

炭素 14 年代キャリブレーションと水月湖年縞堆積物
Radiocarbon calibration from the Lake Suigetsu varve sediment

北川浩之
Hiroyuki Kitagawa

名古屋大学環境学研究科
Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University

Abstract

Radiocarbon (^{14}C) provides a way to date material that contains carbon with an age up to 50,000 years and is also an important tracer of the global carbon cycle. To obtain the calendar year, radiocarbon age is calibrated using radiocarbon calibration dataset such as IntCal09. However there is still uncertainty in the available radiocarbon calibration dataset prior to 12.5 thousand years before the present. Recently, the radiocarbon calibration dataset from the annual laminated (varve) sediments of Lake Suigetsu, Japan ($35^{\circ}35'\text{N}$, $135^{\circ}53'\text{E}$), have been updated by more than 800 ^{14}C analyses of terrestrial materials which provide a comprehensive record of atmospheric (or terrestrial) radiocarbon to the present limit of the ^{14}C method (Bronk Ramsey et al., 2013).

Key words: radiocarbon calibration, varve sediment, Lake Suigetsu, Lake Suigetsu 2006 project

1. はじめに

放射性炭素同位体(^{14}C)は、宇宙線生成核種であり、宇宙線起源の二次中性子と窒素原子との核反応で絶えず生成される。過去数万年間に亘って宇宙線の強度がほぼ一定と考えられており、 ^{14}C の生成速度と壊変速度(半減期 5730 年)がつり合い大気中の二酸化炭素の ^{14}C 濃度は一定と仮定できる。したがって、大気中の二酸化炭素を光合成で固定している植物、また植物を摂取している動物の ^{14}C 濃度は過去に遡っても一定と考えられる。親核種と娘核種の時間変化に着目した年代測定法(例えば、K-Ar 法や Rb-Sr 法など)とは異なり、年代測定の対象試料に含まれる親核種(^{14}C)を測定するだけで、壊変した ^{14}C が求められ、動植物の死後の年代を決定することができる。これが ^{14}C 年代測定法の基本原理である。

しかし、炭素 14 年代測定法の初期値が一定という仮定が厳密には正しくないことは、既に Libby がノーベル化学賞を受賞する前に知られていた(de Vries, 1958)。動植物の ^{14}C 濃度は時代によって刻々と変化し、そのために、炭素 14 年代と実際の年代(実年代あるいは暦年代)は同じ年代とならない。「炭素 14 年代

本原稿は、第 25 回名古屋大学年代測定総合研究センターシンポジウム (2013/1/16) での講演内容を、日本アイソトープ協会が発行する広報誌「Isotope News」(2013 年 4 月号に印刷予定) にまとめた原稿に加筆したものである。

時計の狂い」を校正して実年代を決定するためには、炭素 14 年代と実年代の関係を示す炭素 14 年代キャ

リブレーションデータセットが必要となる。

炭素 14 年代キャリブレーションデータセットは、年代が既知である試料を高精度に炭素 14 年代測定することで求めることができる。年輪年代学の手法で年代決定できる樹木年輪は最も優れた研究対象である。1986 年、樹木年輪年代学の手法で各年輪の形成年代が決定されたドイツ産のオーク、北アメリカ産プリスルコーンマツの高精度測定の結果がまとめられ (Stuiver and Kra, 1986; Stuiver and Pearson, 1986)、紀元前 7200 年 (9,150 BP; BP は西暦 1950 年を基準年として過去に何年遡るかを示す) までの炭素 14 年代キャリブレーションデータが、国際標準パッケージ(あるいは、炭素 14 の研究者による推奨データ)として配布された。その後、新たなデータをもって改定が繰り返され、1993 年には、ドイツ産オークとマツの新たな高精度な炭素 14 年代測定の結果を用い、11,400 BP まで拡張された (Stuiver and Reimer, 1993)。さらに、サンゴ化石の ^{230}Th 及び ^{234}U 分析で得られる実年代 (^{230}Th - ^{234}U 年代) と炭素 14 年代を比較することで、過去 3 万年間の大まかな炭素 14 年代キャリブレーションデータが報告された (Bard et al., 1993)。サンゴ化石の分析から得られた炭素 14 年代キャリブレーションデータによると、3 万年前に炭素 14 年代が実際の年代より 4600 ± 600 年ほど若い年代を示し、炭素 14 年代を使い時代編年を行ってきた研究者に衝撃を与え、最終氷期の時代編年の再考の必要性が明らかになった。この発見によって、炭素 14 年代キャリブレーションデータセットを過去へ拡張することの重要性が広く認知され、過去 5 万年間の詳細な炭素 14 年代キャリブレーションを求める各種の研究が世界各地の研究機関で始められた。その 1 つの取り組みは、福井県・水月湖の年縞堆積物の研究である (Kitagawa et al., 1995, Kitagawa 2013)。

