

放射性炭素年代測定法

中井 信之*・中村 俊夫**

Radiocarbon dating

Nobuyuki NAKAI* and Toshio NAKAMURA**

Abstract Application of cosmogenic isotopes are classified into three categories ; (1) as recording of fluctuations in cosmic-ray intensities, (2) as potential dating tools and (3) as tracers. The present paper reviews on essential problems to understand radiocarbon ages and on the applications of ^{14}C -dating to various fields such as geology, sedimentology, pedology, geochemistry, palynology, climatology, dendrochronology, glaciology, archeology, anthropology and so on.

There are simple but essential requirements for using radiocarbon for dating ; (a) Knowledge of the initial concentration of ^{14}C , (b) that the sample analysed remains closed to entry or loss of carbonaceous matter, so removal of contamination, pretreatment or purification of sample, is the most important and unavoidable process prior to dating to expect the ^{14}C precise age, (c) considering the meaning of ages for specific sample carbon in relation to the event examined, and (d) understanding "Radiocarbon Age" routinely calculated not by using the true half-life of 5,730yr. but by using 5,570yr.

In recent years a direct ultrasensitive measuring method, Accelerator Mass Spectrometry (AMS), has made practical the natural-level ^{14}C , ^{10}Be and ^{36}Cl determination with using only milligram amount of elements and with counting numbers of the isotope ion itself only for a few hours. This technique offers very specific advantage and possibilities of ^{14}C -dating even for a limited obtainable amount less than 5 mg as C of carbonaceous samples, resulting not only in expanding fields of applications but also in prolonging obtainable age limits up to about 60,000yr. BP.

1. 放射性炭素による年代測定

放射性炭素 ^{14}C (半減期 : $5,730 \pm 40$ 年) は大気中の二酸化炭素や・動植物等の天然物に含まれる炭素の放射性同位体 (Radioisotope) である。この ^{14}C は高層大気中で ^{14}N と宇宙線の二次中性子との反応 $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ により生成され、大気中にはほぼ一定の濃度で CO_2 に含まれている。大気中の CO_2 は植物・動物に同化され、また炭酸塩 (主として CaCO_3) の殻を作る貝類・有孔虫や洞窟の鍾乳石に取込まれる。大気 CO_2 を取り込んだ現代

の生物や炭酸塩の炭素には、次の3種の同位体が存在する。

$$^{12}\text{C} : ^{13}\text{C} : ^{14}\text{C} = 0.99 : 0.01 : 1.2 \times 10^{-12}$$

これらの同位体のうち ^{12}C と ^{13}C は安定同位体 (Stable isotopes) である。この現代の天然レベルの ^{14}C 存在比は、1955 年頃以降核爆発実験により急激に増加した。(Nydal & Lövseth, 1983)。

このようにして大気中で生産された ^{14}C の追跡には、大きくわけて次の2つの方向の応用がある。すなわち、(1) ^{14}C 年代測定、(2) 核実験生成 ^{14}C の tracer としての利用である。

(1) ^{14}C 年代測定……天然レベルの ^{14}C を取込んだ生物の遺体有機物の ^{14}C 濃度 ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$) を測定し、死後

* 名古屋大学理学部地球科学教室。 Department of Earth Sciences, School of Science, Nagoya University, Chikusa, Nagoya, 464

** 名古屋大学アイソトープ総合センター。 Radioisotope Center, Nagoya University, Chikusa, Nagoya, 464 Japan.

の時間経過を ^{14}C 濃度の減少から算出することができ、無機的に生成した炭酸塩からも同様に生成年代を知ることができる。これが一般に ^{14}C 年代測定とよばれ、1947～1950 年にシカゴ大学の W. F. LIBBY 教授が提唱し確立したものである。この年代測定法の可能性が提唱されてから 40 年になる (日本アイソトープ協会, 1986)。その間、 ^{14}C 測定技術はシールドと反同時計数で低バックグラウンドにした気体比例計数法やシンチレーション計数法による β 線 counting から、加速器質量分析 (Accelerator Mass Spectrometry, AMS と略す) による ^{14}C の直接 counting へと進歩した。

この技術的進歩により、測定に必要な試料は 0.1～5 mg-C にまで減少し、測定時間は約 5 時間に短縮され、測定可能年代も 60,000 年 BP となった (NAKAI *et al.*, 1984; NAKAMURA *et al.*, 1985)。

(2) ^{14}C の tracer としての利用

宇宙線生成 ^{14}C および核実験生成 ^{14}C は、いずれも大気 CO_2 の炭素原子にラベルされた tracer としての役割を果たすことができる。従って、大気 CO_2 が大気圏・水圏・生物圏を通じてどのように移動し循環するかを知るための有力な手段として用いられる。特に、1955 年頃以降の原水爆実験による大気中 ^{14}C 濃度の増加と、1964 年の最大濃度は炭素循環の追跡に有用である。この人工 ^{14}C の大気への付加によって 1964 年には、大気 CO_2 の ^{14}C 濃度は天然レベルの約 2 倍のピーク値を示し、その後急速に減少を続け、1983 年には天然レベルの約 1.5 倍になった (NYDAL, 1968; CAIN & SUESS, 1976; NYDAL & LÖVSETH, 1983; NAKAI *et al.*, 1984)。

^{14}C の tracer としての応用も広い意味での年代測定とみることにもできる。微量放射性核種のこの方面への応用には、 ^{14}C に限らず ^3H (半減期: 12.6 年)、 ^{36}Cl (半減期: 3.0×10^8 年)、 ^{137}Cs (半減期: 30.2 年) 等が用いられている (KAMIYAMA *et al.*, 1982; BENTLEY *et al.*, 1986; 中井, 1986; SCHELL & BARNES, 1986; ZUBER, 1986)。

2. ^{14}C 年代測定の諸問題と測定試料

2-1. ^{14}C 年代の意味と信頼性

放射性炭素の測定技術は近年急速に進歩し、測定誤差は小さくなってきている。すなわち、年代測定値 $\pm n$ 年の n 値が小さくなってきたが、この n 値は ^{14}C 濃度測定時の統計的な不確かさを表現しているに過ぎない。それでは、年代の尺度である ^{14}C 年代と実際の年代との間にどの程度の差があるのか、またその差はどのような原因によるのかを考えてみる。

第 1 表 放射性炭素 (^{14}C) の半減期 (浜田, 1981)

測定年	半減期 (年)
1949	5,589 $\pm$ 75
1949	5,580 $\pm$ 45
1950	5,513 $\pm$ 165
平均値	5,568 $\pm$ 30
1961	5,760 $\pm$ 50
1961	5,780 $\pm$ 65
1962	5,680 $\pm$ 40
平均値	5,730 $\pm$ 40
1963	5,660 $\pm$ 30

