

年輪年代と ^{14}C 年代の比較

中村俊夫^a・福本浩士^b・光谷拓実^c・丹生越子^a・小田寛貴^a・
池田晃子^a・太田友子^a・藤根 久^d

^a 名古屋大学年代測定総合研究センター

^b 三重県紀北県民局

^c 独立行政法人文化財研究所 奈良文化財研究所

^d パレオラボ株式会社

1. 樹木年輪年代と ^{14}C 年代

^{14}C 年代測定では、 ^{14}C 年代の算出における基本的な仮定として、過去の大気中二酸化炭素の ^{14}C 濃度が、 ^{14}C 年代測定が適用される現在から6万年前に遡って常に一定であったとされる。しかし、この仮定が成立しないことは周知の事実である。

地球上の ^{14}C は、大気中で宇宙線の作用により作られる。宇宙から飛来する高エネルギーの荷電粒子と地球大気を構成する原子との相互作用により、二次宇宙線の一種類である中性子が生成される。さらに、中性子が大気中の窒素原子核と核反応を起こして、 ^{14}C が作られる ($n+^{14}\text{N} \rightarrow p+^{14}\text{C}$)。従って、 ^{14}C の生成頻度は、宇宙線が地球大気に入射する頻度に依存する。地球には磁場があり、その強度や方向は一定ではなく、過去に、時間の経過と共に変動を重ねてきたことが知られている。また、地球が一員となっている太陽系の中心には、活発に活動を続ける太陽があり、地球は絶えず影響を受けてきた。地球大気に入射する宇宙線の頻度が、地磁気強度や太陽活動に依存することが知られている。実際、宇宙線による生成物である ^{14}C の濃度が、過去に変動したことが、過去の大気中二酸化炭素を化石として固定している樹木年輪を用いて盛んに研究された。日本では、木越 (1966)、Kigoshi & Hasegawa(1966)らにより、屋久杉を用いた研究が進められ、 ^{14}C 濃度の経年変動を地磁気の変動と関連させて解析された。また、最近では、現代から1000年前の期間について、マンダー極小期(AD1645-1720)、シュペーラー極小期(AD1415-1534)やウォルフ極小期(AD1282-1342)などの太陽活動の極小期の存在が、過去の大気中二酸化炭素の ^{14}C 濃度の増大と関連させて研究されている (宮原ほか, 2003)。

現在では ^{14}C 濃度の経年変動は、樹木年輪を用いて11,850年前 (暦年代で) まで、海洋底の縞状堆積物やサンゴ化石を用いて11,850-15,585年前の間、サンゴ化石のみを用いて15,585-40,000年前の間のデータが得られている (中村, 2000)。これらのデータの一部は、 ^{14}C 年代を暦年代へ較正するための基礎データ (INTCAL98 データセット: Stuiver et al., 1998) として用いられている。INTCAL98 データベースは、

北米大陸西海岸や北西ヨーロッパに生育した樹木を用いて得られた年輪年代- ^{14}C 年代データを基にしている。大まかにみると INTCAL98 は日本産樹木に適用できるようなのであるが、詳細な比較研究はまだ十分には実施されていない。

芦ノ湖湖底から採取された杉・ヒノキ材について、光谷・袴田(1998)は年輪年代法により年輪年代を決定し、別途に測定されていた ^{14}C 年代との関係が INTCAL98 データセットから著しくずれていることを示した。そこで、著者らは、これらの試料について ^{14}C 年代と年輪年代を詳細に比較するために、年輪年代が決定されたヒノキ材の1本について ^{14}C 年代測定を行った。その結果をここに報告する。