2. 水月湖年縞堆積物からの炭素 14 年代キャリブレーション研究の事始め

水月湖には葉理構造(層状の堆積物の重なり)をもつ堆積物が存在していることは古くから知られていた。1991 年の表層試料の採集とその後の解析の結果をふまえ、1993 年には、水深 34 m の湖底から基底に達する 73 m の堆積物コア(SG93 コア)の採集を行った(竹村ほか, 1994)。水月湖の粘土質な堆積物には肉眼で確認できる明暗の葉理構造が刻まれていた。これは堆積過程の季節変化で形成される年層であることが、堆積学的に明らかにされた。このような堆積物は英語では、varve sediment と呼ばれる。当時、“varve”に対応する日本語がなく、SG93 コア研究の代表者だった安田喜憲氏によって「年縞」と名付けられた。

年縞堆積物は、季節によって異なる粒子が湖底に供給され、しかも堆積後に底棲生物などによって二次的な攪乱を受けない場合に形成さる。水月湖の場合は、春季にはケイ藻 (*Aulacoseira* spp.) の遺骸、菱鉄鉱 (FeCO_3) の微粒子やおそらく中国の内部から飛来した黄砂、夏季には有機物を多量に含む層、秋には春とは別種のケイ藻 (*Encyonema*) の遺骸とやや大粒の菱鉄鉱、秋から冬にかけては粘土が堆積している(図1)。堆積物の上部 40m (過去 7 万年間の堆積物) には、肉眼でも識別できる年縞が認められ、毎年繰り返されるパターンを正しく識別できれば、水月湖の堆積物に 1 年の目盛を入れることが可能となる。年縞計数によっ

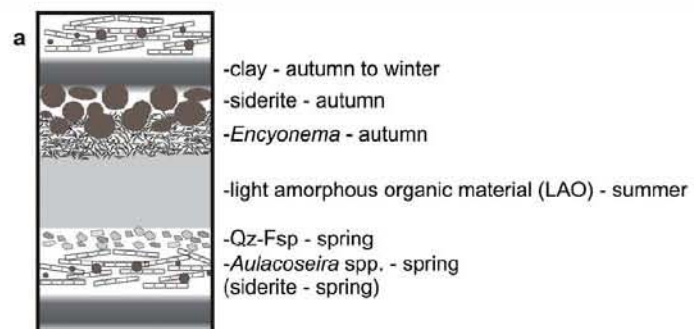
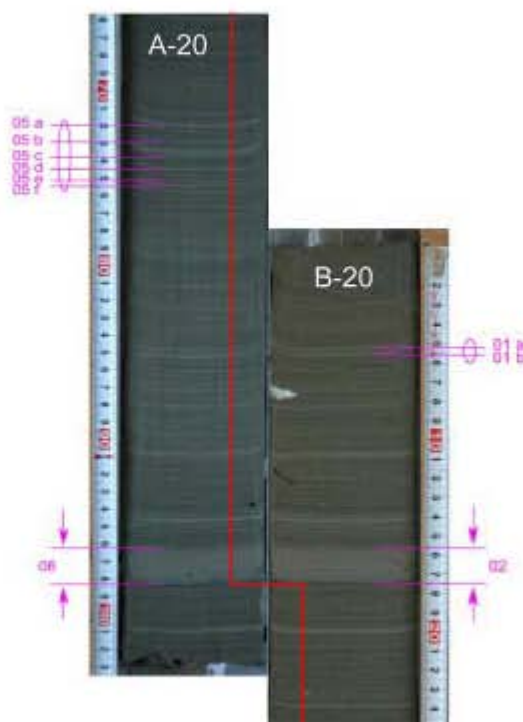