^{14}C 年代が実際の年代と一致するためには、年代測定法の原理的な次の 3 点を解決しなければならない。

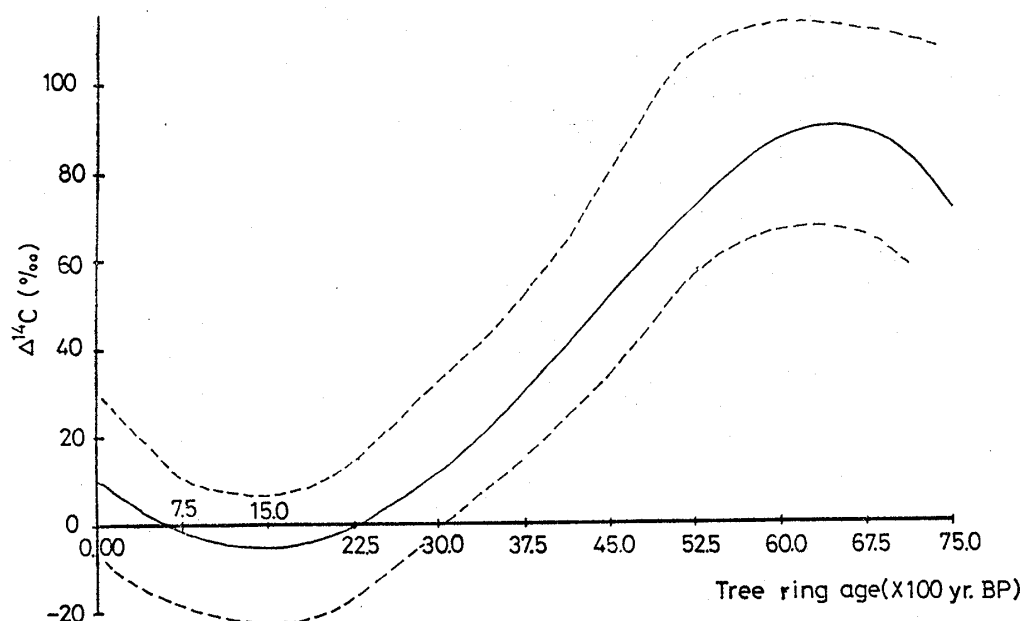
- (1) 放射性炭素 ^{14}C の半減期、壊変定数が正確である、
- (2) 大気 CO_2 の ^{14}C 濃度 ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$) が時間的・地域的に一定であるか、その ^{14}C 濃度の変動を把握できる、
- (3) 測定対象の炭素物質の ^{14}C 濃度が生成時の大気 CO_2 のそれに等しいか、両者の間の同位体分別 (Isotopic fractionation) の程度が推定できる。

(1) 半減期と ^{14}C 年代値

^{14}C の半減期の測定は数多くあるが、第 1 表に示した中で、Libby 教授は 1950 年までに公表された値のうち信依性の高い 3 測定値の平均値 5,568 $\pm$ 30 年を用いて年代を算出した。その後、1961, 1962 年に公表された半減期はすべて大きく、平均して 5,730 $\pm$ 40 年であり、信頼度が高いとされている。しかし、年代値の算出に用いる半減期を変更することによる混乱を避けるため、現在でも 5,568 $\pm$ 30 年の半減期で年代値を算出することになっている。従って、 ^{14}C 年代は暦年代とは一致しないものであり、 ^{14}C 年代尺度による年代である。

(2) 大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の変動

古地磁気の強度の変化によって、大気圏に到達する宇宙線強度が変化したことが知られている (O'BRIEN, 1979)。この宇宙線強度の変動にともなう過去の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度変化は、木の年輪の ^{14}C 濃度を追跡することにより求められる。本邦でも KIGOSHI & HASEGAWA (1966) は樹令 2,000 年の屋久杉について測定した。一本の樹木では樹令は限度があるので、枯れ木や埋もれ木の太木を年輪年代学 (Dendrochronology) 的手法でつなぎ合わせて ^{14}C 濃度が測定され、現在では過去 7,500 年間の変動がまとめられている。STERNBERG & DAMON (1979) が 1959 年以來のこの種の研究結果をまとめたのが第 1 図である。この図で点線は測定値のばらつき巾を



第1図 大気(木の年輪) ^{14}C 濃度の 7,000 年 BP 以降における変動 (STERNBERG & DAMON, 1979).

示す。この結果からみると、大気 CO_2 の $\Delta^{14}\text{C}$ 値 (^{14}C の相対濃度：次項参照) は、6,000—7,000 年(暦年代) BP 頃は 1950 年の大気 CO_2 にくらべ 80‰ ^{14}C 濃度が高かったことを示している。このことは、この年代の試料の ^{14}C 年代は約 800 年若すぎる値を与えることになる。しかし、2,000 年 BP 以降の変動は少なく、約 ± 10 ‰程度であるので、実年代との差は ± 100 年以内である。現在では、まだ統一された補正值が決められていないため、補正はされていない。従って、あくまでも ^{14}C 年代尺度による年代と考えねばならない。

(3) 大気 CO_2 固定の過程における同位体効果

年代測定試料の ^{14}C 濃度の測定値は標準物質(1850 年前後の木の年輪・NBS 蔞酸 (SRM-4990) により 1950 年の木材に換算した $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比をもつもの)との同位体比の差を千分偏差で表現する。

$$\delta^{14}\text{C}(\text{‰}) = \left\{ \frac{(^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{Sample}}}{(^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{Standard}}} - 1 \right\} \times 1,000$$

ところが、測定しようとする炭素物質が生成される過程で、大気 CO_2 との間に同位体分別が生じる。そこで、試料の炭素安定同位体比 ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$) を測定し、標準木材からの差により、 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比を補正する。 $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比は質量分析により、PDB-Chicago 標準 ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C} = 0.0112372$) からの千分偏差として $\delta^{13}\text{C}$ 値で示される。

$$\delta^{13}\text{C}(\text{‰}) = \left\{ \frac{(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{Sample}}}{(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{Standard}}} - 1 \right\} \times 1,000$$

この $\delta^{13}\text{C}$ 測定値から $\delta^{14}\text{C}$ 値の同位体効果を次式によ

って補正し、 $\Delta^{14}\text{C}$ 値がえられる。

$$\Delta^{14}\text{C}(\text{‰}) = \delta^{14}\text{C} - 2(\delta^{13}\text{C} + 25) \left(1 + \frac{\delta^{14}\text{C}}{1,000} \right)$$

この式で、標準木材の $\delta^{13}\text{C}$ 値を -25 ‰としている。このようにして得られた $\Delta^{14}\text{C}$ 値を用いて ^{14}C 年代を算出することにより同位体効果を除くことができる。

2-2. 測定に用いられる試料

正しい目的年代を得るには試料の選択が重要である。すなわち、地質学的・考古学的・人類学的な何れの試料にしても、(1) 研究目的に最も近い年代を示す炭素物質を選ぶ、(2) 測定に十分な量の炭素が得られること、(3) 長期間風雨に暴されたり、地層中に埋没していた間に混入した二次的な炭素物質の除去(試料の前処理)等である。

上にあげた重要事項の中で、(3) の二次汚染物質の除去前処理に関しては、種々の化学処理が工夫されている(木越, 1976; 富樫・松本, 1983; 中井・中村, 1983)。ここでは、研究分野別に年代測定に用いられる試料について述べる。

(i) 地質学的試料

木炭・木片……堆積物の堆積年代を知ること、またそれらから堆積速度や堆積環境の変化を知るのによく用いられる。堆積物の中に含まれる木片や炭化木が堆積時に生木であった場合は確実な年代を与える試料として有用である。また、溶岩の中に取込まれている炭化木は溶岩の噴出年代を決めるのに用いられている。炭化木の樹