2. 実験

本研究に用いたヒノキ材はAD61-180年の120年間にわたって生育したものである。この年輪年代は、奈良文化財研究所において、年輪幅の計測データを基にして決定された。材の年輪を10年ごとにまとめて、カッターナイフを用いて分割した。年輪試料は、さらにナイフでチップ状に細分したあと、コーヒーマルを用いて粉碎した。200mlのビーカーに粉末化した試料を入れ、蒸留水を用いて洗浄した。次に、1.2規定塩酸を用いて80℃で数時間加熱し、炭酸塩などを除去した。次に、1.2規定の水酸化ナトリウム水溶液に変えて80℃で数時間の加熱処理を、水溶液の色が目立たなくなるまで数回繰り返した。さらに、1.2規定塩酸を用いて80℃で数時間加熱する処理を2回行ったあと、蒸留水で、塩酸成分が完全になくなるまで洗浄を繰り返した。試料を90℃で乾燥し、その約8mgを分取し、線状酸化銅約500mg、銀線(0.1mm径×20mm長)の2~3本と共に外径9mm、長さ35cmのバイコール製の試験管にいれ、高真空に排気したあと、ガスバーナーを用いて封じ切った。試料の入ったバイコール管を900℃で2時間保って、試料を完全に燃焼して二酸化炭素に変えた。生成された二酸化炭素を、ガラス製の真空装置及び液体窒素(-196℃)、エタノール-液体窒素混合物(-100℃)などの冷媒を用いて分離、精製した。回収された二酸化炭素から、炭素にして約1.5mgの二酸化炭素を分取し、触媒として用いられる鉄粉3mgと、過剰量の水素とともに、外径9mmのバイコール管に封入し、鉄粉部分を620℃で6時間加熱して、二酸化炭素からグラファイトを得た。残りの二酸化炭素は、炭素安定同位体比を、安定同位体比測定用の質量分析計で測定するために保存した。

調製したグラファイトをアルミニウム製の試料ホルダーに圧入して、タンデム加速質量分析計のイオン源に組み込んで、これを試料として ^{14}C 年代測定を行った。 ^{14}C 年代測定に際しては、シュウ酸標準体(NBS-NEW, HOxII)から調製したグラファイトを標準試料として用いた(中村, 1999;2001)。

3. 考察

ヒノキ材年輪の ^{14}C 年代測定結果を表1及び図1に示す。表1に示されるように、芦ノ湖から採取されたヒノキ材年輪について今回得られた ^{14}C 年代は、世界的に用いられている ^{14}C 年代-暦年代較正用の INTCAL98 データベースに比べて、 ^{14}C 年代値

表1 ヒノキ年輪試料についての14C年代とINTCAL98との比較

試料番号	(A)		(B)		(A)-(B)			Lab code# (NUTA2-)	
	年輪区間 (AD)	14C年代 (BP)	誤差 (yr)	δ 13C (‰)	INTCAL98 (BP)	誤差 (yr)	差 (yr)		誤差 (yr)
HINOKI-1	171-180	1883	26	-24.7	1836	18	47	32	2442
HINOKI-2	161-170	1867	26	-24.3	1844	19	23	32	2445
HINOKI-3	151-160	1886	26	-23.6	1837	17	49	31	2446
HINOKI-4	141-150	1871	26	-24.2	1833	18	38	32	2447
HINOKI-5	131-140	未測定							
HINOKI-6	121-130	1905	26	-23.5	1896	11	9	28	2448
HINOKI-7	111-120	未測定							
HINOKI-8	101-110	1988	26	-24.1	1908	18	80	32	2449
HINOKI-9	91-100	未測定							
HINOKI-10	81-90	1940	26	-24.5	1902	18	38	32	2450
HINOKI-11	71-80	1939	26	-23.4	1930	13	10	29	2451
HINOKI-12	61-70	1952	26	-22.8	1947	13	5	29	2452

差の平均: 33 年

スギ年輪試料についての14C年代とINTCAL98との比較

試料番号	(A)		(B)		(A)-(B)			Lab code# (GrA-)	
	年輪区間 (AD)	14C年代 (BP)	誤差 (yr)	δ 13C (‰)	INTCAL98 (BP)	誤差 (yr)	差 (yr)		誤差 (yr)
HK-195A	191-200	1920	40		1839	18	81	44	14722
HK-185A	181-190	1915	40		1827	17	88	43	14720
HK-175A	171-180	1870	40		1836	18	34	44	14718
HK-165A	161-170	1810	40		1844	19	-34	44	14717
HK-155A	151-160	1885	40		1837	17	48	43	14715
HK-145A	141-150	1885	40		1833	18	52	44	14714
HK-135A	131-140	1900	40		1836	13	64	42	14713
HK-125A	121-130	1910	40		1896	11	14	41	14712
HK-115A	111-120	1985	40		1909	19	76	44	14710
HK-105A	101-110	1950	40		1908	18	42	44	14699
HK-095A	91-100	1950	40		1882	12	68	42	14698
HK-085A	81-90	1935	40		1902	18	33	44	14695
HK-075A	71-80	1895	40		1930	13	-35	42	14694
HK-065A	61-70	1925	40		1947	13	-22	42	14693

