

AMS ^{14}C 年代測定の法医学的利用 (II)

中村俊夫*・太田友子・西田真砂美

名古屋大学年代測定総合研究センター

(連絡先 : e-mail:nakamura@nendai.Nagoya-u.ac.jp, phone:052-789-3092)

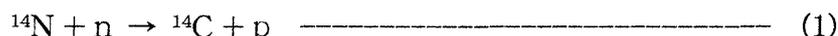
1. はじめに

中村ほか (2003) において, 名古屋大学加速器質量分析計による ^{14}C 測定の法医学的利用について報告した. ヒトの髪の毛の ^{14}C 濃度から死亡年を, 親知らず (第3臼歯) の ^{14}C 濃度からおおよその誕生年を推定できることを示した. この度, 新たに人家跡から発掘されたヒトの死体について ^{14}C 測定を適用した. これも, 前回と同様に殺人事件に関連した資料であったが, 時効が成立しており訴訟問題にはならない. 本報告では, 新たに用いた死体の死亡年推定に用いた資料と根拠について議論する.

2. 年代推定のための背景

2. 1 核実験起源 ^{14}C による大気中二酸化炭素の ^{14}C 濃度変動

地球上の ^{14}C は, 宇宙線により二次的に作られる中性子と大気中の窒素原子核との核反応により次の核反応式で生成される. 地表 1cm^2 あたり毎秒 2 個の ^{14}C が作られるとされる.



一方, 大気圏内の核実験において, 原子爆弾による ^{235}U の核分裂や水素爆弾による水素の熱核融合反応により過剰の中性子が作られる. 大気圏内で核実験が行われると生成された中性子が大気中に放出されて, 式(1)の核反応により大気中にて ^{14}C が作られる. これを人工起源の ^{14}C と称する. 1950 年代後半から 1960 年の始めにかけて, 米ソ両国による核兵器開発競争により大気圏内で核実験が実施され, これに伴って大量の ^{14}C が人工的に作られた. 核のキノコ雲は成層圏に達している.

大気圏内の核実験による大気中 CO_2 の ^{14}C 濃度の経年変動を図 1 に示す (中村ほか, 1987 : Nakamura et al, 1987). 木曾ヒノキの年輪, サング年輪及び生育した年のわかった松葉について ^{14}C 濃度を測定することにより, 対流圏の二酸化炭素の ^{14}C 濃度を求めたものである. 図 1 の縦軸のうち左側の $\Delta^{14}\text{C}$ は, 試料の ^{14}C 濃度の標準初期 ^{14}C 濃度からのずれを, さらに標準初期 ^{14}C 濃度で除して 1000 分率をとったもの ((2) 式) である. 1000‰ は, ^{14}C 濃度が標準初期 ^{14}C 濃度の 2 倍であることを意味する. 右の縦軸は, 標準初期 ^{14}C 濃度を 100% としたときの試料の ^{14}C

濃度を示す。200pMC は、 ^{14}C 濃度が標準初期 ^{14}C 濃度の 2 倍であることを示す。1962 年には、大気圏内で大規模な核兵器実験が行われたが、1963 年には米ソ間の条約により中止され、それ以降は地表下での核実験が主流になった。1964 年の ^{14}C 濃度のピークは、成層圏内で作られた ^{14}C の多くが対流圏に降下したためである。1964 年以降、対流圏内の ^{14}C は、海洋との二酸化炭素交換により大気中から海洋へと移行して、薄められてきた。ここで注意すべきことは、核実験の実施場所が、ほぼ米ソの領土内の限られた地点にあることである。従って、図 1 の ^{14}C 濃度のピークの大きさは、地表で核実験が行われた場所に依存して、強い緯度依存性を示すが、大気圏内核実験が停止された後は、経年と共に徐々に緯度効果は薄れる。しかしながら、実験が開始された前後の 1955-1970 年の間には、大気中二酸化炭素の ^{14}C 濃度には、緯度依存性がある (Hua and Barbetti, 2004) 。人体の試料の ^{14}C 濃度を比較する場合には、その人が育った環境における ^{14}C 濃度の経年変動と比較しなければならない。一方、1970 年頃から 2000 年にかけての ^{14}C 濃度の単調な減少区間については、図 1 に示される ^{14}C 濃度の変動パターンは全地球的なグローバルものと考えて良い。すなわち、西暦年と ^{14}C 濃度がほぼ一対一の対応を示す。従ってこの期間については、グローバルな変動パターンを用いて、試料の ^{14}C 濃度から試料の西暦年を推定することができる。