令によっては、外側の年輪を選ぶ方がより噴出年代に近い値が得られる。

泥炭・褐炭……地層の堆積年代を決めるのに最も一般的に用いられる。その理由は、これらは堆積当時に繁茂した植物の炭化遺体であるため比較的忠実な年代を示すからである。

堆積物・土壌中の有機物……フミン質の有機物は海洋や湖底の堆積物および土壌中に普遍的に含まれているので、堆積年代を求めるには最も得やすい試料である。しかし、これを用いた年代測定には最も問題が多い。フミン質有機物の ^{14}C 年代は堆積年代よりも可成り古い値を与えることが多い。例えば、琵琶湖底の表面堆積物で約 2,600 年 BP となり(中村ら, 1986), 東京湾の完新世堆積物 コアの粗粒部では、貝化石や木片の ^{14}C 年代にくらべ 1,500~2,000 年古い年代が得られている。(NAKAI *et al.*, 1987). これは、陸上の古い年代の堆積岩からの dead carbon による ^{14}C 濃度の希釈によると考えられる。一方、有機炭素含有量の少ない堆積物では、フミン質をアルカリ抽出により回収して、その ^{14}C を測定するが、この場合には堆積年代よりも若い値が測定結果として得られる。これは、二次的に上部堆積層から若い年代の有機物が浸透して付加されるためは云われている。

従って、堆積物や土壌の有機物による ^{14}C 年代測定には、形を残した生物遺体である木片や plant tissue 等を用いるのが安全である。

貝化石・サンゴ……これらは、天然水中で炭酸イオンを原料として生成したものである。従って、炭酸イオンと大気 CO_2 の ^{14}C が平衡状態になっていれば、その同位体効果の補正のみで正しい年代が得られる。海水では平衡に近い状態が保たれているので、海の貝化石やサンゴは年代測定に適した試料である。これらの試料でも、再結晶の形跡が無いことを顕微鏡観察で確かめておく必要がある。海洋性に対して、淡水性の貝殻や陸上の貝殻(カタツムリ等)は、大気中の ^{14}C 以外に古い年代の石灰岩の風化や有機物の分解により生成した炭酸イオンを原料としているので、実際よりは古い年代を与えることが多い(MEHRINGER & WARREN, 1976)。

獣骨……獣骨化石に含まれる蛋白質の一種コラーゲン(collagen)が ^{14}C 年代測定に用いられる。しかし、従来の β -線計数法による ^{14}C 測定に十分なコラーゲンを抽出するには 100~数 100 g の試料が必要である。

(ii) 考古学的試料

地質学的年代測定に用いられる試料は、すべて考古学の年代測定にも利用できる。考古学的試料は、特にその

選択と年代の意味を考慮せねばならない。ここでは、遺跡の発掘で得られる試料を植物質、動物質、貝殻について述べる。

植物質試料……食用として用いられていた木の実、建材の材木や塗料、炉跡の木炭、草などの繊維と土で焼いた繊維土器の中の炭素などがある。これらの中で、木の実がその遺跡の使用されていた最後の年代を知るのに最も適しているが、従来の ^{14}C 測定法に十分な試料を集めることは難しい。木炭や建材の材木が最もよく用いられている。この木炭は遺跡が用いられていた年代を、建材は建造物の建築年代に近い年代を期待することができる。しかし、一方ではそれらの原木がより古い年代のものであった可能性も心に留めておく必要がある。

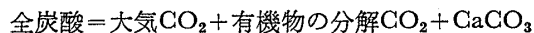
動物質試料……人骨や獣骨に含まれるコラーゲンが用いられる。これは、前に述べた如く、従来の ^{14}C 測定法では必要量の試料を回収することが難しい。しかし、コラーゲンの ^{14}C 年代は、その人間や動物が実際に活動していた年代を与える点で重要な意味を持つ。

貝殻……我が国の遺跡でよくみられる貝殻は、考古学でよく用いられる。前にも述べたように、海水性の貝は実際の年代を与えるが、淡水性の貝は一般的に可成り古い年代を示すことに留意すべきである。

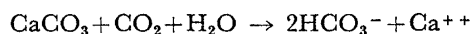
(iii) 地球化学的試料

地下水や海洋水の年令を知るのに用いられる。実際には、これら天然水の全炭酸($\text{CO}_2 + \text{HCO}_3^- + \text{CO}_3^{2-}$)の ^{14}C 濃度から得られた年代には複雑な意味を含んでいる。

地下水の全炭酸は大気 CO_2 の寄与以外に、地表近くの堆積有機物の分解で供給された CO_2 が地層中の CaCO_3 を溶解したものが大きく寄与している。従って、地下水の全炭酸の供給源は



となる。すなわち、有機物や CaCO_3 の年代不明の ^{14}C が付加されている。そこで、有機物からの CO_2 の ^{14}C 濃度を当時の大気 CO_2 と同じ modern carbon, CaCO_3 を年代の古い dead carbon と仮定する。そして、 CaCO_3 の溶解は



のように $\text{CaCO}_3 : \text{CO}_2 = 1 : 1$ で進行し、大気 CO_2 の寄与を無視して地下水の年代を求めることができる。また他の一つの方法として、大気 CO_2 の寄与が無視できる程炭酸イオン濃度の高い地下水について、全炭酸の $\delta^{13}\text{C}$ 値($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$)を測定して、 CaCO_3 起源と有機物分解 CO_2 の寄与の割合を求め、年代を算出する方法がある。この場合、 CaCO_3 の $\delta^{13}\text{C}$ 値を 0‰(PDB), 有

機物分解に由来する CO_2 のそれを -25% (PDB) と仮定しなければならない。

以上のように、地下水の年令推算には不確実性の高い仮定が多い。しかし、上のような方法で、同一滞水層に関して相対的な年代差の比較、最終氷期の降水起源が完新世の降水起源の地下水かを区別することは可能であろう。

海洋水の全炭酸から求められた年代も厳密に言えば、単純なものではない。modern carbon である大気 CO_2 は表面水に供給され、深部海水程 ^{14}C 濃度が低くなるが、異なる水塊の混合や海底の堆積有機物の分解による CO_2 の付加などによって ^{14}C 濃度は変化する。しかし、全炭酸の ^{13}C 濃度も測定することにより、 ^{14}C 濃度から海水の動きを把握することが可能である。

2-3. 加速器質量分析法の開発とその利点

従来、放射性炭素に限らず放射性核種の定量には、放射壊変で放出される放射線を計数する方法が用いられてきた。この間接的な方法に対して、直接核種を計数する加速器質量分析 (AMS) の技術が開発された (中井, 1979; 中井・中村, 1983; 中井・中村, 1984; NAKAI *et al.*, 1984; NAKAMURA *et al.*, 1985)。そして、1977 年以来天然レベルの ^{14}C , ^{10}Be , ^{36}Cl 等の測定の実用化が進められてきた。放射性核種の定量技術の革命ともいべきこの技術に世界的な関心が昂まり、1978 年に第 1 回国際会議が開かれて以来 3 年毎に会議を重ねてきた。そして、1987 年のカナダ Niagara on the Lake で開かれた第 4 回国際会議では、AMS 技術の多学問分野への応用面についての議論が主題となった。このように、約 10 年間の発展の道を経て実用化が実現した。