Sakamoto et al.(2003)より引用

差の平均: 36 年

が系統的に古い方に平均して 33 年ずれている。最も大きいずれが 80 年、最も小さいずれが 5 年であり、測定したすべての年輪で、日本産ヒノキの年輪の方が ^{14}C 年代は古い。ズレの平均値は、今回の ^{14}C 年代測定の誤差とほぼ同程度の大きさであるが、系統的に古い年代へのずれであり無視できない。

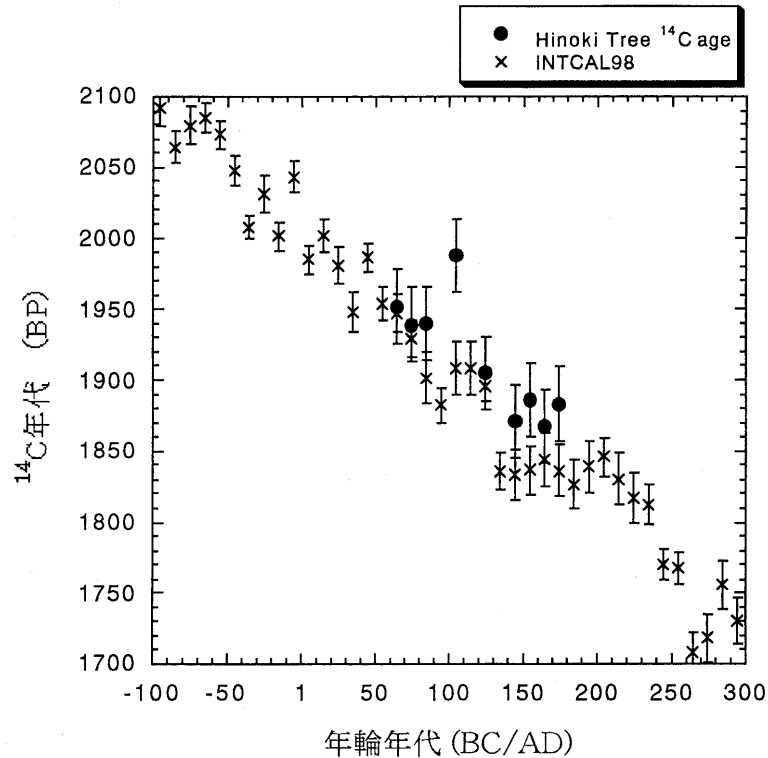


図1 年輪年代が既知のヒノキ材の ^{14}C 年代測定の結果と ^{14}C 年代-暦年代較正曲線 (INTCAL98) との比較

芦ノ湖から採取されたヒノキ材が用いられている。

Sakamoto et al.(2003)が、箱根町の堆積物中から掘り出したスギ材 (年輪 240BC-AD200) について、10 年分の年輪をまとめて分割し、 ^{14}C 年代測定した結果を表 1 および図 2 に示す。Sakamoto et al.(2003)によると、240BC~AD100 の期間は、スギの年輪の ^{14}C 年代は INTCAL98 とよく一致している。一方、AD100~AD200 の間では、本報告と同様に、スギの年輪の ^{14}C 年代の方が INTCAL98 よりも系統的に古い方にずれていると指摘している (図 3)。このずれの理由について、(1)日本列島に特有な ^{14}C 濃度を低下させる現象が発生した可能性、(2)箱根町が日本第一級の火山地帯にあることから、試料樹木が生育した地域に限られる現象 (例えば、火山ガスの長期的な噴出による ^{14}C 濃度の希釈効果) の可能性をあげているが、結論は、今後の研究の課題としている。

