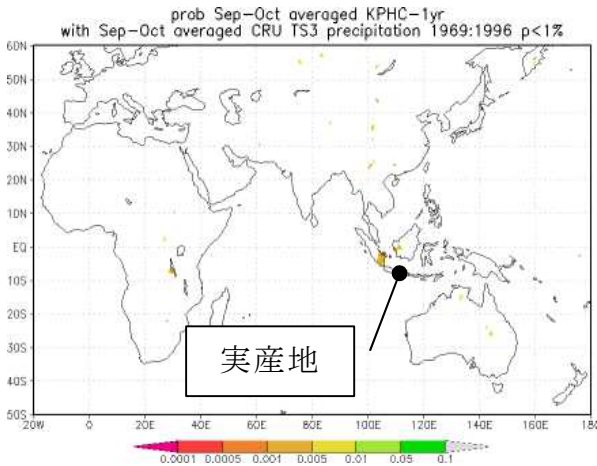
図 16 チーク年輪の酸素同位体比と降水量との相関 中央ジャワ産チーク年輪の酸素同位体比と実産地に近い測候所で得られた月別降水量との相関（赤線）およびその標準偏差（緑線） 酸素同位体比は 9-10 月（O）の降水量と強い相関を示した。



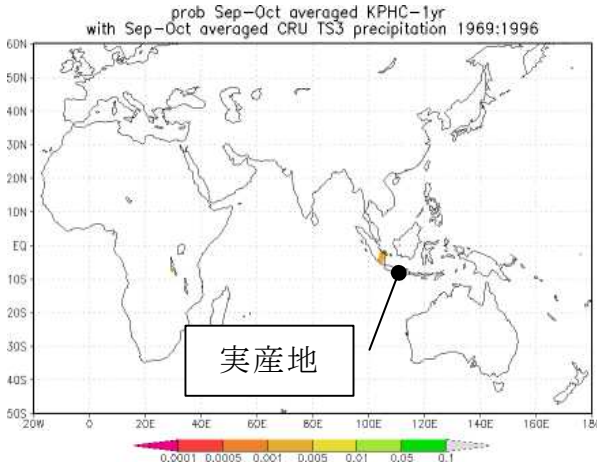
$p < 10\%$



$p < 5\%$



$p < 1\%$



$p < 0.5\%$

図 17-1 中央ジャワ産チーク年輪の酸素同位体比と、全世界の9-10月の降水量との相関を計算した例 世界中で有意水準が一定以上のエリアのみ、相関係数を色つきで示してある。

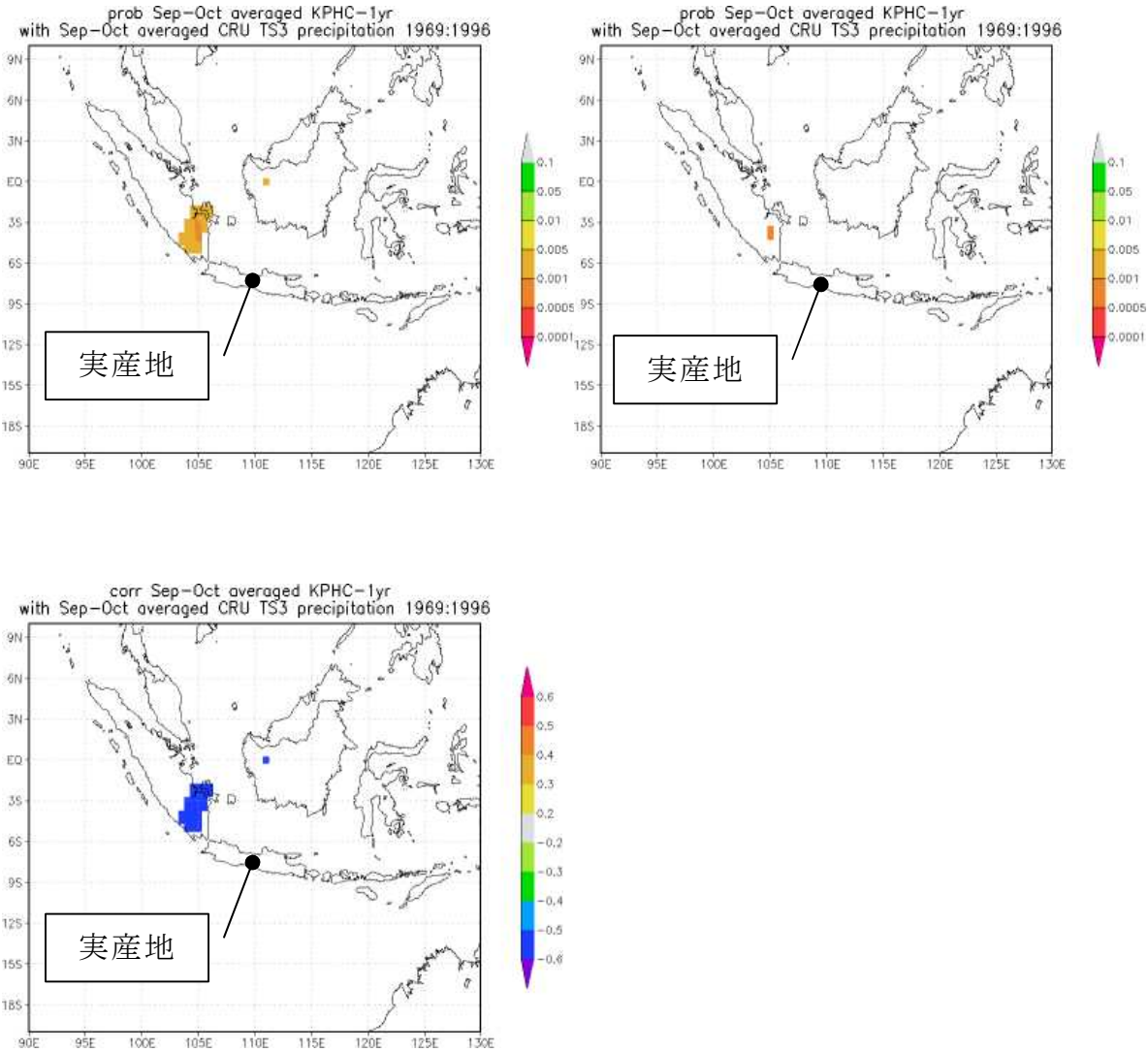


図 17-2 中央ジャワ産チーク年輪の酸素同位体比と、全世界の 9-10 月の降水量との相関を計算した例(東南アジア地域) 有意水準の高い地域 ($p < 0.005, p < 0.001$) のみ相関係数を色つきで示してある。

5) セルロース純度のチェック

従来のセルロース抽出方法では、年輪試料をボールミル (ICL, Wig-L-Bug Mill Heavy Duty Model) で 100 メッシュ程度の粒径まで粉砕した後、木粉をフィルターに封入して薬品処理を行っていたので薬液が木粉に直接作用する。新手法では 1mm 厚の薄片を用いるため、薄片の内部まで薬品が染み込みにくいので、セルロースの抽出が薄片内部で不十分となり化学的純度が低くなる懸念がある。そこで、新手法により調整したセルロース試料の残留ヘミセルロース・リグニン量を以下の方法により定量した。

- a. ヘミセルロースの定量はアルジトール・アセテート法⁸⁾により行った。新手法で調整した α -セルロース約 0.2g を精秤し、ビーカー中で 72%硫酸 3ml を加え、室温で 15 分に 1 回程度かき混ぜながら 1 時間放置した。試料が溶解して黒色の溶液状になったのを確認後、蒸留水 84ml を使って 200ml 容三角フラスコに全量を移した。三角フラスコを 120°C のオートクレーブ中で 1 時間処理して溶液をガラスフィルターでろ過後、ろ過物を秤量することにより、Krason リグニンを定量した。ろ液を冷却後、ホールピペットを用いて内部標準としてイノシトール液 (0.1%) を 5ml 加え、混合した。
- b. この溶液より約 20ml 程度をビーカーに取り、水酸化バリウム溶液を用いて pH5.5 に中和した。遠心分離を行い、上澄み液 25ml を 100ml 容ナス型フラスコに取った。水素化ホウ素ナトリウム 80mg を加えて混合し、室温で試料をアルジトールとした。過剰の水素化ホウ素ナトリウムを分解するために、氷酢酸をガスの発生がやむまで加えた。ロータリーエバポレーターを用いて、60°C 以下で溶液を濃縮し、溶液をシロップ状にしたのち、メタノール 10ml を加えて濃縮乾固した。これを 105°C の乾燥機中で 15 分間放置し、十分試料を乾燥させた。無水酢酸 8ml を加え、120°C の恒温機中で 3 時間反応させ、試料をアセチル化したのち、ロータリーエバポレーターを用いて、75°C 以下で約 2ml に濃縮した。
- c. この溶液 1 μ l をガスクロマトグラフに注入して、糖分析を行った。ガスクロマトグラフの分析条件は、以下のとおりである。

カラム：SP-2380、キャピラリカラム、長さ 30m×内径 0.25mm×膜厚 0.2 μ m

カラム温度:200~250°Cへ昇温

キャリアーガス：窒素

検出：水素炎イオン化検出機

- d. リグニンの定量は Krason リグニンのほかに、FT-IR による赤外線吸収スペクトルの測定により行った。赤外線吸収スペクトル測定のための試料は、臭化カリウム粉末 190mg と約 10mg のセルロースを混合し、ボールミルで 2 分間粉砕して作成した。この試料およびセルロース標準試料、抽出前のチーク試料をフーリエ変換赤外分光装置(Thermo Scientific NICOLET6700)により芳香核由来の吸光度のピーク(1500 cm^{-1})を測定し、リグニン存在の有無を確認した。

4. 結果及び考察

(1) 年輪幅・密度による産地判別

1) 個体別チーク年輪幅時系列と国別時系列

2 個体のチーク個体の産地間距離が離れるに従い、両個体の年輪幅時系列の間の相関係数は減少する。これを評価するため、中部インドの 8 サイトについてサイト間の相関係数を 1900～1999 年の 100 年間を対象に計算した。得られた相関係数は、0.084～0.689 の範囲にあり、平均値は 0.362 であった。また、サイト間の距離（10～400 km、平均 207 km）とサイト間の相関係数との間には正の相関（ $r^2 = 0.558$ ）があり、お互いに近接したサイト間で相関係数が高く、サイト間距離が大きくなると相関係数が小さくなる傾向にあった（図 18）。ミャンマー中部（Mandalay 近郊）及び南西部（Pyae 近郊）の 2 サイトについて年輪幅時系列を作成し、期間が重複する 1965 年～2000 年について両者間の相関係数を計算したところ、相関係数は 0.344 と 5%レベルで有意であった。また、ガーナ国内の北緯 7 度 11 分～35 分、西経 1 度 29 分～2 度 56 分の範囲の 4 サイトについてサイト別年輪幅時系列を作成した。4 サイトともに経年変動に共通する傾向が見られ、サイトと全平均時系列間の相関係数は、平均して 0.715（0.615～0.900）を示した。

国別に作成した 4 つの年輪幅指数時系列（図 19）をすべての時系列に共通する 1967 年～1999 年について互いに相関係数を計算した。最も高い相関が得られたミャンマーとインド間でも 0.16 であり（表 2）、有意な相関は得られなかった。また、成長が良い年と悪い年を示す指標年もほとんど一致しなかった（図 20）。これらのことは、年輪幅指数時系列が国によって異なる変動を示すこと意味し、国別の産地判別が可能であることを示唆している。