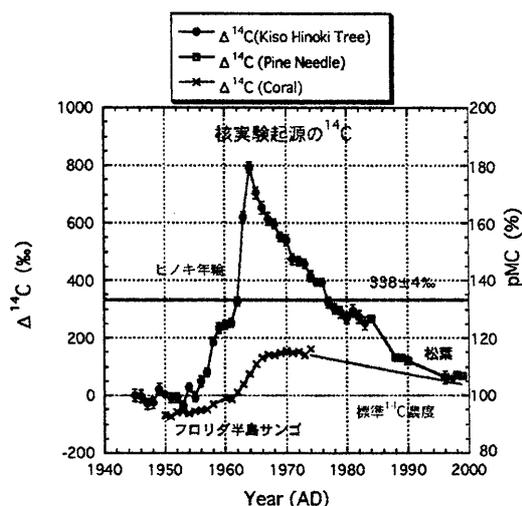


図 1 大気圏内核実験起源 ^{14}C による対流圏二酸化炭素の ^{14}C 濃度の経年変動

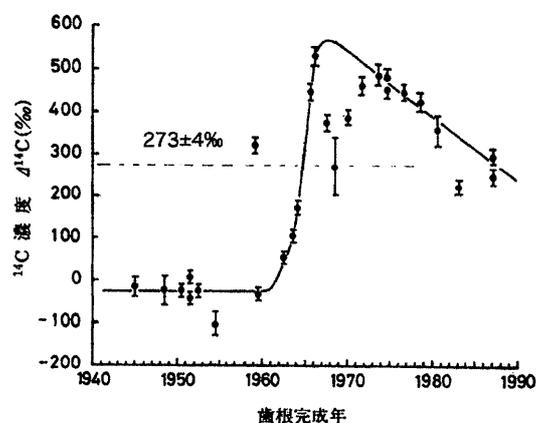


図 2 歯根完成年とヒト歯牙コラーゲン中 ^{14}C 濃度の関係

2. 2 核実験起源 ^{14}C に起因するヒト歯牙コラーゲンの ^{14}C 濃度変動

Nishizawa et al(1990)により得られた、ヒト歯牙コラーゲンの ^{14}C 濃度とその歯根の完成年との関係を図 2 に示す。歯牙コラーゲンの ^{14}C 濃度は、図 1 に示した大気中二酸化炭素の ^{14}C 濃度よりは、1, 2 年遅れて、1965-1967 年頃に増加を示す。しかもそのピーク値は 550‰と、同年の大気中二酸化炭素の ^{14}C 濃度よりは低い値を示す。樹木は光合成により大気中の ^{14}C を直接取り込むが、ヒトは食物を介して取り込む。ヒトは雑食性であり、古い食糧も食するため、 ^{14}C 濃度の立

ち上がりの時期が大気中二酸化炭素よりも遅れ、かつ ^{14}C 濃度の最大値も低くなるものと考えられる。しかし、この場合にも、ヒト歯牙コラーゲンの ^{14}C 濃度と歯牙が完成する西暦年とがほぼ一対一の対応を示す（図 2 に示されるように、データ数が不十分で対応が不明確な箇所もある）。このデータを使って、試料の ^{14}C 濃度から試料のおおよその西暦年を推定することができる。

3. 死亡年の推定に用いた資料と分析結果

3. 1 ^{14}C 測定資料

測定資料として依頼者から提供されたものは次の 2 点である。

資料 1	ヒト歯牙（奥歯）	1 本
資料 2	毛髪	数十本

ここで、毛髪は、図 1 から死亡年を推定するために、また、ヒト歯牙は、図 2 からヒトの年齢（生年）を推定するために選んだ。

3. 2 試料調製と ^{14}C 測定

歯牙については既に水酸化ナトリウム水溶液を用いて洗浄してあったため、表面の汚れはほとんど無かった。生前に歯の治療のために詰め物があっていたため、それを機械的に除去し、蒸留水で洗浄した。次にステンレス製の乳鉢で粉末にし、その約 41 ミリグラムを分取した。毛髪についても蒸留水で洗浄したあと乾燥して重量を測定した。約 10 ミリグラムであった。