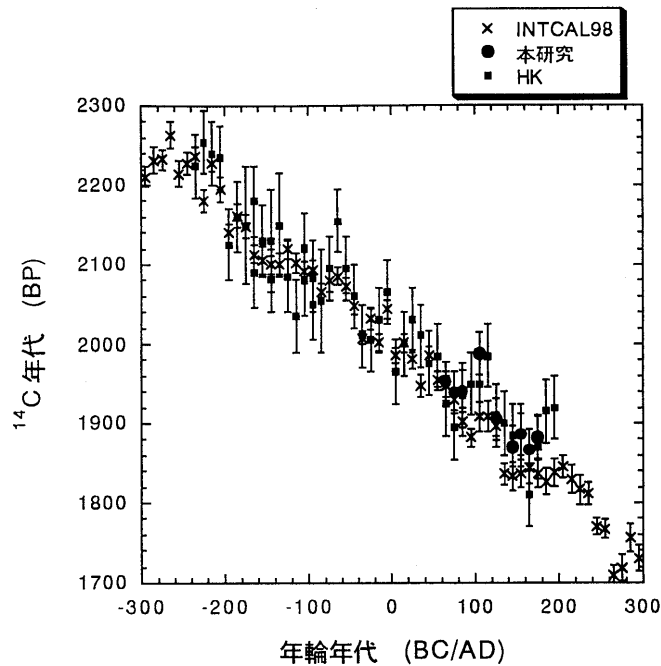


図2 年輪年代が既知のヒノキ材の ^{14}C 年代測定の結果と ^{14}C 年代-暦年代較正曲線 (INTCAL98) との比較

芦ノ湖から採取されたヒノキ材及び箱根町で堆積物中から掘り出された埋没樹木 (Sakamoto et al., 2003) が用いられている。

INTCAL98 データセットに対する樹木年輪の ^{14}C 年代の同様なずれは、トルコ・アナトリア地方に生育した樹木 (juniper) について検出されている (Kromer et al., 2001)。暦年代が 850-750BC の期間で、アナトリアの樹木年輪は INTCAL98 データセットに対して、 ^{14}C 年代が約 30 年古く得られている。Kromer et al.(2001)は、この 850-750BC の期間が、太陽活動の極小期で、地球上での ^{14}C 生成が増大した時期にあたり、成層圏で生成された ^{14}C が対流圏に輸送される時の緯度効果で、年代差の説明を試みている (INTCAL98 データの作成に使われた樹木は、Irish oak(産地の緯度: $\sim 55^\circ \text{N}$)および German oak ($\sim 50^\circ \text{N}$)であり、Anatolia juniper($\sim 40^\circ \text{N}$)とは生育した緯度が異なっている)。また、この時期の気候の寒冷化により、樹木生育の季節が、緯度などの生育場所に依存してシフトした可能性を指摘している。

ところで、大気との交換が遅いとされる南北両半球は、陸地と海洋の面積比が大きく異なっており、このため両半球の大気 CO_2 には定常的に ^{14}C の濃度差があり、南半球の試料は北半球の試料に比べて系統的に 24 ± 3 年古くなるという測定結果 (Stuiver et al., 1998) が得られている。これ以上に大きい ^{14}C 濃度差が、欧米で生育した樹木をもとにして作られた INTCAL98 と、同じ北半球の位置する日本の樹木との間に定常的に存在するとは考え難い。しかし、Sakamoto et al.(2003)や Kromer et al.(2001)が