図 1 水月湖の年縞 (Schlota et al., 2012)。



ーションデータセットと比較し、この年縞堆積前から 37,930 年前に形成されたと考えた van der Plicht, 1998)。

水月湖の堆積物に含まれている 250 試料以上の葉や昆虫の化石の炭素 14 年代測定を実施し、炭素 14 年代キャリブレーションデータセットが求めた (Kitagawa and van der Plicht, 1998, 2000)。本研究成果で、水月湖の年縞堆積物が炭素 14 年代キャリブレーションデータセットを過去へ拡張するに有効であることが広く認知された。

SG93 コアから得られた炭素 14 年代キャリブレーションデータセットには 2 つの問題があることがその後の研究で明らかになった。堆積物採集の技術的な問題による堆積物の連続性の欠如 (予算的な制約から 1 つの掘削穴から試料を採集) と、年縞の識別の甘さ (未識別の年縞の存在) に要約される。これらの問題は、イギリス・ニューキャッスル大学の中川毅氏らが先導した国際プロジェクト Lake Suigetsu 2006 によって解決された。Lake Suigetsu 2006 では、4 つの掘削孔から深度を重複させて堆積物コアを採取することで、堆積物の連続性の欠如の問題が解決された (図 2)。ドイツ・ポツダム地質学研究所とイギリス・ウェールズ大学の研究グループが年縞数の計数を担当し、マイクロ蛍光 X 線スキャナーを使った元素組成の深度プロファイル (Marshall et al., 2012) や全層から作成した薄片の顕微鏡観察 (Schlota et al., 2012) をもとに、SG93 より格段に信頼性の高い年縞編年が構築された。

SG93 コアと SG06 コアの対比から (Staff et al., 2010; 2012)、SG93 からの 250 試料の炭素 14 年代測定の結果 (Kitagawa and van der Plicht, 1998, 2000) とオックスフォード大学とイギリス自然環境研究協会 (NERC) の加速器質量分析機関で実施された SG06 コアからの約 600 試料の炭素 14 年代測定の結果は 1 つのデータセットに集約され、過去 5 万年間の高い時間分解能を備えた炭素 14 年代キャリブレーションデータセットを求めることに成功した (Bronk Ramsey et al., 2012)。

て堆積物コアの編年を構築し、堆積物に含まれている植物化石の炭素 14 年代測定を実施すれば、炭素 14 年代キャリブレーションデータセットを求めることが可能となる。

3. SG93 コア解析から Lake Suigetsu 2006 プロジェクト

SG93 コアから炭素 14 年代キャリブレーションデータセットを求める作業は、当初に予想していたよりずっと手間と時間のかかるものであった。当時、年縞を識別するマニュアル (あるいは教科書) はなく、思考錯誤を重ね年縞数の計測を実施した。時には、堆積物の一部を樹脂で固定して作成した薄片の顕微鏡観察、電子顕微鏡像やエネルギー分散型 X 線分析装置 (SEM-EDS) を使った堆積物を構成する粒子の季節変化のパターンの観察を試みた。年縞が比較的に明瞭で識別しやすい深度 10.43 ~ 30.45m には、29,000 年分の年縞が認められた。樹木年輪からの炭素 14 年代キャリブレーションデータセットと比較することで、堆積物の連続性の欠如の問題を解決 (Nakagawa et al., 2012)