洗浄し分取したそれぞれの資料を、助燃剤である酸化銅約 500mg と共にバイコールガラス試験管に詰め、真空装置で排気してガラス試験管内の空気を完全に除去した。次にバイコールガラス管をバーナーで溶かして封じきり、資料、酸化銅の入ったガラス管を電気炉で 900°C に加熱して、資料を燃焼して資料に含まれる炭素を全て二酸化炭素に変えた。真空装置を用いて、生成された二酸化炭素を分離・精製し、鉄粉末触媒による水素還元法で二酸化炭素をグラファイトに変えた。グラファイトから直接の分析資料であるグラファイトターゲットを作成して、その炭素同位体組成 ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$, $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比) をタンデトロン加速器質量分析装置を用いて測定した。

炭素同位体組成比の表示は、さまざまな方法が用いられているが、ここでは、放射性炭素年代測定の標準濃度（西暦 1950 年の標準 ^{14}C 濃度として、 $(^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{AD } 1950}$ で表される）に対する千分率で表現する（下記の式(2)による）。なお、この際に、タンデトロンを用いて測定した $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比を用いて、試料及び標準体の $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比に対して炭素同位体分別の補正を行った。

$$\Delta^{14}\text{C} (\%) = [({}^{14}\text{C}/{}^{12}\text{C})_{\text{sample, corr}} / ({}^{14}\text{C}/{}^{12}\text{C})_{\text{AD1950, corr}} - 1.0] \times 1000 \quad \text{----- (2)}$$

3. 3 測定結果

両試料の種類、試料量、炭素の回収率、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 、 ^{14}C 濃度、見かけの ^{14}C 年代、実験室番号を表 1 に示す。

表 1 科学鑑定試料の分析結果

試料の種類	元の試料量	炭素収量 (収率)	$\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ (‰)	$R_{\text{spl}}/R_{\text{AD 1950}}$ ($\Delta^{14}\text{C}$: ‰)	見かけの ^{14}C 年代 (BP $\pm 1\sigma$)	Lab. #
ヒトの髪の毛 (細かい毛が数十本)	湯洗浄後 (9.72mg 元の量)	4.41 mg (45.4%)	-16.8	1.332 ± 0.004 (332 ± 4)	-2304 ± 27	NUTA2-8127
奥歯 (1本、詰め物が残存)	41.13mg (奥歯一本を、薬品および蒸留水で洗浄後、粉碎して分取)	10.65mg (25.9%)	-16.5	1.273 ± 0.004 (273 ± 4)	-1943 ± 27	NUTA2-8126

洗浄後の毛髪を燃焼して回収された炭素量は 4.41mg で、炭素収率は 45.4%と前回とほぼ同じ値であった(中村ほか, 2002)。歯牙コラーゲンからの炭素の収率は 25.9%と、前回(8.57%)に比べて3倍程度に大きい。またこれは、通常の歯牙コラーゲン殻の炭素収率(象の牙から抽出した純粋なコラーゲンについては、40%に近い収率が得られている(池田, 2000))に比べて低かった。

4. 分析結果の解釈

4. 1 結果の解釈について

毛髪中の有機物の ^{14}C 濃度は、その毛髪が人体内で形成された(生えてきた)年にその人体が摂取した食料の ^{14}C 濃度にほぼ等しいと考えられる。食糧の主要部がお米であるとすれば、ほぼその前年に収穫されたお米の ^{14}C 濃度に等しいはずである。従って、

$$\begin{aligned} \text{毛髪の } ^{14}\text{C} \text{ 濃度} &= \text{毛髪が生えた前年に収穫されたお米の } ^{14}\text{C} \text{ 濃度} \\ &= \text{毛髪が生えた前年に形成された樹木年輪の } ^{14}\text{C} \text{ 濃度} \end{aligned}$$

と考えられる。毛髪の ^{14}C 濃度は $\Delta^{14}\text{C} = \frac{332 \pm 4}{525} = 5\%$ である。この値に相当する樹木年輪の ^{14}C 濃度は、図 1 からほぼ西暦 1977 年の濃度である。従って、1977 年頃に生えた毛髪と考えられる。

同様に、歯牙中タンパク質であるコラーゲンの ^{14}C 濃度は、その歯牙が人体内で形成された(歯が生えてきた)年にその人体が摂取した食料の ^{14}C 濃度に等しい。食糧の主要部がお米であるとすれば、ほぼその前年に収穫されたお米の ^{14}C 濃度に等しいはずである。

$$\begin{aligned} \text{歯牙の } ^{14}\text{C} \text{ 濃度} &= \text{歯牙が生えた前年に収穫されたお米の } ^{14}\text{C} \text{ 濃度} \\ &= \text{歯牙が生えた前年に形成された樹木年輪の } ^{14}\text{C} \text{ 濃度} \end{aligned}$$