表 2 国別標準年輪幅時系列間の相関

	ジャワ	ミャンマー	インド
ジャワ	0.08		
ミャンマー	0.01	0.16	
ガーナ	-0.06	0.02	-0.01

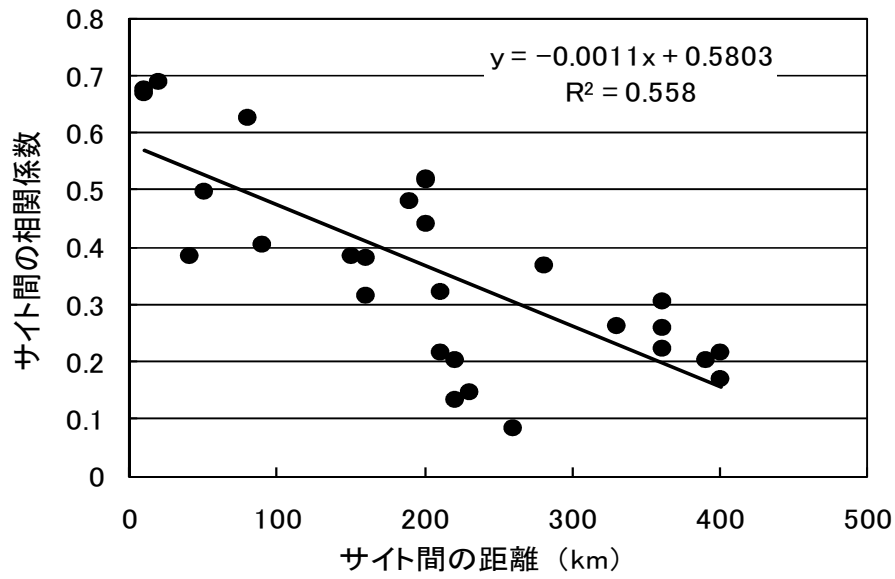


図18 サイト間距離とサイト別標準年輪幅時系列間の相関係数との関係

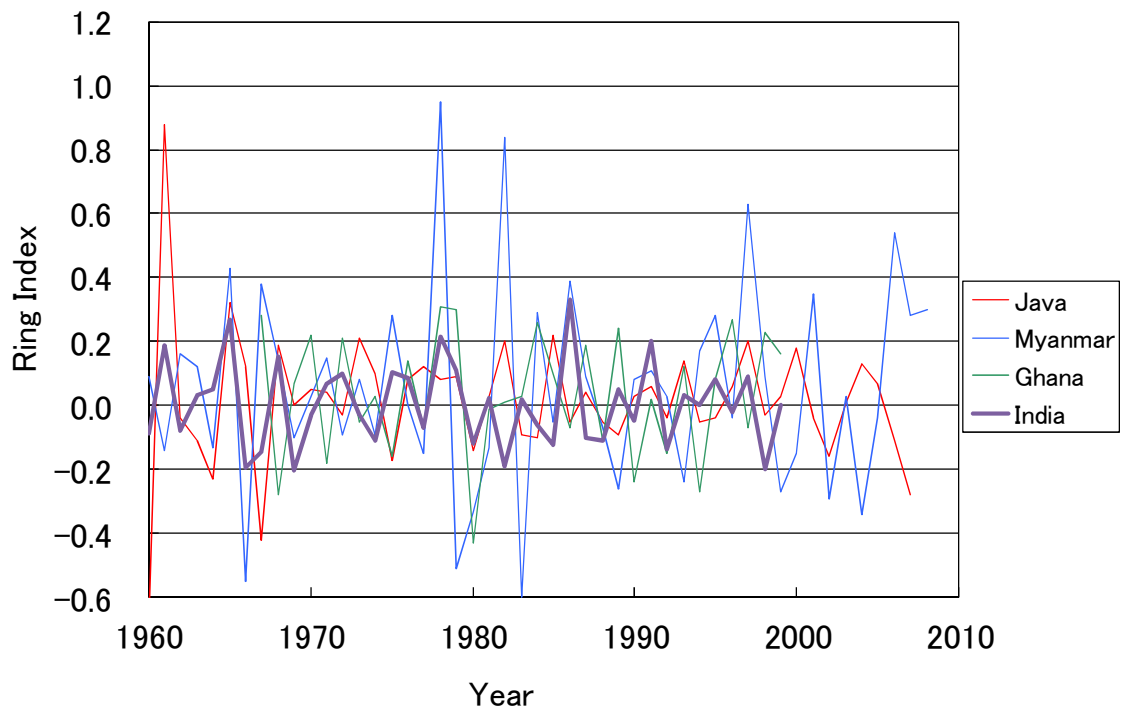


図19 4か国におけるマスタークロノロジー

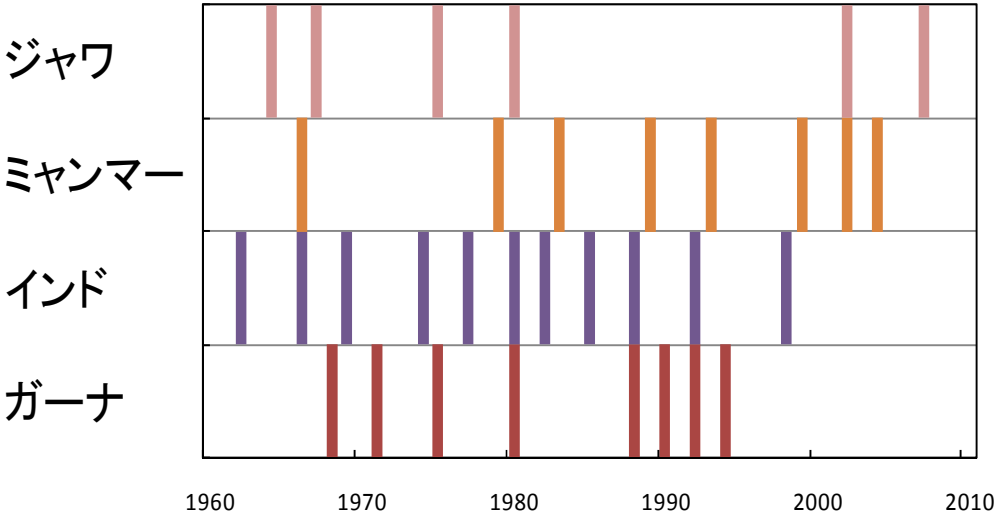


図20 インドネシア産，ミャンマー産，インド産，ガーナ産チークにおける指標年の分布

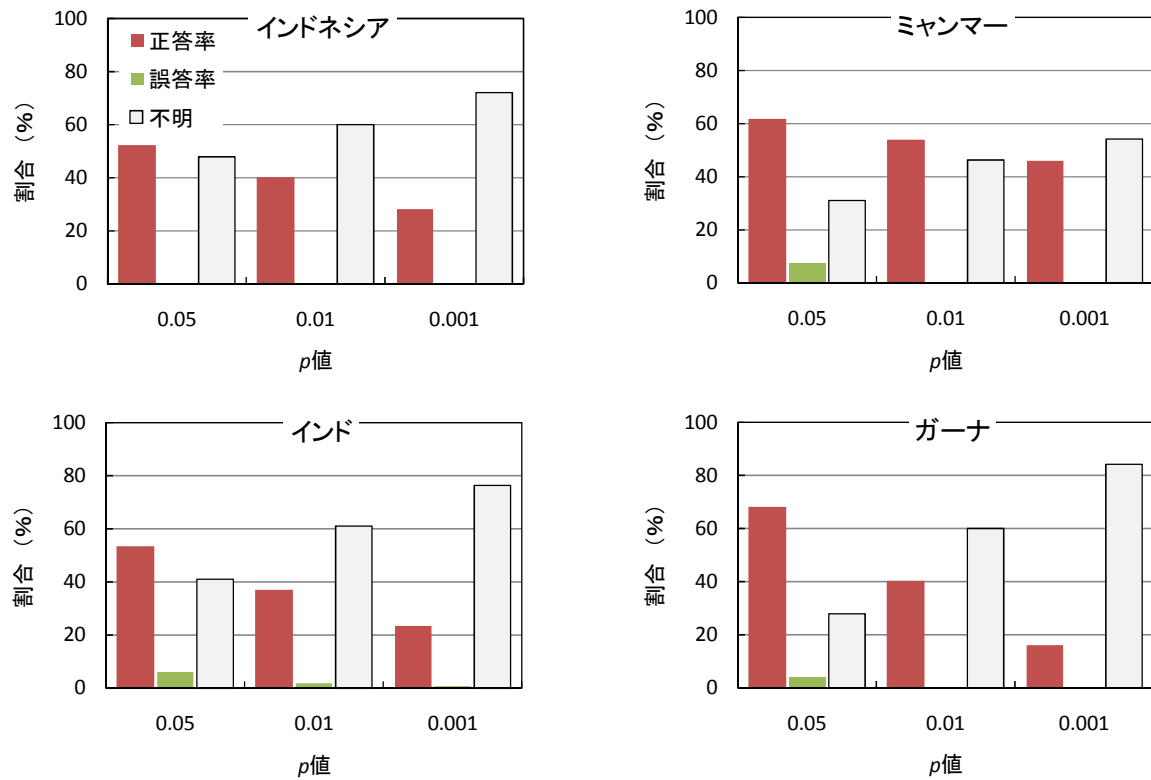


図21 国別に求めたしきい値 p 値による正答率，誤答率の違い
 産地既知の個々の年輪幅時系列と国別標準時系列との相関を求め、 r が正で p 値が最小となる国を産地とした場合における正答率と誤答率。 p 値が基準(0.05, 0.01, 0.001)に達しなかったものは不明に区分されている。

2) 年輪幅情報による産地判別

個体別、方向別に作成した年輪幅指数時系列と国別標準年輪幅指数時系列との間の相関から産地を判別する際の境界を p 値の大きさに定め、 p 値が 0.05, 0.01, 0.001 の 3 種類の場合について国別に産地判別の正答率、誤答率を求めた (図 21)。いずれの国においても産地判別の正答率は、 p 値が 0.05 のときに最大で、 p 値が 0.01, 0.001 と小さくなるにつれて正答率は低下した。また、誤答率も p 値が 0.05 の時が最も大きく、 p 値が 0.01, 0.001 の時には 2%以下となった。しきい値である p 値を小さくしていくと、いずれの国別標準時系列との相関が基準に達せず帰属産地が不明なもの割合が増加した。すべての年輪幅時系列をまとめてみると 3 つの p 値のうち、0.01 が産地判別に適していると考えられる。

しきい値 p が 0.01 のときに年輪年代が誤っているときに誤判定の危険性を確認するために、個別の年輪幅時系列の年輪年代を 0~10 年ずらした場合の正答率と誤答率を求めた。正答率は、年輪年代がずれている場合には 10%未満であったが、誤答率が 10%を超える場合があった。年輪年代を -10 年~+10 年までずらして、年輪年代の変化を加えて産地判別を行ったところ、正答率が 43%であるのに対し、誤答率が 31%に達した (図 21)。年輪年代が確定している試料の場合の誤答率が 2%未満であったことから、年輪年代の決定と産地判別を同時に行うことは、誤判別の可能性を高めると考えられる。年輪幅による産地判別の場合、ミャンマー産かインドネシア産かを分けて誤答率の制限を設けない場合では、ほとんど(98.5%)のケースで正しい産出国を示したが、誤答率の制限($p < 1.0 \times 10^{-6}$)を設けた場合は正しい産出国を出せる割合は 20.6%へ下がった (表 3、図 22)。なお、密度による産地判別も試みたが、チークの年輪の場合は密度の変動と気候因子との相関が弱く、産地判別は困難であった。