(Kitagawa and

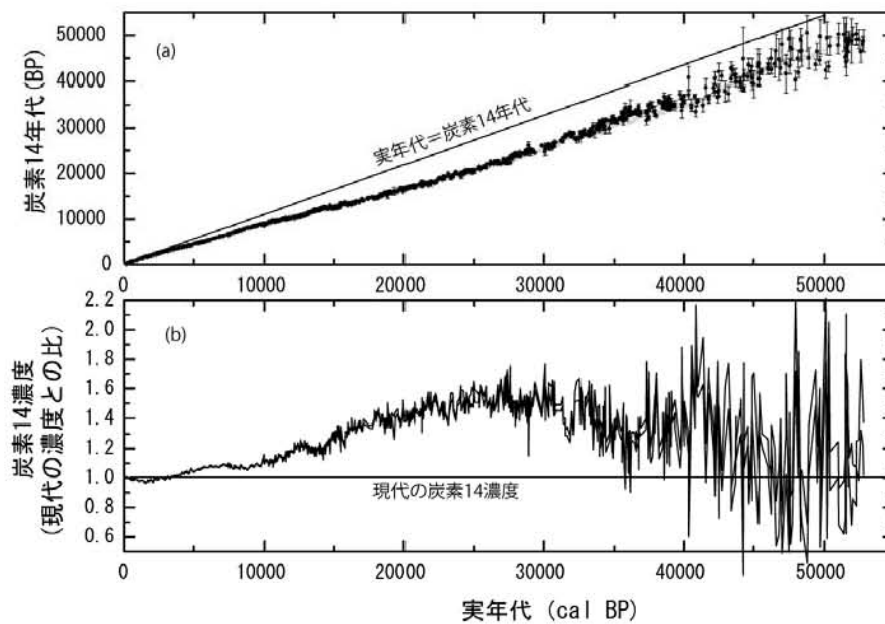


図 3. (a)水月湖年縞堆積物から求められた過去 5 万年間の炭素 14 年代キャリブレーションデータセットと、(b) ^{14}C 濃度変化 (Bronk Ramsey et al (2012) で報告された炭素 14 年代キャリブレーションデータセットをもとに作図)

4. 水月湖年縞堆積物からの炭素 14 年代キャリブレーションデータセット

図 3(a)には、水月湖年縞堆積物からの炭素 14 年代キャリブレーションデータと IntCal09 を示す(水月湖年縞堆積物と IntCal09 はオーバーラップしている)。IntCal09 は、木材年輪の炭素 14 年代測定の結果(12,500 BP まで)と ^{230}Th - ^{234}U 年代法で年代決定されたサンゴ化石と海洋の年縞堆積物の浮遊性有効虫の炭素 14 年代測定の結果をもとに作成されている(Reimer et al., 2009)。海洋からのサンゴ化石と浮遊性有効虫の炭素 14 年代は、表層海水の炭素 14 年代を反映し、大気中の二酸化炭素(あるいは陸上試料)の炭素 14 年代とは平均 400 年ほどの違いがある。IntCal09 は、海洋のリザーバ年代について経験的に補正が行われている。一方、水月湖年縞堆積物からのデータは、堆積物に含まれた陸上植物の炭素 14 年代から求められ大気(あるいは陸上試料)の ^{14}C を反映し、海洋のリザーバ年代の補正を必要としない。水月湖年縞堆積物からのデータセットは、次回の IntCal09 の更新に使われる予定である(Reimer, 2012)。

図 3(b)には、炭素 14 年代キャリブレーションデータとあわせて大気中の ^{14}C 濃度の経年変化をプロットした。過去 5 万年間に大気の ^{14}C 濃度は大きく変動している。42,000 年前の ^{14}C 濃度の増加は、地磁気の強度が極小の時に地磁気方位が大きくゆらぐ現象「地磁気エクスカージョン」によると解釈される。過去へ遡って大気の ^{14}C 濃度が徐々に増加する傾向は、主に地磁気の強度変化に伴う地球へ飛来する宇宙線の強度変化によると解釈される。しかし、過去の地磁気の強度変化や ^{14}C と同様のメカニズムで生成される宇宙線生成核種 ^{10}Be の変化から推定された宇宙線の強度変化だけでは、 ^{14}C 経年変化を全て説明することができない。最終氷期に、現在とは地球規模の炭素循環が現在とは大きく違い、地球システム内での ^{14}C の分布が大きく異なっていた1つの証拠である。水月湖年縞堆積物から解明された過去 5 万年間の大気の ^{14}C 経年変化は、炭素 14 年代の較正に必要なだけでなく、地球環境変動を解明するためにも有効である。