前章で紹介されたように、AMS による ^{14}C の測定の利点は次の如くである。

- (1) 測定試料は炭素として 5 mg 以下で充分である。0.1 mg で測定可能であるとする報告もある。
- (2) 測定時間が短かく、5 時間以下である。測定法によっては 1.5 時間という報告もある。
- (3) 少量試料の短時間測定でも、測定誤差は $\pm 1\%$ 以下である。
- (4) ^{14}C 年代の測定可能限界は 60,000 年 BP である。

以上の利点の中で、特に (1) の少量試料による測定が地質学・地球化学・考古学等に大きく貢献している。その主な応用について述べることにする。

樹木・木炭・貝の小片……堆積物・氷床・遺跡等から出る木片、貝の破片、植物繊維でさえも年代測定値が得られる。堆積物コアの場合でも詳細な年代尺度が作ら

れ、また、堆積速度の詳細な変化も知ることができる (NAKAI *et al.*, 1987)。また、貝化石でも同一層準の 1 個体毎に ^{14}C 年代が得られ、化石貝群集の同時性、非同時性の問題に有用なデータとなるであろう。

遺跡から発掘された絵画や木像等の貴重な試料でも、それらの極く一部を使用するだけで年代が決められる。さらに、鉄器や焼物でも ^{14}C 年代測定に供するだけの少量の炭化物を含んでいる。

堆積物コアの微化石 (有孔虫) ……微化石である有孔虫の CaCO_3 殻を種別に年代測定することが可能になった。すなわち、planktonic と benthic の年代差は勿論のこと、種別に有孔虫の年代と ^{18}O -paleotemperature との関係を示唆することが可能で、より厳密な気候変動の研究や堆積物の bioturbation の規模の研究が進められている (BROECKHER *et al.*, 1984; ANDREE *et al.*, 1984a; PENG *et al.*, 1979; DUPLESSY *et al.*, 1986; BARD *et al.*, 1987)。

穀類 (種子)・花粉……穀物については多くの測定例が出され、花粉に関しては ^{14}C 年代測定の可能性が検討されつつある。

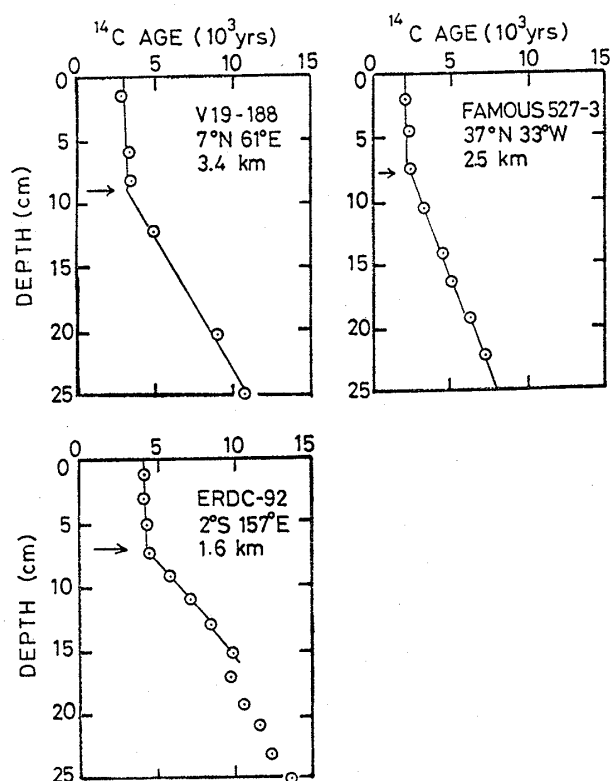
獣骨・人骨……獣骨や人骨及びそれらの歯の微量コーゲンによる ^{14}C 年代測定が容易にできるようになった。骨や歯の試料約 1 g で測定可能であり、動物や人類そのものの年代が得られるので、発掘地層の年代測定からよりも正しい年代値を求めることができる (DONAHUE *et al.*, 1984; 秋山ら, 1988)。

貝化石中の有機物……貝化石に含まれる organic matrix は保存が良いとされているので、その ^{14}C 測定も検討されている。

天然水の溶存全炭酸 (DIC) ……海洋水や地下水の全炭酸の ^{14}C 測定の意味について前に述べた。海洋水の場合でも、 β 線計数法による ^{14}C 測定では 200 l の大量試料を用いなければならなかった。しかし、AMS 法では海洋水で 0.5 l、地下水で数 l の試料があれば測定が可能である。従って、試料の採集と調製に要する時間と手数が大幅に少なくなった (中村ら, 1987a)。

天然水の溶存有機物 (DOC) ……天然水の溶存有機物に関しても、AMS 法により海水 5 l の試料で測定可能になった (WILLIAMS & DRUFFEL, 1987)。

氷床……極地の氷床には約 $50\sim 200 \text{ l/m}^3$ の氷床形成時の空気が包有物として含まれている。この空気中の CO_2 を用いて従来の β 線計数法で ^{14}C を測定するには数トンの氷が必要であった。しかし、AMS 法によって ANDREE ら (1984b) は 10 kg の氷で測定可能であることを示した。



第2図 深海堆積物の有孔虫殻による放射性炭素年代と BIOTURBATION の層厚 (NOZAKI *et al.*, 1977; PENG *et al.*, 1979).

以上, AMS 法の開発による ^{14}C 年代測定の実用範囲の拡大について述べたが, 少量試料を取扱うことから, 試料の不均一性と試料調製中の modern carbon による汚染の危険性が大きいことに注意を払わねばならない。次に, ^{14}C 年代測定の実用例を紹介することにする。

3. 海洋堆積物研究と ^{14}C 年代測定

堆積物コアに残された古環境の記録は古気候や古海水準変動の歴史を知るのによく用いられる。この場合, 堆積物の bioturbation, 堆積速度の変動等が重要な課題となる。これらの問題は, 次に述べるように詳細な年代尺度を組立てることにより解決されるであろう。

3-1. Bioturbation の規模

堆積物コアに残された記録は堆積物表層の bioturbation によって攪乱されたり, 変動幅を減少させたりする。特に深海底堆積物では, 堆積速度が遅い(数 cm/1,000 年)ため影響は大きい。そこで, 深海底堆積物の bioturbation による上下混合の程度について眺めてみることにする。

NOZAKI *et al.* (1977), PENG *et al.* (1979) 等は深海底堆積物の有孔虫による ^{14}C 年代の垂直変化を第2図のように求めた。これらの結果から, 堆積物深度が 7~8 cm

以浅では ^{14}C 年代値が一定で 3,000~4,000 年 BP, それ以深では深度と共に変化していき, 堆積速度は 2~3 cm/1,000 年となっている。これは, bioturbation による混合が 8 cm の厚さの表層堆積物におよんでいることを示す。また BERGER *et al.* (1982) は, 堆積速度と bioturbation の規模は逆相関を示すことを実証した。すなわち, 2.4~0.8 cm/1,000 年の異なる海域で上下堆積物の混合の影響は 7~16 cm の厚さにおよぶとした。