表 3

	危険率制限なし	危険率制限あり ($p < 1.0 \times 10^{-6}$)
年輪幅	98.5% (67/68個体)	20.6% (14/66個体)
酸素同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$)	83% (5/6個体)	83% (5/6個体)

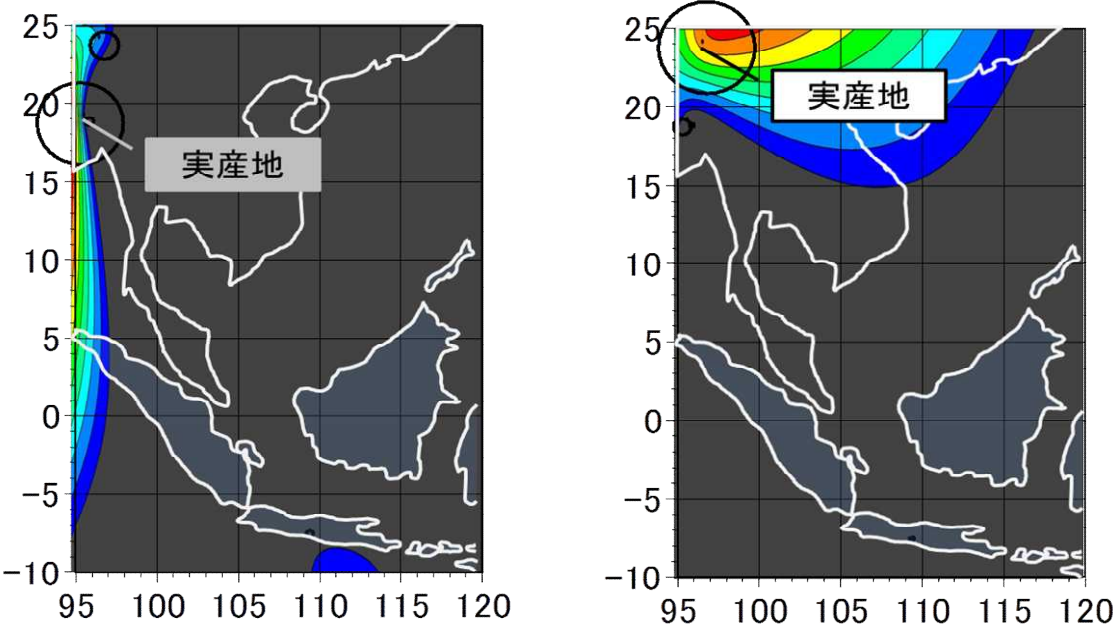


図 22 年輪幅による産地判別結果 測定が容易な年輪幅による産地判別でも、産出国はほとんどの場合(98%)で正しかった。産地判別を間違える可能性がほぼゼロ（有意水準 $p < 100$ 万分の 1）という条件を付けた場合の産地判別成功率は 20%程度であった。

(2) 降水量データを用いた木材の産地判別結果

降水量データを用いた産地判別法では、東南アジア産チークの産地判別を行うことは多くの場合困難であった。中央ジャワ産の個体の場合、産地判別は成功した(図 23 左上)が、ミャンマーで同様の産地判別を試みた場合、酸素同位体比による産地判別はすべて失敗した(図 24)。年輪幅と降水量との相関による産地判別はさらに難しく、複数の個体の年輪幅を平均したマスタークロノロジーを用いた産地判別がかなり成功した(図 25)。温帯の場合では、実産地付近に降水量と高い相関を示す部分(図 8 右の青色部分)が見られるが、熱帯に属する東南アジアの場合はそのような高い相関を示す部分は見られなかった(図 24)。降水量データを用いた産地判別が失敗した理由として、(1) 東南アジアは熱帯で四季が不明瞭なこと、(2) 測候所の数が少なく、欠測が多いこと、(3) 樹木の生長期間が温帯と比べて長いこと等、が理由として考えられる。

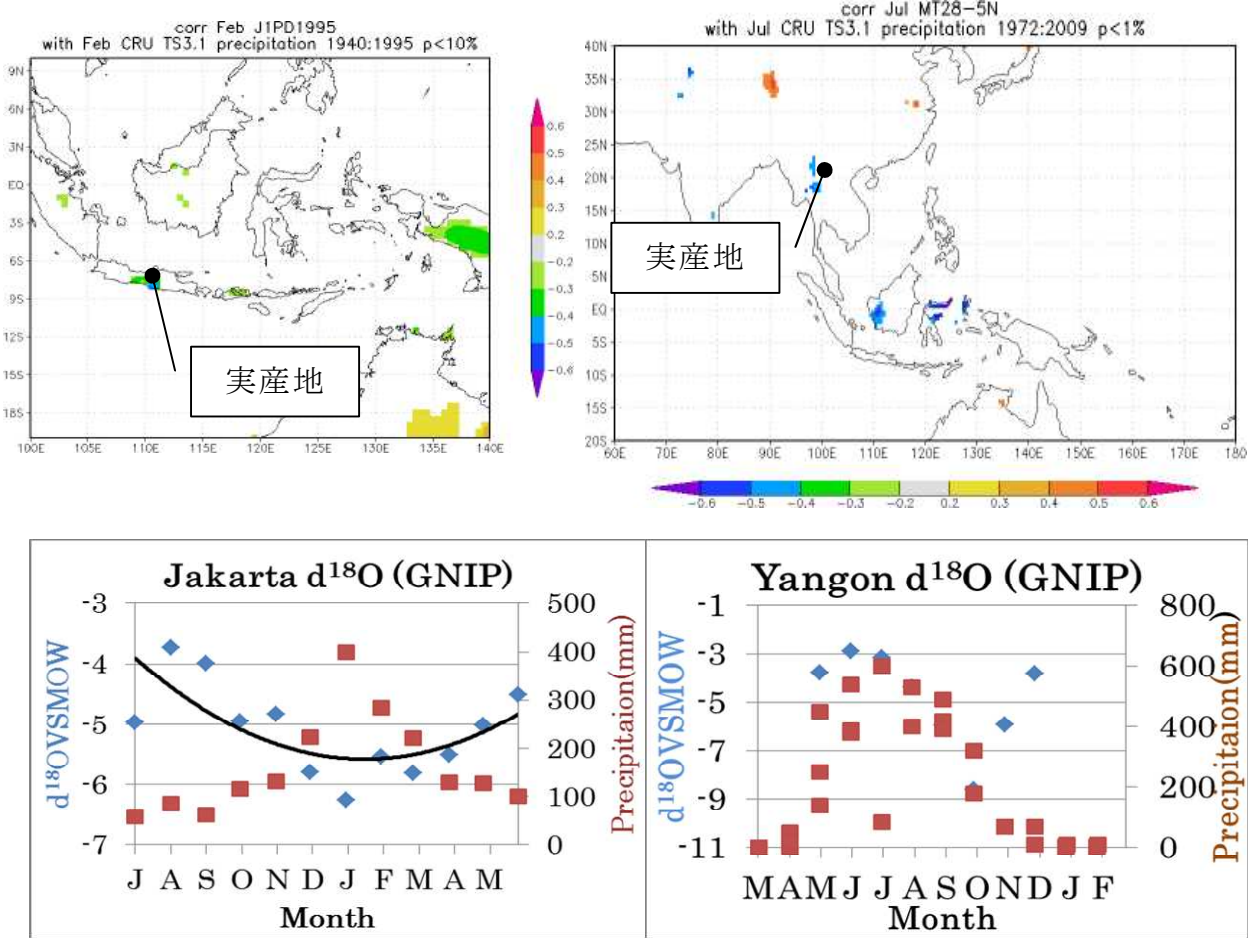


図23 インドネシア・ミャンマー産チークの産地判別例と各地の降水量・降水の酸素同位体比の季節変化

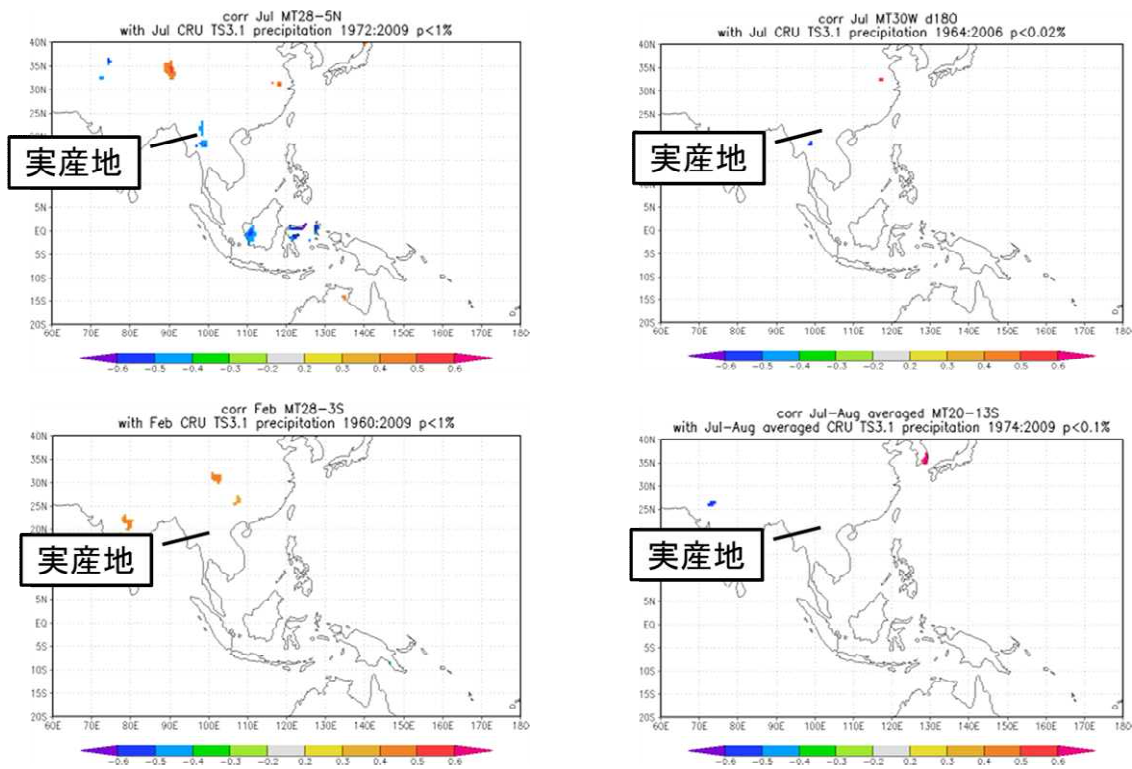


図 24 降水量データによるチークの産地判別結果 温帯では半分程度は産地判別が成功する本手法も、熱帯である東南アジアでは、ほとんどの場合において、降水量を用いた産地判別は失敗した。