5. おわりに

水月湖の年縞堆積物の研究が開始から 20 年が経過した。研究当初に想定した目標「炭素 14 年代法が利用できる年代範囲(過去 5 万年)の炭素 14 年代キャリブレーションデータを求める」がほぼ達成された。水月湖年縞堆積物には、炭素 14 年代キャリブレーションデータに関する情報だけでなく、気候変動などの地球システム変動に関する興味深い情報が記録されている。水月湖年縞堆積物からの炭素 14 年代キャリブレーションデータの解析は、最終氷期の環境変動の解明にも有効なものがある。

今後の研究課題は、このデータセットの信頼性の検証や時間分解能を高めることとである。現在、国際陸上科学掘削計画 ICDP の死海深層掘削プロジェクト(DSDDP)では、炭素 14 年代と湖水から化学的に沈殿したアラゴナイトの ^{230}Th - ^{234}U 年代を比較することで水月湖年縞堆積物からの炭素 14 年代キャリブレーションデータを検証し、最終氷期における炭素 14 年代キャリブレーションデータの確定する作業が進められている。近い将来、炭素 14 年代キャリブレーションデータセットが、炭素 14 年代測定法が適用できる全期間で確定されると予想される。

謝辞

1991 年に始まった水月湖年縞堆積物研究は、国内外の多数の研究者、大学院生の協力のもとに実施されました。ここに、記して感謝の意を表します。安田喜憲、福沢仁之、中村俊夫、岡村真、竹村恵二、林田明、van der Plicht, J., 中川毅., Bronk Ramsey, C., Staff, R.A., Bryant, C.L., Brock, F., Schlolaut, G., Marshall, M.H., Brauer, A., Lamb, H.F., Payne, R.L., Tarasov, P.E., 原口強, 五反田克也, 米延仁志, 横山祐典, 多田隆治

参考文献

- Bard E., Arnold M., Fairbanks R.G., Hamelin B. ^{230}Th - ^{234}U and ^{14}C ages obtained by mass spectrometry on corals. *Radiocarbon* 35(1), 191-199 (1993).
- Bronk Ramsey, C., Staff, R.A., Bryant, C.L., Brock, F., Kitagawa, H., van der Plicht, J., Schlolaut, G., Marshall, M.H., Brauer, A., Lamb, H.F., Payne, R.L., Tarasov, P.E., Haraguchi, T., Gotanda, K., Yonenobu, H., Yokoyama, Y., Tada, R., Nakagawa, T. A complete terrestrial radiocarbon record for 11.2 to 52.8 kyr B.P. *Science* 338, 370-374 (2012).
- de Vries, H. Variation in concentration of radiocarbon with time and location on earth. *Proc. Koninkl. Nederl. Akad. Wetenschappen* B61, 1-9 (1958).
- Kitagawa, H., van der Plicht, J. Atmospheric radiocarbon calibration beyond 11,900 cal BP from Lake Suigetsu laminated sediments. *Radiocarbon* 42(3), 369-380 (2000).
- Kitagawa, H., van der Plicht, J. Atmospheric radiocarbon calibration to 45,000 BP: late glacial fluctuations and cosmogenic isotope production. *Science* 279, 1187-1190 (1998).
- Kitagawa H., Fukusawa, H., Nakamura, T., Okamura, M., Takemura, K., Hayashida A., Yasuda Y. AMS ^{14}C dating of varved sediments from Lake Suigetsu, central Japan and atmospheric ^{14}C change during the last Pleistocene. *Radiocarbon* 37(2), 371-378 (1995).
- Kitagawa, H. Lacustrine varve counting as a dating technique: advantage and disadvantage, The Oxford Handbook of Wetland Archaeology (eds. F. Menotti and A. O'Sullivan), Oxford University Press 633-647 (2013).