最近, AMS ^{14}C 測定による種別の有孔虫の年代を求めた詳細な bioturbation の研究も進められている。ANDREE *et al.* (1984a) は, 西太平洋の古代海水温研究に用いられた (SHACKLETON & OPDYK, 1973) V28-238 コアについて, 浮遊性有孔虫 *G. sacculifer* と *P. obliquiloculata* を分離して ^{14}C 年代を測定した。その結果は第2表の如くで, 表層の上下堆積物の混合層の厚さと ^{14}C 年代は両種でよく一致した。前者は 8 cm, 後者は約 4,700 年 BP であった。

この bioturbation による堆積物の混合程度は, 堆積物の古環境記録の分解能を左右するものであり, 古環境解析に重要な因子となる。

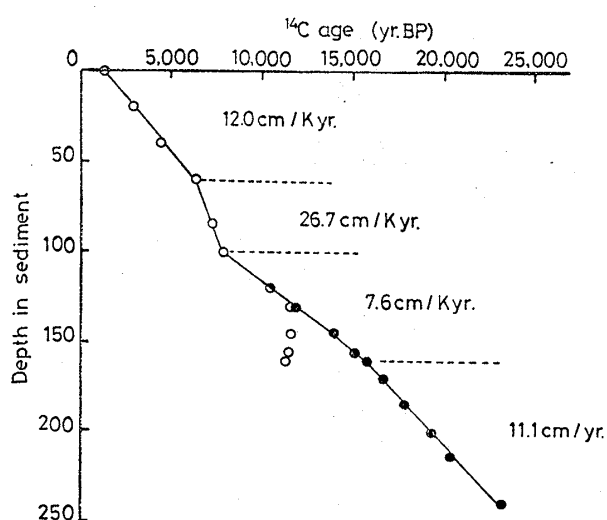
3-2. 種別有孔虫の ^{14}C 年代

AMS 技術の開発が深海底堆積物コアの有孔虫化石を種別に ^{14}C 年代測定することを可能にしたことは前にも述べた。このことは, 同種の有孔虫試料で ^{14}C 年代と $\delta^{18}\text{O}$ ($^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$, 古海水温尺度) を求めることが可能であることを意味し, bioturbation の効果を少なくすることもできる。

ANDREE *et al.* (1984a) は, 深海底の V28-238 コアを用いて, 表面から 50 cm の深さまで厚さ 2 cm 毎の堆積物から有孔虫を集めた。そして, 浮遊性有孔虫である *G. sacculifer* と *P. obliquiloculata* を別々に AMS で ^{14}C 年代を求め, さらに底棲有孔虫(混合種)についても年代を求めた(第2表)。表には $\delta^{18}\text{O}$ パターンから設定された完新世の最高温期(Peak Holocene), 完新世の初まり(Beginning of the Holocene)および最終氷期の最低温期(Ice age)の層準の年代値のみ示し, さらに有孔虫のサイズ別年代値を示した。この浮遊性有孔虫の値をみると完新世の初まり以降は両種の ^{14}C 年代はよく一致するが, 最終氷期では *G. sacculifer* ^{14}C 年代 < *P. obliquiloculata* ^{14}C 年代であった。これは前者が水に溶解し易く, 変質を受け易いためと考えられ, 後者の年代が正しいとされる。また, 底棲有孔虫では例外なく浮遊有孔虫よりも約 2,000 年古い年代が得られており, 底層海水の ^{14}C 濃度が低いことを反映している。これは, 海水の大循環の歴史を追究するのに役立つであろう。

浮遊性有孔虫			底棲有孔虫
Species		AMS ¹⁴ C年代 (yr. BP)	AMS ¹⁴ C年代 (yr. BP)
Bioturbated layer (3 ~ 8 cm depth)			
G. Sacculifer	whole shells	4,640 ± 160	mixed benthic
	fragments	4,650 ± 100	
P. Obliquiloculata	whole shells	4,760 ± 160	6,150 ± 180
	fragments	4,930 ± 230	
Peak Holocene (10~12 cm depth)			
G. Sacculifer	whole shells	5,880 ± 100	mixed benthic
P. Obliquiloculata	whole shells	6,390 ± 160	
Fraction	<25 μm	6,320 ± 60	9,530 ± 80
	25~63 μm	6,620 ± 70	
	>63 μm	6,870 ± 140	
Beginning of the Holocene (18~20 cm depth)			
G. Sacculifer	whole shells	9,730 ± 220	mixed benthic
P. Obliquiloculata	whole shells	9,300 ± 220	
Ice age			
G. Sacculifer	whole shells	17,780 ± 390	mixed benthic
P. Obliquiloculata	whole shells	19,620 ± 190	
Fraction	<25 μm	17,800 ± 160	20,650 ± 220
	25~63 μm	19,440 ± 260	

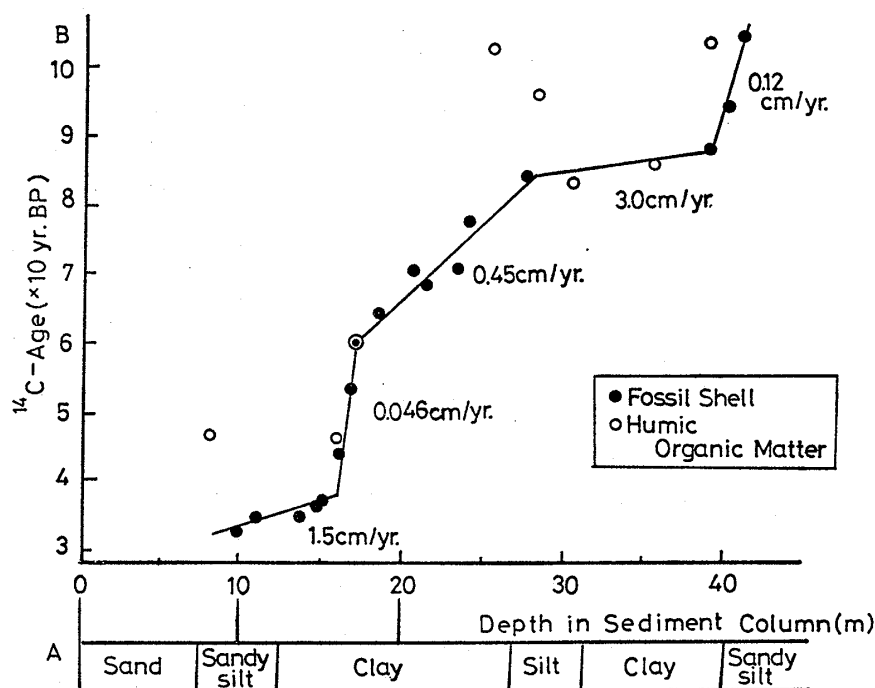
第2表 V28-238 深海底堆積物コアの有孔虫化石による¹⁴C年代
—whole shells, fragments
およびサイズ別 shells の比較 (ANDREE *et al.*, 1984).



第3図 深海底堆積物コアの種別有孔虫殻による¹⁴C年代の垂直変化と堆積速度。

● : *N. pachyderma*, ○ : *G. bulloides* (DUPLESSY *et al.*, 1986).