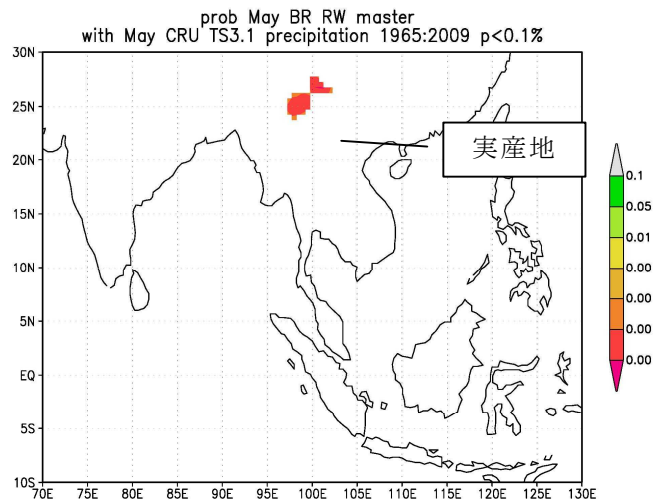


図 25 チーク年輪幅を全個体で平均したもの（マスタークロノロジー）と5月の気温との相関により、チークの産地を推定した例 年輪幅では気候相関法による産地判別が非常に困難で、多数の個体の年輪幅を平均しないかぎり、産地判別は不可能であった。

(3) 安定同位体比データベース構築によるチーク産地判別の結果

中央ジャワ産チークの酸素同位体比の年変化・季節変化を調べてみたところ、年変化とともに大きな季節変化もみられた(図 14)。手法 1 および手法 2 で産地判別を行う場合、年変化で十分産地が判別できることが分かったので、本課題では年変化(図 14 の桃色のデータ)による産地判別に統一した。

酸素同位体比の年変化を用いて、手法 1 による産地判別法を試みたところ、市場流通材の大部分を占めるミャンマー産・インドネシア産のチーク材の産地判別に成功した。また、成功した場合の産地判別結果の空間誤差は 180km 以下であった。測定の容易な年輪幅による簡易産地判別でも産地判別結果は 98% 以上の場合で正しかったが、産地判別結果が確信できる(有意水準 $p < 10^{-6}$) という条件をつけた場合の産地判別成功率は、酸素同位体比で 83%、年輪幅で 21% であった(表 3)。測定した 3 つのパラメータの中で、炭素同位体比は産地判別の有効性が最も低かった。東南アジア各地から産地情報の明確なチーク材を高空間密度で採取し、詳細な同位体比・年輪幅時系列のデータベースを作成することにより、より正確な産地特定が実現できることが示された。

同一産地において、複数の個体(5 個体)の酸素同位体比・炭素同位体比・年輪幅を比較すると、個体差は酸素同位体比>年輪幅>炭素同位体比の順であった(図 26)。日本産や北米・欧州産の木材の場合、酸素同位体比>炭素同位体比>年輪幅となることが多い(図 27)が、東南アジア産チークでは年輪幅のほうが炭素同位体比より個体差が小さいという特徴があった。

一方で、産地判別では日本と同様に、東南アジアにおいても酸素同位体比が最も有効であったが、S/N 比は日本の半分程度($7.58/15=0.51$)であった。これは、日本に比べて東南アジアでは産地判別がやや困難になることを示している。

酸素同位体比の個体差をさらに長期間(50 年間)にわたって比べてみても(図 28)、個体間の同調性は良好に保たれていることが分かった。伐採年が不明の丸太の産地判別を行う場合、まず年輪の年代を決定する必要があるが、年輪幅での年代決定の場合、しばしば年代決定が難しい場合がある。そこで年輪幅より個体差の少ない酸素同位体比での年代決定を試みたところ、より高い有意水準での年代決定が可能で、年代決定が一意的に決まることが分かった(図 29)。

手法 1 を酸素同位体比時系列に適用した場合の産地判別の成功率を評価するために、ミャンマー産のチーク 6 個体のチーク産地判別結果を示した(図 30)。産地判別を試みた 6 個体のうち、5 個体で産地判別が成功した。1 個体だけ産地判別が失敗したが、この個体は他の個体との相関が悪いという特徴が見られた。チーク個体は生育環境によっては、根が地下水を利用している場合もあり、そのような場合は年輪形成時の降水の同位体比が反映されないため、年輪の酸素同位体比の変動が他の同一産地の個体とは大きく異なり、産地判別が失敗する可能性がある。

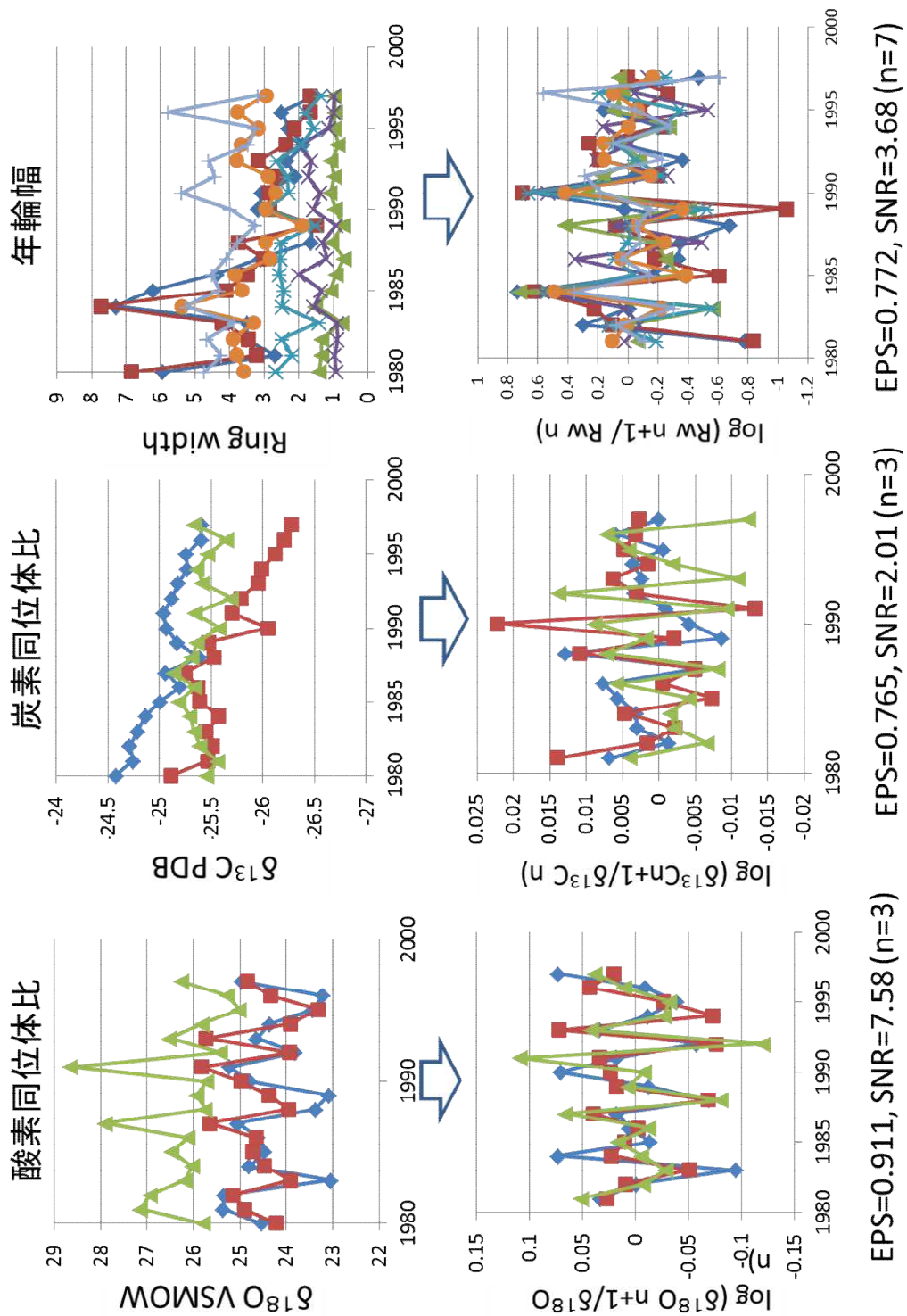
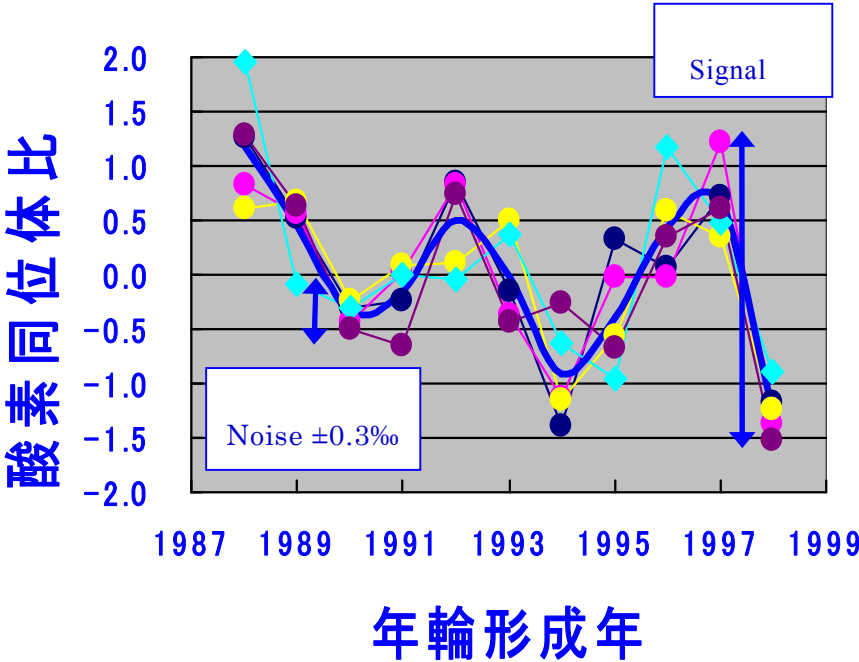


図26 同一産地のチーク5個体の酸素同位体比・炭素同位体比・年輪幅の同調性
同調性は、酸素同位体比>年輪幅>炭素同位体比の順であった。同一産地の個体
間での個体差は、酸素同位体比が最も少なく、産地判別には酸素同位体比が最
も適していることが分かった。