測定した歯牙は、第8番目の歯（第3大臼歯；親知らず）であり、その完成は18歳から25歳までの幅（平均21.5歳）をもつとされる。また歯牙の ^{14}C 濃度は $\Delta^{14}\text{C}=273\pm 4\%$ であることから、1965年頃に形成された歯牙であると推察される。すなわち、1965年頃には、18-25歳であったと推察される。

4. 2 推定死亡年及び死亡年齢について

以上のことから、死体の推定死亡年はほぼ西暦1977年頃、その時の年齢は30-37歳程度であると推定される。

5. おわりに

この事件は、2004年8月に、犯人が26年前に女性を殺害したと自首し、供述のとおり死体が発見されたことにより既に解決している。警察の捜査によると、被害者は1978年8月に殺害され埋められた。女性の年齢は当時29歳（1949年生）であったとされる。死体から採取した毛髪と歯牙の ^{14}C 年代測定の結果は、この事実とは矛盾しない。

本研究の結果から、死亡年については、毛髪を用いることでおおよその推定が可能であることが示された。年齢については、図2に示した歯牙コラーゲンの ^{14}C 濃度の基礎データの数が不十分で、明確な結論が出せない部分がある。既に述べたように、親知らずが生える年齢は、個人差があるため、推定年齢の誤差が多少大きくなるのは如何ともしがたいことである。

大気中二酸化炭素の ^{14}C 濃度変動曲線（人工 ^{14}C が寄与する期間）から試料生成の西暦年を求めることは、誤差がやや大きいが可能であることがこの研究から示された。今後、さらに事例を増やして研究を進める必要がある。

参考文献

- Quan Hua and Mike Barbetti (2004) Review of tropospheric bomb ^{14}C data for carbon cycle modeling and age calibration purposes. *Radiocarbon*, 46(3) 1273-1298.
- 池田晃子・中村俊夫（2000）コラーゲンを含む試料の簡便な調製(4). 名古屋大学加速器質量分析業績報告書. XI, 239-242.
- 中村俊夫, 中井信之, 木村雅也, 大石昭二, 服部芳明, 木方洋二 (1987) 樹木年輪 (1945-1983) の ^{14}C 濃度変動, 地球化学, 21, 7-12.
- T. Nakamura, N. Nakai and S. Ohishi (1987) Applications of environmental ^{14}C measured by AMS as a carbon tracer, *Nucl. Instrum. and Methods in Nucl. Physics*, B29, 355-360.
- 中村俊夫・太田友子・浅田梨詠・丹生越子（2003） ^{14}C 年代測定の法医学的利用. 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, XIV, 83-90.
- K. Nishizawa, A. Togari, S. Sakamoto and T. Nagatsu (1990) Atmospheric nuclear weapon test history as characterized by the deposition of carbon-14 in human teeth. *Health Physics*, 59, 2, 179-182.

Applications of AMS ^{14}C Measurements to Forensic Researches (II)

Toshio NAKAMURA*, Tomoko OHTA and Masami NISHIDA

(corresponding author: e-mail:nakamura@nendai.nagoya-u.ac.jp; phone:052-789-3082)

Abstract

^{14}C variations of atmospheric CO_2 as well as human carbonaceous materials such as collagen fractions from teeth and bone, hair, nail, etc., of modern humans are influenced by ^{14}C produced artificially by nuclear bomb tests in the atmosphere from late 1950s to early 1960s. By careful investigation of ^{14}C concentration of tree rings and human tissue samples formed in this time ranges, we can establish a relation between their ^{14}C concentrations and calendar year. By applying this relation to a sample whose ^{14}C concentration can be measured, we can estimate the formation age of the sample.

This method of age determination was applied for a forensic study; i.e., for a dead body of a modern human who was killed in 1978 and buried under the floor of the house owned by the murderer. The body was excavated in 2004 according to the confession by the murderer. By comparing the measured ^{14}C abundances of several pieces of hair and tooth (the third molar) from the body with the annual change on concentrations of bomb produced ^{14}C , the time of death of the body was estimated at around 1977, and her age was from 30 to 37 years old at that time. These estimations were consistent with the real values that were revealed after the case was solved by the confession of the real murderer who gave himself up to the police.