Duplessy *et al.* (1986), Bard *et al.* (1987) は東北大西洋 (54°38'N ; 16°21'W) の深海 (2,209 m) 堆積物コア (長さ 2.4 m) について同様の研究を行った。*N. pachyderma* (cold-water species) と *G. bulloides* (coldwater~warm-water species) を分離し、それぞれの $\delta^{18}\text{O}$ と AMS ¹⁴C 年代を測定した。そして、第3図のような¹⁴C年代の深度変化を示した。堆積物深度 160 cm 以浅で *G. bulloides* が多く、その¹⁴C年代値が得られ、130~160 cm で 11,600 年 BP の一定年代を示した。そして、110~125 cm の間では *N. pachyderma* ¹⁴C年代と一致した約 11,000 年 BP を示している。興味あることは、この年代不変の時期は *G. bulloides* が出現し始めた時で、*N. pachyderma* の数が急減し始めた時である。そして、この年代は丁度 Bölling/Alleröd 亜間氷期 complex と呼ばれる温暖期であり、その直後に Younger Dryas の寒冷期、次いで最終氷期の終末期 (Termination 1B) を迎える時期である。この¹⁴C年代不変の異常は、この年代を境にして海洋の状態に大変化が起ったのか、またそれによって bioturbation が大きく現われたのか



第4図 川崎市多摩川溺れ谷完新世堆積物コアの ^{14}C 年代の深度変化と堆積速度 (NAKAI *et al.*, 1987).

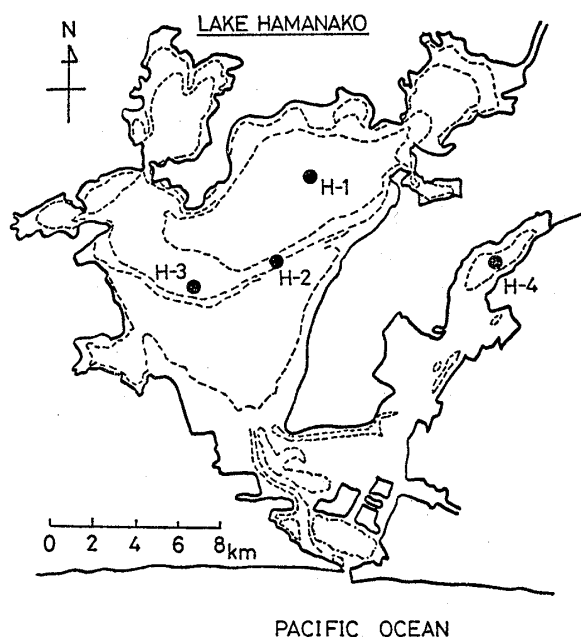
も知れない。また第3図から晩氷期～完新世の堆積速度の変化も次のように読みとれる。最終氷期の氷河最大前進期以前は 11.1cm/1,000 年, 解氷開始～氷期終末期の間は 7.6cm/1,000 年, 完新世の初期～最高温期の間は, 26.7cm/1,000 年, そして最高温期以降は 12.0cm/1,000 年であった。そして, 堆積物表面で 1,370 $\pm$ 90 年 BP の年代値が示されており, bioturbation が 16.4cm の深さまでおよんでいることを示している。

深海堆積物コアのこの種の研究は AMS 技術を用いて, 数多く進められている。近い将来の興味ある結果が期待される。

3-3. 完新世堆積物の気候(海水準)変動と ^{14}C 年代

後氷期の内湾・河口堆積物コアの堆積有機物の $\delta^{13}\text{C}$ と C/N, および pyrite 含量の垂直変化から, 古海水準及び古気候変動が追跡できる(中井ら, 1982; Nakai *et al.*, 1987)。しかし, その変動が地球規模か局所的かを判定するには, 詳細な ^{14}C 年代値から得られた正確な年代尺度が不可欠である。そこで, 川崎市の東京湾沖積堆積物コア(K-3: 45 m)および浜名湖湖底堆積物コア(H-1: 16.2 m, H-2: 31.4 m, H-3: 45 m)について AMS 法で ^{14}C 年代測定をした結果を紹介する。

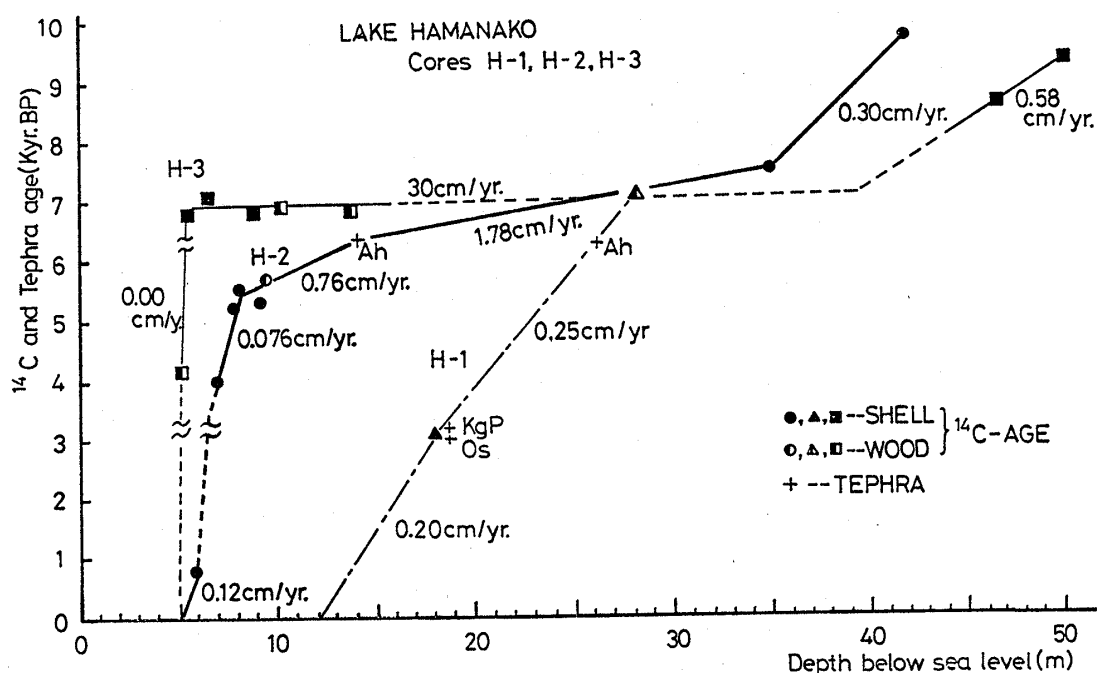
K-3 コアの海進・海退期の堆積物コアについて, 17 層準の貝化石と 8 層準のフミン質を用いて ^{14}C 年代を AMS 法で求めた。第4図の AMS ^{14}C 年代と堆積物深度の関係から, 細粒の粘土層を除いて, 常に貝年代<フミン質年代の関係があり, その差は 1,500~2,000 年に



第5図 浜名湖湖底堆積物コアの掘削点。

達する。また, 貝年代は深度と共に増加し, 各層厚毎に直接関係を示すことから, 前述の如く正しい年代を与えると考えられる。貝年代から各層厚の堆積物速度は 0.046~3.0cm/年と計算され, 2 桁近い驚くべき変動がある。そして, 最高海水準期(6,000~4,000 年 BP)に最低の堆積速度を示した。