酸素 : S/N比=15



炭素 : S/N比=7.8

5

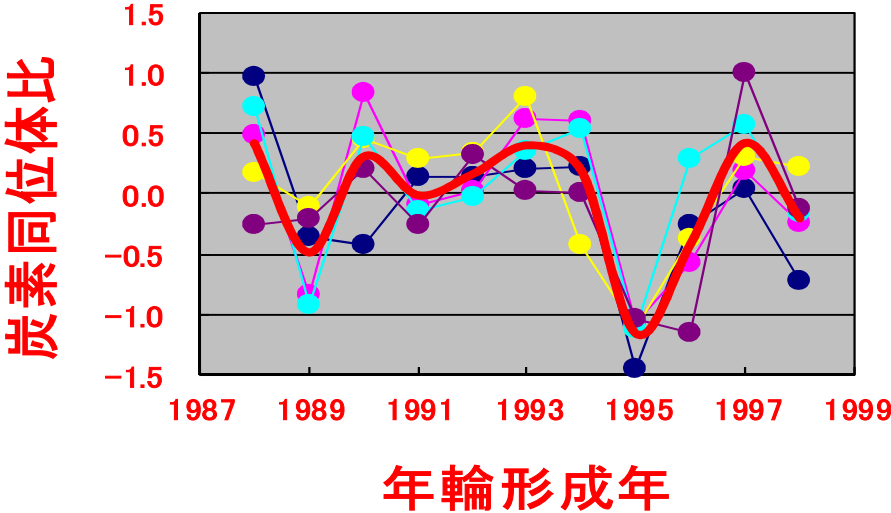
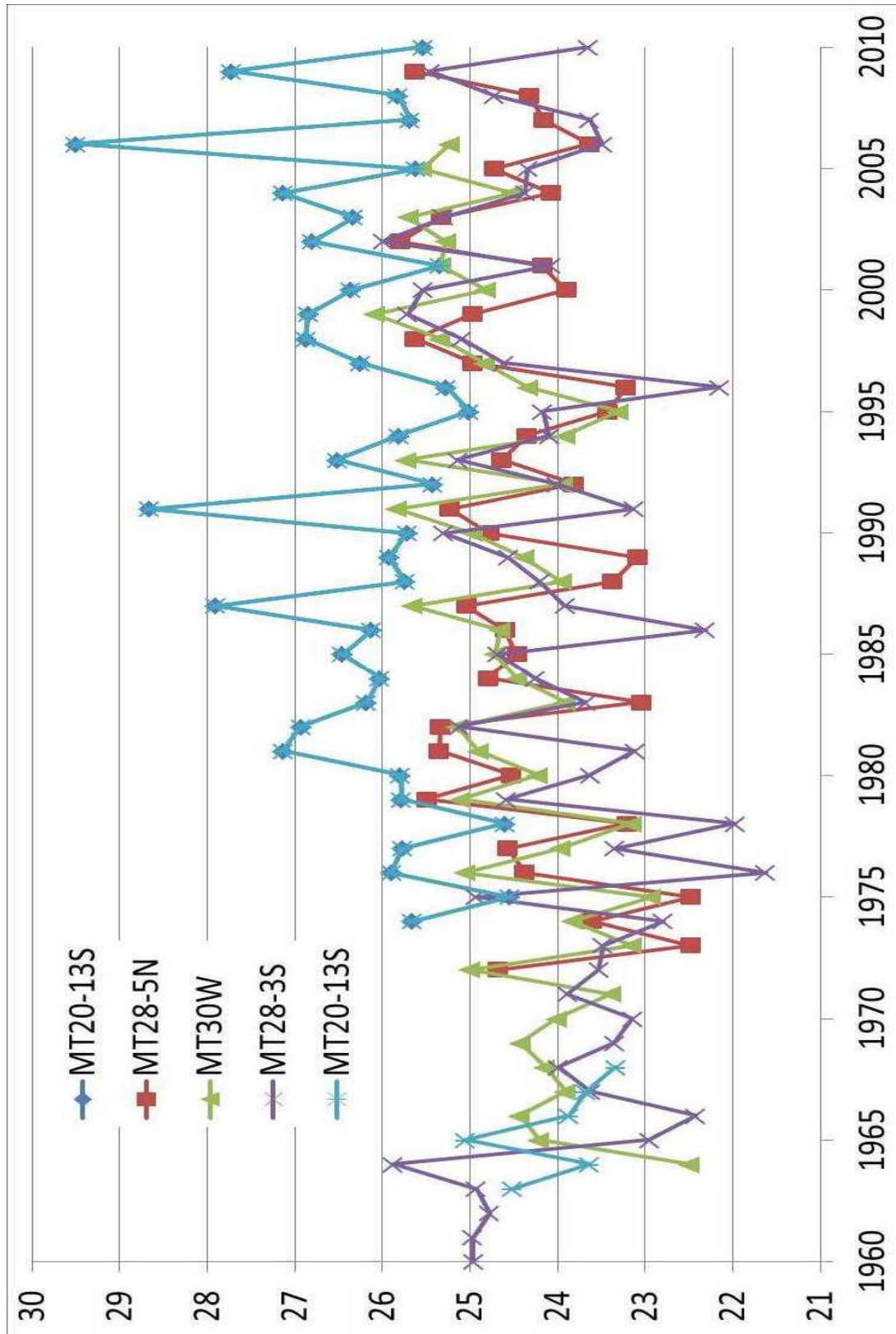


図 27 日本産ミズナラの酸素同位体比・炭素同位体比・年輪幅の個体差 北海道産のミズナラの S/N 比を計算したところ、酸素同位体比の S/N 比は 15、炭素同位体比は 7.8、年輪幅は 4.6 であった (同位体比データは Nakatsuka ら⁵⁾を用いた)



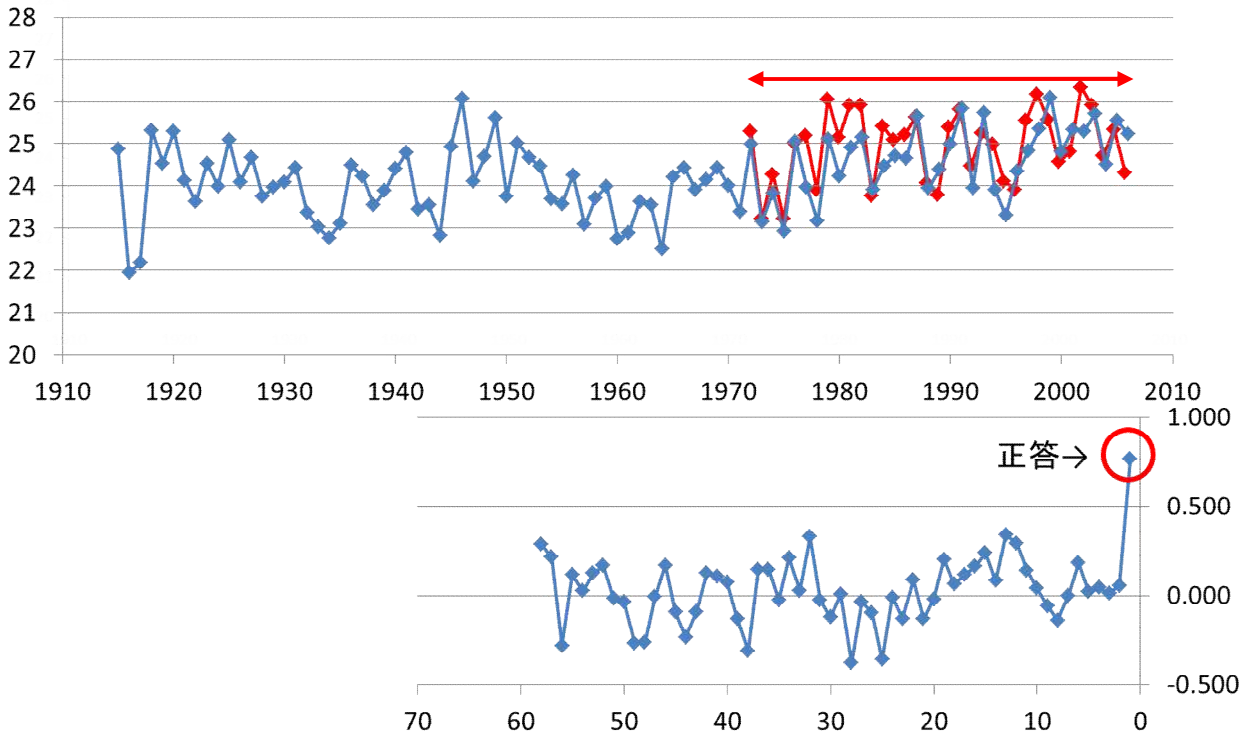


図 29 33 年分の酸素同位体比時系列の年代決定（クロスデーティング）を行った例 産地が分からない木材の場合、まずその木材の酸素同位体比時系列を作り（赤色）、年代を前後にずらしながら酸素同位体比の変動が一致する年代を探さなければならない。過去 100 年間でずらした場合でも、相関係数が優位に高くなる点は一つしかなく、誤った年代を出してしまう可能性は低いことがわかる。

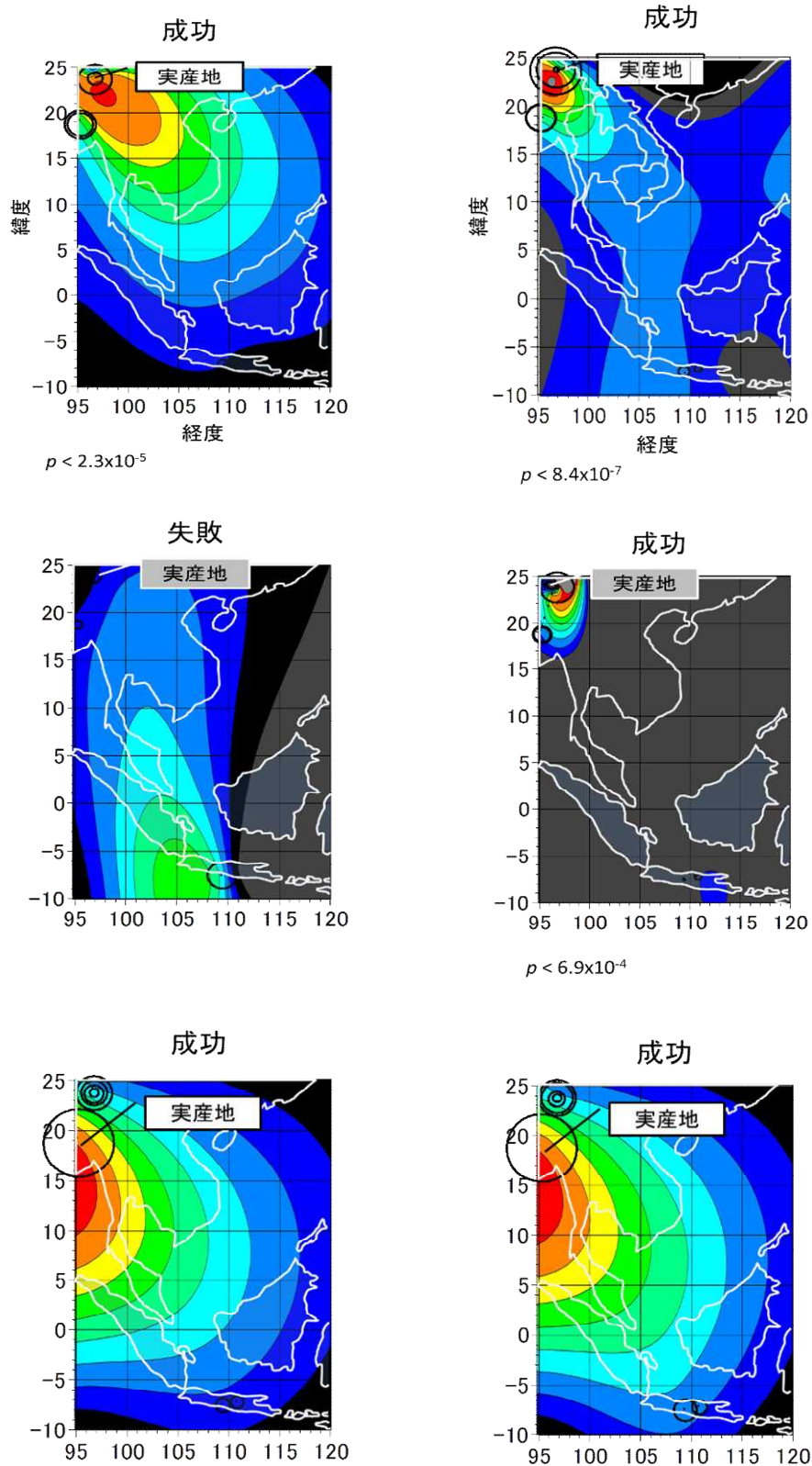


図 30 酸素安定同位体比によるチーク材の産地判別 産地判別を間違える可能性がほぼゼロ（有意水準 $p < 100$ 万分の 1）という条件を付けた場合でも、6 個体中 5 個体(83%)で産地判別に成功した。産地判別に確実性が要求される場合は、同位体による産地判別が必要になる。