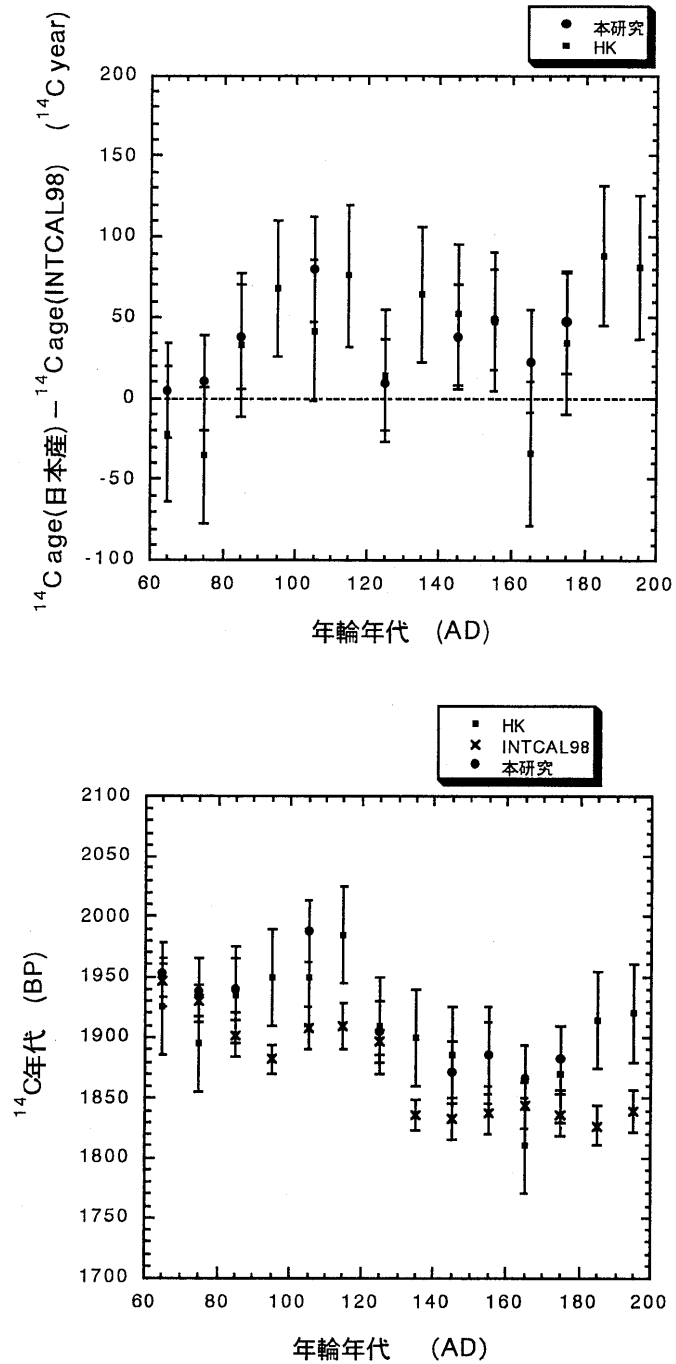


図3 暦年代（年輪年代）でAD60-200の区間における日本産樹木の ^{14}C 年代とINTCAL98との比較。

上図は、両者の年代差を示す。

指摘しているように、短期的な、特定の地域に特有の、（あるいは芦ノ湖周辺など特有の地質現象、例えば、火山性ガスの噴出による）大気中二酸化炭素の ^{14}C 濃度の希釈効果が、ある年代期間に影響を及ぼしたかもしれない。

今後、ヒノキ材試料について測定点をさらに増やし、また、別個体の樹木年輪について、同様の試験を実施する必要がある。

4. まとめ

^{14}C 年代測定は、AMS 法の開発により大きな発展を遂げた。今や、数千年前程度の比較的若い試料については $\pm 20 \sim \pm 40$ 年の誤差 (1σ error) で測定できる (中村, 2001)。また、測定可能な試料数は、試料調製さえできれば年間 2000 個を超えることが可能である。今後の技術改良によってさらに、正確度、精度の向上、測定効率の向上が進められるであろう。今後、 ^{14}C 年代測定の利用は益々発展するものと期待される。土器の編年や古文化財の年代決定のために、試料の ^{14}C 年代からさらに暦年代へと較正する必要がある。この較正をきちんと行うには、現在国際的に用いられている INTCAL98 が日本の試料について、適用できることをきちんと確かめておくことが不可欠である。