H-1, H-2, H-3 コアは第5図に示した位置で採集され, H-1 は水深 12 m(浜名湖最深部)地点で堆積物は



第6図 浜名湖湖底堆積物コアの ^{14}C 年代及び Tephra 年代の深度変化と堆積速度。

sandy silt, H-2 と H-3 は水深 5 m で sand と sandy silt の互層で、むしろ粗粒であった。浜名湖堆積物には ^{14}C 年代測定に適した試料が少ないが、AMS 法で測定し得る限りの木片や貝破片について年代を求め、アカホヤ火山灰 (Ah), カワゴダイラ pumice (KgP), 大沢スコリヤ (Os) 等のテフラ年代も参考にした。しかし、堆積物中のフミン質は正しい年代を与えない危険性があるので、年代測定には用いなかった。H コアの ^{14}C 年代値の深度 (海水面からの深度) 変化は第6図の如くである。湖最深部の H-1 では堆積速度はほぼ一定であるが、水深の浅い砂質堆積物の H-2, H-3 では海進期に 1.78 cm/年、30 cm/年にも達しており急速な砂の堆積が進んだことを物語っている。さらに驚くべきことは H-2, 3 では、それぞれ 4,000 年 BP, 7,000 年 BP 以降の堆積物が存在しない (slumping) ことである。このことは、テフラの産状からも明らかである。

以上で得られた ^{14}C 年代尺度を用いると、堆積有機物の $\delta^{13}\text{C}$ 値 (PDB), C/N 比の変動は第7図のようになる。東京湾 K-3 と浜名湖コアでは全く同じ変動を示すので、ここでは K-3 の結果のみを示した。この図で $\delta^{13}\text{C}$ 値が大きい程、また C/N 比が小さくて 6~7 に近い程、相対的に海水準が高く、気候が温暖であった (中井ら, 1982)。従って、この図から完新世にはいて、①海水準が上昇し約 6,500 年 BP に最高海水準 (縄文最高海水準期)・最高温期 (Climatic optimum) に達し、②4,000 年 BP 頃まで大きな変化はなく、③4,000~3,500 年 BP

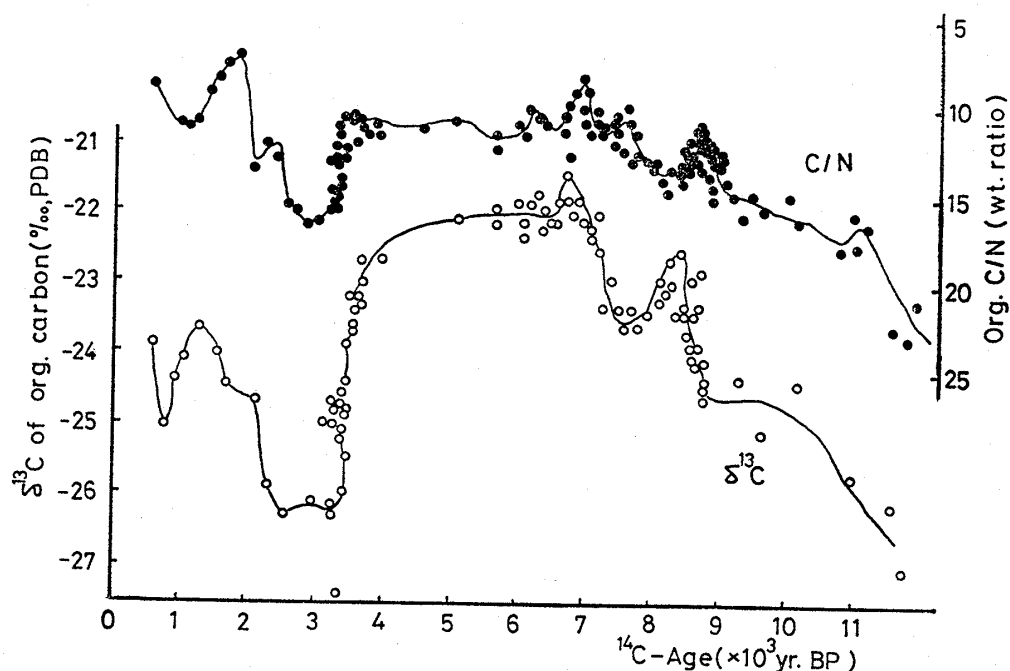
の間に急速な海退が進み、④約 1,000~1,500 年間の短かい小氷期、そして⑤再び現代に向って海水準が上昇したことが読みとれる。ここで、注目すべきことは、①の海水準上昇途上で、8,500 年 BP 頃の急上昇と 7,500 年 BP での氷河期的寒の戻りが見出されたことである。この現象は、 ^{14}C 年代の細かい測定値が得られるようになって、日本列島の堆積物で見られたものである。そして、この ^{14}C 年代は Beget (1983) が大陸氷河の活動から提唱した Mesoglaciation と一致し、BERGER (1985) の結果とも一致する。このことから、地球規模の現象と云えよう。また、④の 3,000 年 BP 前後の小氷期的気候も、第7図のパターンからみると、Neoglaciation とは規模的に異なるものであったと推測される。これが地球規模的なものであったのか否かは今後の問題であろう。

4. 有機物の ^{14}C 年代と多学問分野への応用

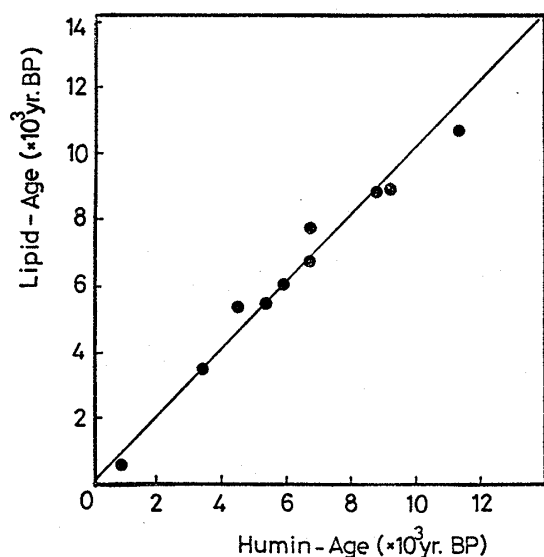
地質学的・考古学的試料の有機物による ^{14}C 年代測定は広く行われている。試料としては、堆積物や土壌中のフミン質 (humus) や脂質 (lipid), 人骨や獣骨中のコラーゲン (collagen) 等が用いられる。木材、木炭、泥炭、ユツチャ (gyttja) 等も有用な試料であることは勿論のことである。

4-1. 堆積物・土壌中の有機物

年代測定に適した試料としては、形状を有する固体炭素物質があげられることは前に述べた。SHEPPARD *et al.* (1979) は同じ層準から得られた種々の試料について ^{14}C



第7図 川崎市多摩川溺れ谷完新世堆積物コアの堆積有機物 $\delta^{13}\text{C}$ 値, C/N 比の ^{14}C 年代による変化 (NAKAI *et al.*, 1987).



第8図 堆積物・泥炭中の脂質とフミンの ^{14}C 年代の比較 (SHEPPARD *et al.*, 1979).