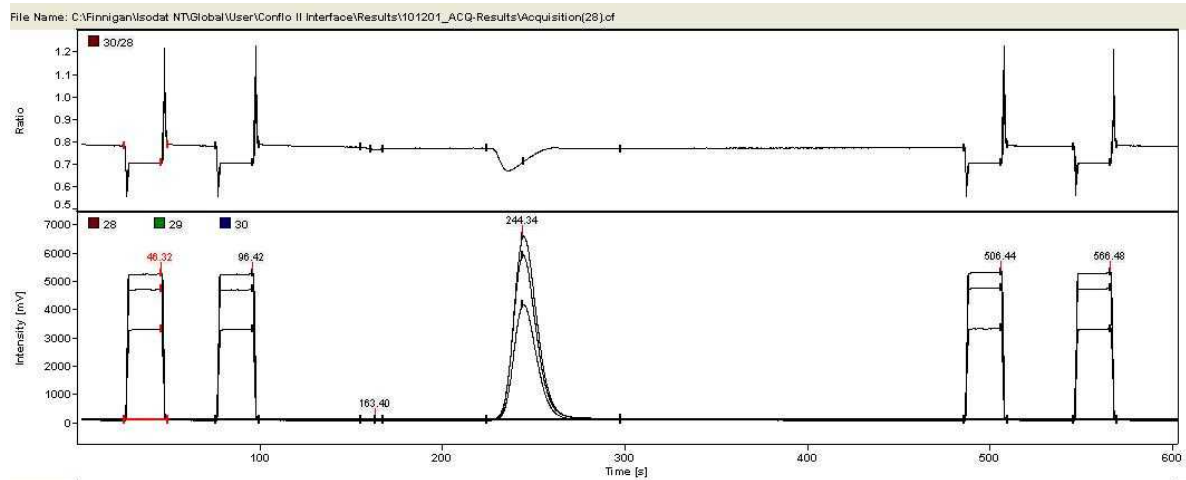
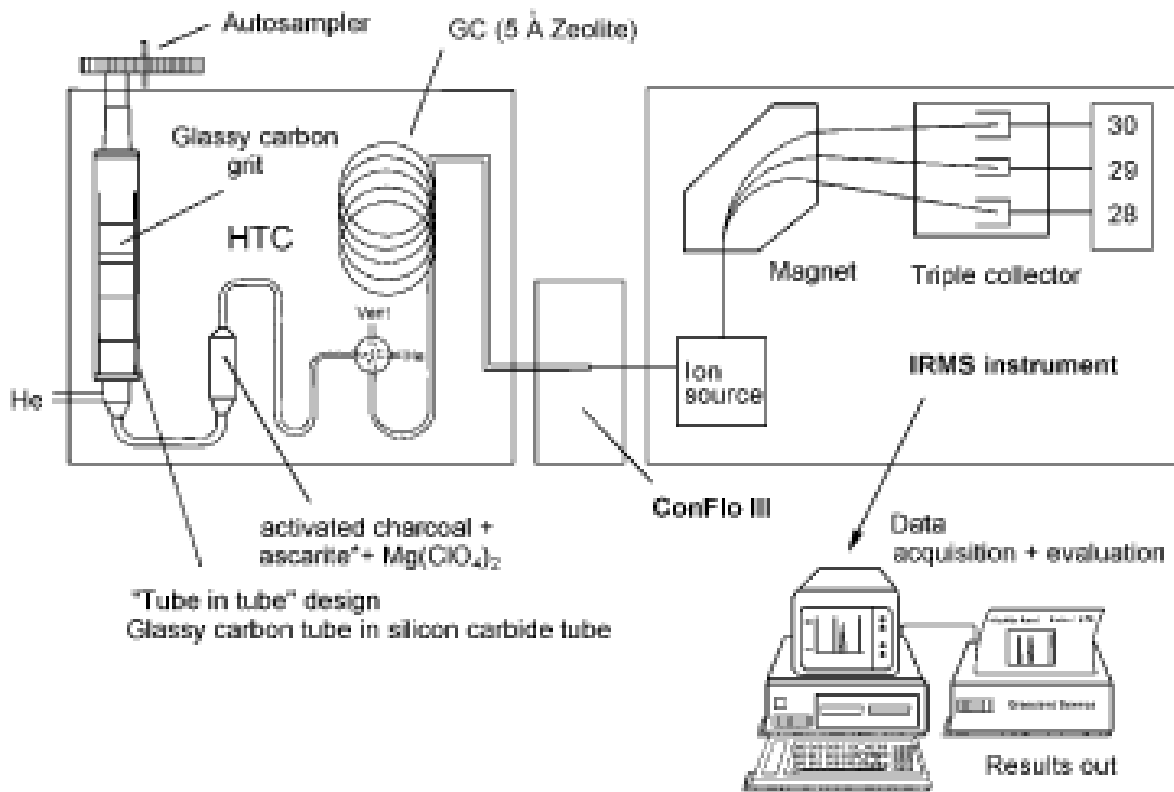


図31 酸素・炭素同位体比分析のクロマトグラム

炉温 : 1450°C、GCカラム温度 : 90°C、He流量 : 120 ml/min、 $\delta^{18}O$ 測定誤差 $\sigma < 0.3\%$

(4) 高精度酸素同位体分析、分析手法の改良の結果

産地判別結果を正確にするためには、酸素同位体比分析の誤差をできるだけ小さくすることが望ましい。そこで、本課題では酸素同位体比分析の誤差が小さい（標準偏差 $\sigma < 0.3\%$ 以下）分析システムを立ち上げることを目標とした（図 31）。高温熱分解型元素分析計（Hekatech 社 HTO）を導入して、2 種類のセルロース試料を交互に測定して誤差を評価したところ、標準偏差 $\sigma = 0.13 \sim 0.17\%$ となり（図 10）、目標を達成することができた。

この産地判別技術の実用化につながる重要な成果として、名古屋大学と共同して同位体分析に要する時間を 10-100 分の 1 に短縮する手法を開発することに成功した（図 11、図 12）。木材の年輪の酸素・炭素同位体分析では、分析の前処理として木材から α -セルロースを抽出する必要があり、この作業工程が同位体の分析時間の大部分を占めていた。従来の方法では、実体顕微鏡下で木口薄片から年輪を 1 年毎に切り分けた後、一度に数十～数百個のサンプルの α -セルロースの抽出を行っており、試料数が年輪の数だけできるため、セルロース抽出にサンプル数に比例した長時間を要していた。今回開発した方法では木口薄片の形状を崩すことなしに 1 枚の薄片の α -セルロースの抽出を行った後で、板状の α -セルロースから年輪を 1 年毎に切り分けるので、試料の個数が数十～数百分の 1 になり、分析に要する時間を大幅に短縮することに成功した。

セルロースの純度チェックの結果、ヘミセルロースを構成するグルコース以外の糖は 7%であるのに対し、セルロースを構成するグルコースは 93%であった（図 32）。リグニンとセルロースの同位体比の差は 2%程度であるので、同位体比の値に有意な影響を及ぼす量のヘミセルロースは存在しないことが分かった。また、Krason リグニンは検出限界以下、すなわちリグニンの割合は 5%以下であることが分かった。FT-IR による赤外線吸収スペクトルでも、セルロース抽出前の試料には明確にみられるリグニンの芳香核由来のピーク (1500cm^{-1} 付近) は α -セルロース試料にはみられず、スペクトルは標準セルロース試料と同一であった（図 33）。以上の結果からも、我々が開発した手法によるセルロースには、同位体比の値に有意な影響を及ぼす量のリグニンは存在しないことが分かった。

(5) 本課題で達成できた目標および結果のまとめ

本課題で設定した目標のうち、「高精度酸素同位体比分析システム立ち上げ」および「個体間相関法」でのチーク産地判別は成功したが、気候相関法によるチーク産地判別は困難であった（図 34）。この成果を今後のチークまたはほかの林業樹種の産地判別に応用するにあたり、外国人研究者と議論したところ、以下の結論が得られた。

- 1) 今後もチークの主産地で産地情報の明確なチーク試料を採取し、年輪幅・酸素同位体比データベースを整備することが、産地判別の空間精度の向上に必要である。
- 2) 税関などでチーク丸太の抜き取り検査を行い、年輪幅で簡易判別を行った後、産地偽装の疑いが強い試料については、酸素同位体比で産地を確定させる方法が実用上、最も効率的である。

Glucose	93.0%
Mannose	4.7%
Galactose	1.9%
Xylose	0.4%

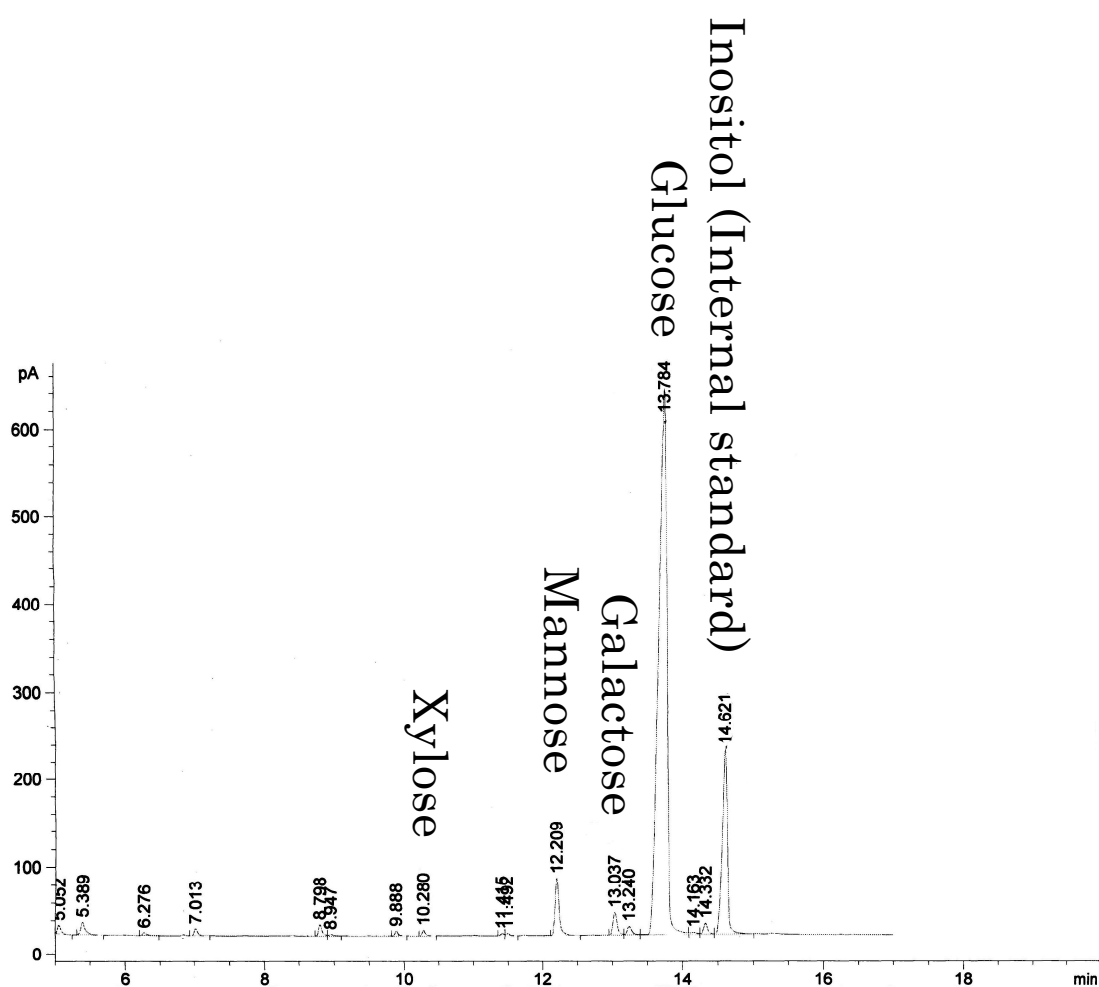
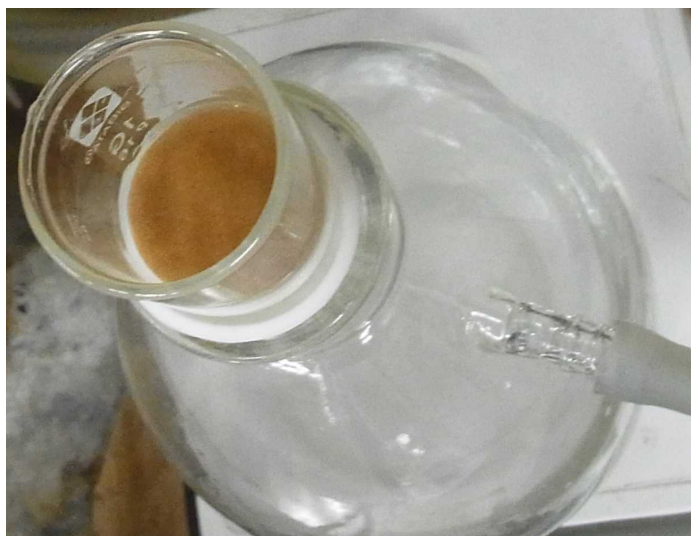