本研究は、民間企業との共同研究プログラムの一部として進められている。関係各位のご助りに感謝したい。

参考文献

- 木越邦彦：大気中における ^{14}C 濃度の経年変化。日本化学会誌, 87(3), 209-220, 1966.
- Kigoshi, K. and Hasegawa, H. : Secular variation of atmospheric radiocarbon concentration and its dependence on geomagnetism. *J. Geophys. Res.*, 71, 1065-1071, 1966.
- Kromer, B., Manning, S.W., Kuniholm, P.I., Newton, M.W., Spurk, M., and Levin, I. : Regional $^{14}\text{CO}_2$ offsets in the troposphere: Magnitude, mechanism, and consequences. *Science*, 294, 2529-2532, 2001
- 光谷拓実・袴田和夫：箱根芦ノ湖の湖底木と南関東の巨大地震。日本文化財科学会第 15 回大会研究発表要旨集, 22-23, 1998.
- 宮原ひろ子・古澤秀樹・木村 綏・中村俊夫・北川浩之：年輪中 ^{14}C 濃度測定による シュペーラー極小期の太陽活動の研究。名古屋大学タンデトロン加速器質量分析計業績報告書, XIV, 66-71, 2003.
- 中村俊夫：放射線炭素法。考古学のための年代測定学入門。(長友恒人, 編), 古今書院, 1-36, 1999.
- 中村俊夫： ^{14}C 年代から暦年代への較正。「日本先史時代の ^{14}C 年代」, 日本第四紀学会, 21-40, 2000.
- 中村俊夫：放射性炭素年代とその高精度化。第四紀研究, 40(6), 445-459, 2001.

- Stuiver, M., Reimer, P.J., Bard, E., Beck, J.W., Burr, G.S., Hughen, K.A., Kromer, B., McCormac, F.G., v.d. Plicht, J., and Spurk, M. : INTCAL98 Radiocarbon age calibration, 24,000-0cal BP. *Radiocarbon*, 40, 1041-1083, 1998.
- Sakamoto, M., Imamura, M., van der Plicht, J., Mitsutani, T., Sahara, M.: Radiocarbon calibration for Japanese wood samples. *Radiocarbon*, 45 (1), 81-89, 2003.

Comparison of Radiocarbon Ages with Dendrochronology for Japanese Trees

T. Nakamura^a, H. Fukumoto^b, T. Mitsutani^c, E. Niu^a, H. Oda^a, A. Ikeda^a, T. Ohta^a,
and H. Fujine^d

^a Center for Chronological Research, Nagoya University

^b Mie Prefecture Kihoku Branch Office

^c Nara National Cultural Properties Research Institute

^d Paleo Labo, Co Ltd.

Abstract:

The internationally recommended INTCAL98 calibration data set is widely used for calibration of radiocarbon (¹⁴C) age to calendar date. It is believed that the INTCAL98 data set can represent the general variation of ¹⁴C concentrations for the period from 11850 cal BP to present, based on tree ring chronology.

To test the applicability of the INTCAL 98 data set to Japanese samples, we have measured ¹⁴C ages for a submerged wood trunk of Japanese cypress tree collected from Ashinoko Lake, Hakone-cho, Kanagawa Prefecture, Japan. Routine ¹⁴C dating was conducted with a Tandetron accelerator mass spectrometer at the Center for Chronological Research, Nagoya University.

Tree rings of the wood sample covered from AD 61 to AD 180, for a span of 120 years, as were dated by a dendrochronological analysis at Nara Cultural Properties Research Institute. Neighboring ten annual rings were combined together to produce 12 samples from the wood. The ¹⁴C ages of nine samples were compared with those of the INTCAL98 data set at relevant calendar years, and an obvious shift of ¹⁴C ages for the cypress wood was observed towards the dates older than those by the INTCAL98 data set, by about 30 ¹⁴C years. This trend coincides with the results for a bogwood (Japanese cedar) unearthed at Hakone-cho, Kanagawa Prefecture. The sources of such age discrepancies maybe related to a local geological event, such as dilution of atmospheric ¹⁴CO₂ concentration with volcanic ¹⁴C-free CO₂ emitted intermittently from Hakone volcano. Further analyses are required to test this speculation and explain these results in detail.