- Marshall, M., Schlolaut, G., Brauer, A., Nakagawa, T., Staff, R. A., Bronk Ramsey, C., Lamb, H., Gotanda, K., Haraguchi, T., Yokoyama, Y., Yonenobu, H., Tada, R., SG06 project members. A novel approach to varve counting using mXRF and X-radiography in combination with thin-section microscopy, applied to the Late Glacial chronology from Lake Suigetsu, Japan. *Quaternary Geochronology* 13, 70-80 (2012).
- Reimer, P., Baillie, M., Bard, E., Bayliss, A., Beck, J., Blackwell, P., Bronk Ramsey, C., Buck, C., Burr, G., Edwards, R., Friedrich, M., Grootes, P., Guilderson, T., Hajdas, I., Heaton, T., Hogg, A., Hughen, K., Kaiser, K., Kromer, B., McCormac, F., Manning, S., Reimer, R., Richards, D., Southon, J., Talamo, S., Turney, C., van der Plicht, J., Weyhenmeyer, C. IntCal09 and Marine09 radiocarbon age calibration curves, 0-50,000 years cal BP. *Radiocarbon* 51, 1111-1150 (2009).
- Reimer, P. Refining the Radiocarbon Time Scale. *Science* 338, 337-338 (2013).
- Schlolaut, G., Marshall, M.H., Brauer, A., Nakagawa, T., Lamb, H.F., Staff, R.A., Bronk Ramsey, C., Bryant, C.L., Brock, F., Yokoyama, Y., Tada, R., Haraguchi, T., Suigetsu 2006 project members. An automated method for varve interpolation and its application to the Late Glacial chronology from Lake Suigetsu, Japan. *Quaternary Geochronology* 13, 52-69 (2012).
- Staff, R. A., Bronk Ramsey, C., Nakagawa, T., Suigetsu 2006 project members. A re-analysis of the Lake Suigetsu terrestrial radiocarbon calibration dataset. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B* 268, 960-965 (2010).
- Staff, R.A., Nakagawa, T., Schlolaut, G., Marshall, M.H., Brauer, A., Lamb, H.F., Bronk Ramsey, C., Bryant, C.L., Brock, F., Kitagawa, H., van der Plicht, J., Payne, R.L., Smith, V.C., Mark, D.F., MacLeod, A., Blockley, S. P. E., Schwenninger, J.-L., Tarasov, P.E., Haraguchi, T., Gotanda, K., Yonenobu, H., Yokoyama, Y., Suigetsu 2006 project members. The multiple chronological techniques applied to the Lake Suigetsu SG06 sediment core, central Japan. *Boreas*, 10.1111/j.1502-3885.2012.00278.x (2012).
- Stuiver, M., Kra, R. Radiocarbon Calibration Issue. *Radiocarbon* 28(2B), 805-1030 (1986).
- Stuiver, M., Pearson, G.W. High-Precision Calibration of the Radiocarbon Time Scale, AD 1950-500 BC. *Radiocarbon* 28(B), 805-838 (1986).
- Stuiver M., Reimer P. Extended ^{14}C data base and revised CALIB 3.0 ^{14}C age calibrating program. *Radiocarbon* 35(1), 215-230 (1993).
- 竹村恵二・北川浩之・林田明・安田喜憲: 三方湖・水月湖・黒田低地の堆積物の層相と年代—三方低地の最終間氷期以降の堆積環境—. 地学雑誌 103(3), 233-242 (1994).

日本語の要旨

炭素 14 年代測定法は、過去 5 万年間の年代決定には無くてはならない年代測定法である。しかし、炭素 14 年代は暦年代とは一致しく、炭素 14 年代から暦年代を推定するには炭素 14 年代キャリブレーションデータセットを用いた較正が必要である。過去 12500 年間の炭素 14 年代キャリブレーションデータセットは、年輪年代学の手法で年代決定された木材の高精度炭素 14 年代測定によって求められている。それ以前は、海洋試料の高精度炭素 14 年代測定結果に海洋のリザーバ効果の補正が行われデータから推定され、不確かさが残されていた。水月湖年縞堆積物の研究で、海洋のリザーバ効果の補正が必要がなくなり、考古学試料などの陸域試料に適用できる炭素 14 年代キャリブレーションデータセットが、炭素 14 年代測定法が適用できる全期間について求められた。