図32 新手法により調整した α -セルロース中のヘミセルロース分析結果 93%の構成糖がグルコースであり、ヘミセルロースが除去され、純度の高いセルロースが得られていることが分かった。この程度の純度であれば、酸素同位体比は従来法と有意な違いは見られない。



←Krasonリグニン
(フィルターされた茶色の物質)

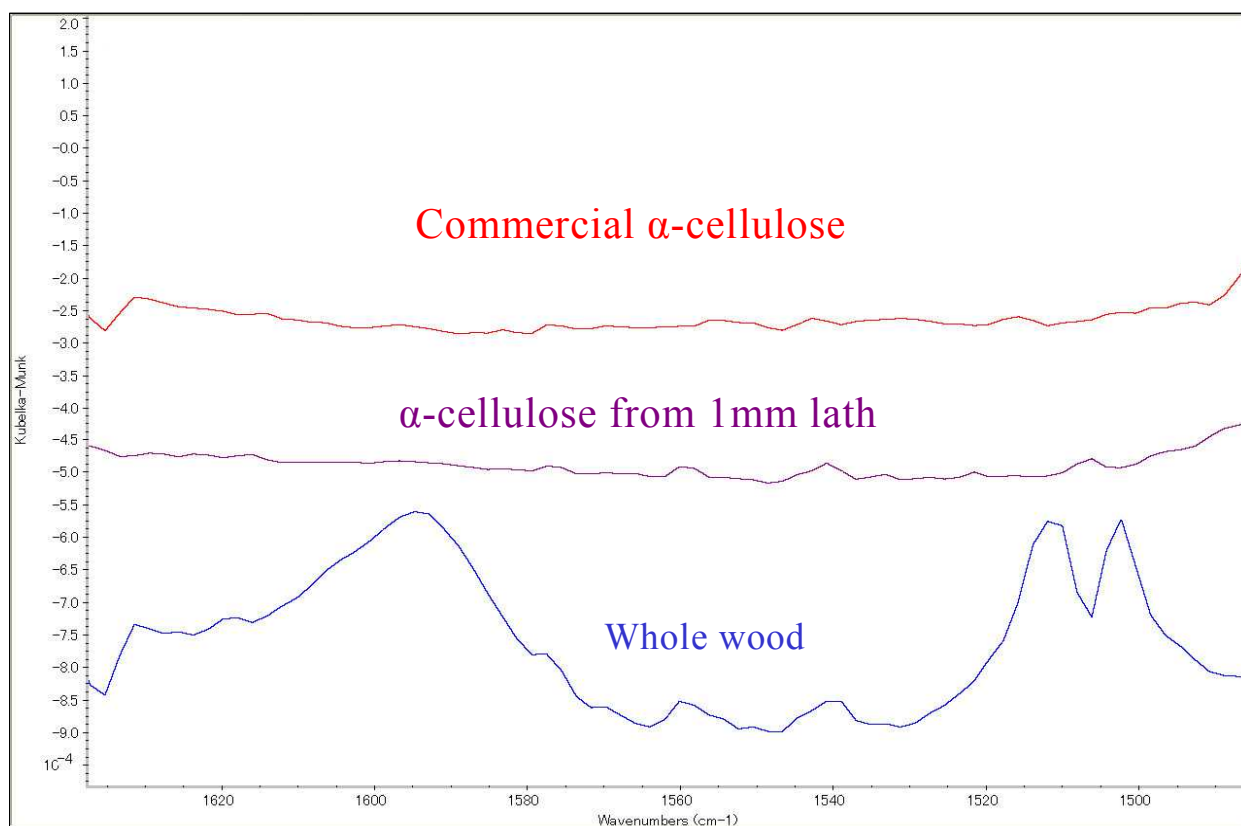


図33 新手法により調整した α -セルロースのリグニン分析結果 リグニンも、同位体比に影響を与えない程度に除去されていることが分かった。リグニンの定量は、72%硫酸により木粉を加水分解し、残渣の重量測定する方法 (Krasonリグニン)、およびFT-IRによる赤外線吸光度の測定により、リグニンの芳香核由来の波長(1500cm^{-1})のピークが観測されないことを確認した。これにより、新手法により調整したチーク由来 α -セルロース中のリグニン含量が検出限界である5%以下であることが証明された。

結論

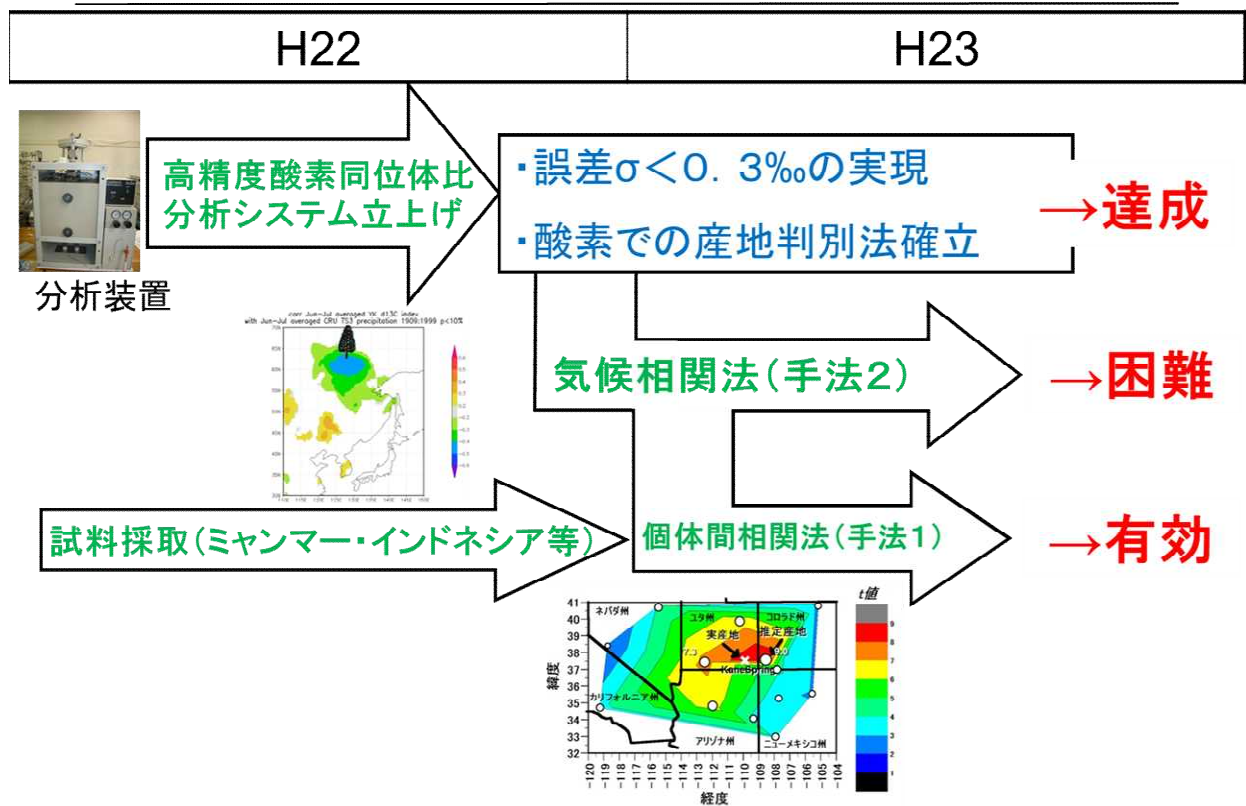
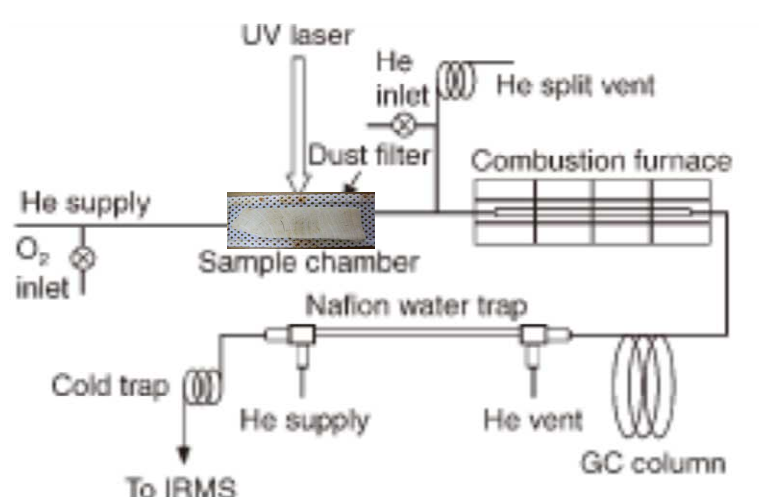


図34 結論の一覧 本課題で設定した目標のうち、「高精度酸素同位体比分析システム立ち上げ」および「個体間相関法」でのチーク産地判別は成功したが、気候相関法によるチーク産地判別は困難であった。

(6) 今後の課題

本課題を含むこれまでの研究により、木材の酸素・炭素同位体比を 30 年輪程度測定すれば、温帯（日本・北米）、亜寒帯（シベリア）、熱帯（東南アジア）の木材の産地を判定でき、おそらくは全世界の木材の産地を有意に判定できる可能性が高いことが分かった。30 年輪という年輪数は、丸太の産地判別や、年輪幅が狭く比較的サイズの大きい部材の産地判別は十分可能であるが、家具に使われるようなサイズの小さい部材の産地判別は難しい場合があるので今後技術を改良していく必要がある。

本課題でセルロース抽出作業にかかる時間を大幅に短縮できたものの、同位体分析を行うために年輪を切り分ける作業に時間がかかるため、木材 1 点あたりの鑑定にかかる費用は現材の技術では数十万円程度になる。この費用をさらに 10～100 分の 1 にするためには、年輪の同位体比を自動で分析する装置の開発が必要である（図 35）。これは例えばレーザーにより年輪を切断し同位体比を細かく測定する装置を開発することにより可能になる。このように分析にかかる時間・コストを下げ、分析精度を向上させることにより、木材の産地判別技術の実用化が期待できる。



レーザーにより年輪をスキャンして同位体比を分析

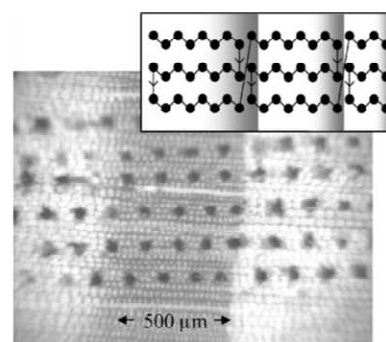


図 35 今後の課題 分析時間・コストを 10～100 分の 1 程度にする上記のような自動分析装置を開発すれば、木材の産地判別技術を実用化することが期待できる。上記のような装置で年輪の同位体比が高精度・高時間分解能で測定できれば、本課題で有効性が証明された熱帯での木材産地判別を始め、温帯・亜寒帯を含む全世界での木材の産地認証が可能になることが期待される。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

本課題の遂行により、以下の新たな科学的知見が得られた。

- ・ 東南アジア産チークの場合、安定同位体比・年輪幅・密度データベース構築による産地判別法では、酸素同位体比が最も産地判別結果が正確で、次に年輪幅であった。
- ・ 一方、降水量データによる産地判別は困難であった。これは、東南アジア地域の気象データの不備等が原因として考えられる。
- ・ 東南アジア産チークの産地判別を実用化する場合、年輪幅で簡易な産地判別を行い、確実性が求められる場合には酸素同位体比で産地判別するのが最も効率的である。
- ・ 当初は予想しなかった成果として、年輪の安定同位体分析の作業時間の大部分を占めるセルロス抽出法の効率化を達成した。従来は100年分の年輪を分析する際に100サンプルのセルロス抽出が必要であった。新手法では年輪を切り分ける前に1サンプルまるごと抽出することにより、作業量が100分の1に軽減され、より迅速な木材の産地判別法開発に貢献した。

(2) 環境政策への貢献

環境省は、グリーン購入法により政府調達の対象を合法性・持続可能性が証明された木材とする措置（詳細は、環境省HP>地球環境・国際協力>森林・砂漠化対策>森林対策を参照）を開始しているが、本課題の成果は、税関等において欧米への禁輸措置が取られているミャンマー産のチークなど、申告産地を偽装した違法伐採材の検出に貢献が期待される。今後、年輪の同位体分析の自動分析装置を開発するなどして分析技術を改良し、木材1点当たりの産地判定にかかるコストを下げれば、本産地判別技術の事業化が現実的になると予想される。

6. 国際共同研究等の状況

本研究を遂行するに当たり、インドネシア・ジョグジャカルタ、ガジャマダ大学森林学部教授 Prof. Sri Nuguroho Marsoem、ミャンマー森林省森林部長 Nyi Nyi Kyaw 博士、ロシアスカチョフ森林研究所年輪学研究室 Alexander Kirdeyanov 博士の協力を得た。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

< 論文（査読あり） >

特に記載すべき事項はない

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) Kagawa A. Kuroda K. Fujiwara T. Marsoem S.N. Kyaw N.N.: *Proceedings of the 2nd Asian dendro conference*, Xian, China, 2012 “Preliminary results of isotope dendrochronology of teak from Southeast Asia.”
- 2) 香川聡、黒田克史、藤原健、Marsoem S.N., Kyaw N.N., Myint Z.W.: 第62回木材学会（2012）「安定同位体比・年輪幅によるチーク材の産地判別」

3) Kagawa A., Nakatsuka T., Zhang C., Yasue K., Helle G.: *Proceedings of the TRACE2012 conference*, Potsdam, Germany 2012 “A method for extracting alpha-cellulose directly from tree-ring laths.”

(3) 出願特許

特に記載すべき事項はない

(4) シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

特に記載すべき事項はない

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない

(6) その他

特に記載すべき事項はない

8. 引用文献

- 1) Kagawa A, Leavitt SW (2010) Stable carbon isotopes of tree rings as a tool to pinpoint the geographic origin of timber, *Journal of Wood Science* 56, 175-183.
- 2) 香川聡(2011)木材の年輪情報から産地を判別する, *研究の森から* 14, 12-13.
- 3) Eckstein D, Wazny T, Bauch J, Klein P (1986) New evidence for the dendrochronological dating of Netherlandish paintings. *Nature* 320, 465-466.
- 4) Haneca K, Wazny T, Van Acker J, Beeckman H (2005) Provenancing Baltic timber from art historical objects: success and limitations. *J Archaeolog Sci*, 32, 261-271.
- 5) McCarroll D, Loader NJ (2004) Stable isotopes in tree rings, *Quaternary Science Reviews* 23, 771-801.
- 6) Nakatsuka T, Ohnishi K, Hara T, Sumida A, Mitsuishi D, Kurita N, Uemura S (2004) Oxygen and carbon isotopic ratios of tree-ring cellulose in a conifer-hardwood mixed forest in northern Japan, *Geochemical Journal* 38, 77-88.
- 7) Farquhar GD, Henry BK, Styles JM (1997) A rapid on-line technique for determination of oxygen isotope composition of nitrogen-containing organic matter and water, *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 11, 1554-1560.
- 8) Borchardt LG, Piper CV (1970) A gas chromatographic method for carbohydrates as alditol-acetates. *Tappi*, 53, 257-260.

Development of Teak Provenancing System in Southeast Asia in Support of Legal Logging

Principal Investigator: Akira KAGAWA

Institution: Forest and Forest Products Research Institute (FFPRI)
1 Matsuno-sato, Tsukuba-City, Ibaraki 305-0903, JAPAN
Tel: +81-29-829-8301 / Fax: +81-29-874-3720
E-mail: akagawa@ffpri.affrc.go.jp

[Abstract]

Key Words: Illegal logging, Geographic origin, Tree rings, Stable isotopes, Green purchasing policy

Illegal logging causes deforestation and forest degradation. The financial damage caused by illegal logging is estimated to be 10 billion USD annually, according to OECD. In order to deal with this issue, the U.S. and EU governments recently introduced laws that obligate wood importers to declare the country of their products' origin. Therefore, demands for scientific methods to verify the declared geographic origin of timber are increasing. "Dendroprovenancing" is one such method, in which the origin of unknown wood is estimated by calculating correlations of the ring-width series of the unknown wood with reference trees of known geographic origins. Not only ring widths but also stable isotope ratios can be used for provenancing wood (Kagawa & Leavitt 2010), because all timber throughout the world has the isotopic fingerprint unique to its geographic origin. Teak (*Tectona grandis*) is most illegally logged tree species in Southeast Asia because of its high timber values. Isotope dendroprovenancing is already proven effective in temperate and boreal areas, however, whether the method works or not in tropics remained an open question. Hence, the final goal of our project was to apply the ring width and isotope dendroprovenancing method to teak from Indonesia and Burma to test the efficacy of using tree-ring analysis for provenancing teak. After sampling tree ring cores or disks, we measured tree ring widths, density, and oxygen and carbon isotope ratios. Firstly, we tried to estimate the geographic origin of teak by calculating correlations between the tree-ring series and precipitation data taken at nearby climate stations. This provenancing method turned out to be difficult in tropics. Secondly, we tried to estimate the geographic origin of teak by calculating correlation coefficients between the time series of unknown wood with reference time series from surrounding locations. We determined the geographic origin of the unknown wood as the location where the correlation reaches maximum. This provenancing method turned out to be

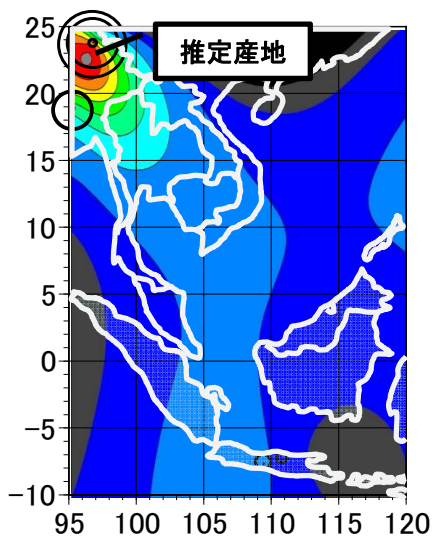
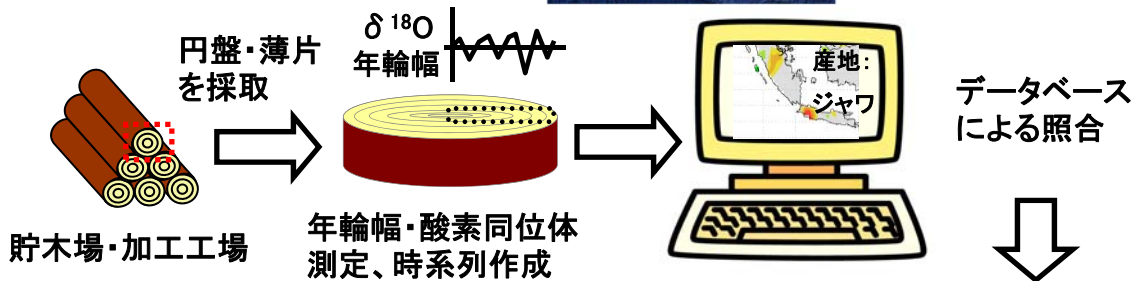
effective in most cases. Among the tree ring parameters measured, oxygen isotope was the most effective in provenancing, followed by ring widths. In Southeast Asia, dendroprovenancing of teak is possible if we sample teaks at reference locations in the intended area and construct oxygen isotope and ring width database.

酸素同位体比・年輪幅による チークの産地認証システム

チーク主要産地の年輪幅・酸素同位体比時系列データベースを構築

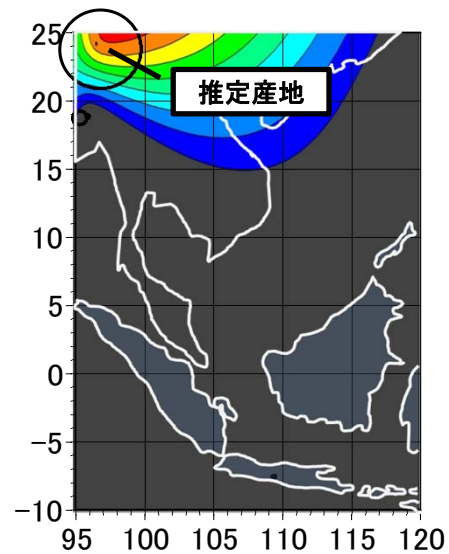


産地判別の参照サンプル採取地点



酸素同位体比による産地判別
高コストだが、高精度

産地偽装が
疑われる木材



年輪幅による簡易産地判別
低コストだが、低精度

相関係数の分布をプロットし、相関が最大になる地点(赤色部)として、木材産地偽装を検出するシステムを構築