年代を比較し (paired-test), 固体状試料である木片, 木炭, 貝は一致した正較な年代を与えることを示している。しかし, これらの固体状試料を産しない, 腐植などの堆積物に頼らざるを得ない場合について述べることにする。

海底や湖底堆積物および土壌中のフミン質には, アルカリに可溶で酸により沈殿するフミン酸(humic acid)水溶液(酸性, アルカリ性を問わず)に可溶なフルボ酸

第3表 土壌の繰り返し加水分解処理残渣の ^{14}C 年代 (SCHARPENSEEL, 1979)

加水分解処理	^{14}C -年代 (Yr. BP)	
	試料 No. 1	試料 No. 2
第1回	2,320 ± 90	5,610 ± 80
第2回	2,530 ± 80	5,820 ± 110
第3回	2,410 ± 70	5,700 ± 100
第4回	2,340 ± 80	5,540 ± 110
第5回	2,770 ± 80	6,110 ± 90
第6回	2,560 ± 90	—
第7回	2,960 ± 80	—
第8回	3,260 ± 100	—

(fluvic acid), アルカリにも酸にも不溶のフミン(humin)が含まれている。水に可溶なフルボ酸は, 水によって上部堆積層から移動してくるため, 一般に若すぎる年代を示す。これに対して, フミンはほとんど移動しないので正確な年代を与える(3-3. で述べたように粒度の粗い堆積物の場合は注意を要する)。SHEPPARD *et al.* (1979) は, アメリカ大陸コロラド州の Twin Lake とワシントン州の Wildcat から採集したユッチャや泥炭からベンゼンまたはクロロホルムで抽出した脂質と, その抽出残留物中のフミンで測定した ^{14}C 年代値を比較した。その結果は第8図のように 10,000 年以下の年令の試料では両者は測定誤差の範囲内でよく一致している。これは, 脂質もフミンも水に不溶であるため正しい年代を示すのであろう。

SCHARPENSEEL (1979) は堆積物や土壌に含まれる二次

第4表 富山湾海底林の樹木
 ^{14}C 年代

水深 (m)	試料 No.	^{14}C 年代 (yr. BP)	コード No.
22	29-2	7,570 $\pm$ 170	NUTA-258
	29-2	7,900 $\pm$ 100	NUTA-359
	21-1	7,740 $\pm$ 130	NUTA-366
	20	7,710 $\pm$ 200	NUTA-402
	27-5	8,220 $\pm$ 90	NUTA-363
23	43-4	8,230 $\pm$ 90	NUTA-365
25	27-3, 4	8,060 $\pm$ 100	NUTA-364
27	22-1	8,270 $\pm$ 150	NUTA-258
	22-1	8,090 $\pm$ 90	NUTA-360
29	24	8,170 $\pm$ 240	NUTA-403
37	16-1	8,900 $\pm$ 200	NUTA-256
	16-5	8,620 $\pm$ 190	NUTA-261
40	17-3	8,720 $\pm$ 200	NUTA-257
	Loc. 2	8,920 $\pm$ 160	NUTA-260

NUTA: Nagoya University Tandetron Age

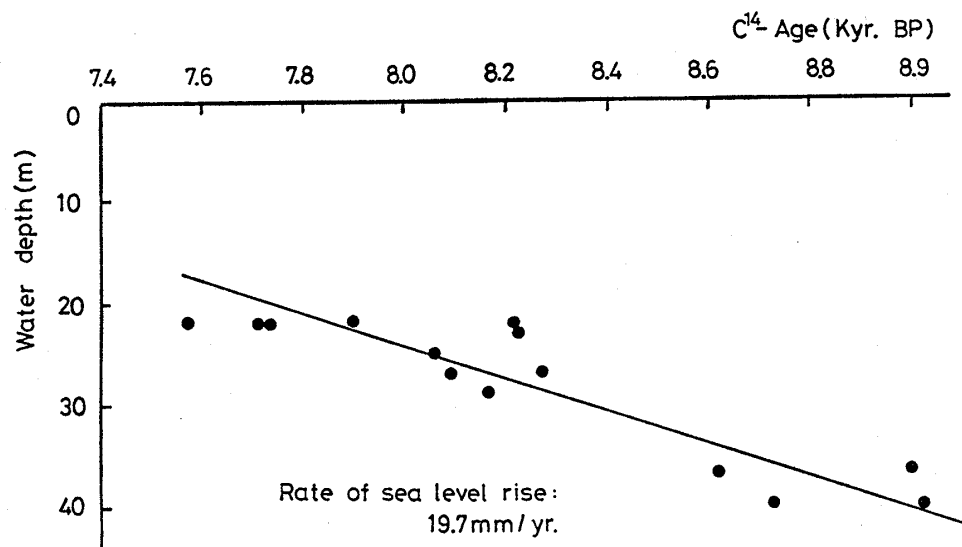
有機物を酸による加水分解により除くことができることを示した。有機物に富んだチェルノジョーム土(chernozem)を 6N-HCl で加水分解を繰り返し、可溶性になった有機物を除去した残留物の ^{14}C 年代を測定した。第3表はその結果を示したもので、塩酸による加水分解の回数を重ねるにしたがって、 ^{14}C 年代値は大きくなる傾向がみられた。このように、年代の新しい有機物による汚染を取除くには酸による加水分解法が有用である。従来は試料の前処理として、アルカリ-酸-水洗法が用いられてきたが、最近では酸加水分解-アルカリ-酸-水洗法が有効であるとされている。

上に述べたように年令の若い有機物が混入するのに対して粗粒の堆積物では古い年代の有機物汚染があることは、3-3. で述べた。第4図で示されたように、沖積層堆積物の同一層準からの貝化石 ^{14}C 年代と全有機物炭素 ^{14}C 年代を比較すると、粘土質堆積層では両者よく一致する。しかし粗粒の砂質堆積物層では有機物 ^{14}C 年代の方が常に 1,500~2,000 年古い値を示した (NAKAI *et al.*, 1987)。また、琵琶湖北湖の最深部(安曇川河口より

東へ約 10 kg, 水深 70 m) の表泥についても、全有機物炭素 ^{14}C 年代は 2,600 年 BP と古い値が得られた(中村, 1986)。この原因としては全有機物炭素による ^{14}C 年代が堆積後の bioturbation による上下混合によるか、陸上の年代の古い堆積岩の有機物の混入によるものと推察される。堆積速度から考えると、前者よりもむしろ後者が原因と思われる。AMS ^{14}C 測定技術により、近い将来堆積有機物の中から年代測定に適する成分が見出されるであろう。

4-2. 海底林の ^{14}C 年代と古海水準

1981 年に富山湾の海底から樹林の試料が採集された。これらの試料は現在的水深 22 m から 40 m の間で、水深の異なる 7 ヶ所から引上げられ、 ^{14}C 年代が測定された。名古屋大学アイソトープ総合センターの加速器質量分析計で測定した年代は第4表の如くであった(小西ら, 1987)。 ^{14}C 年代値は 8,920 年 BP (水深 40 m の平均値) から 7,570 年 BP (水深 22 m の平均値) の間で、第9図の如く水深と共に変化している。この ^{14}C 年代値から最終氷期終末後の完新世初期から中期にかけての海



第9図 黒部川扇状地入善沖海底林の ^{14}C 年代の水深による変化(小西ら, 1987).

炭素化合物	AMS ^{14}C -年代 (yr. BP)
獣骨発掘同一層準からの木片	11,450 ± 320
マンモス獣骨の抽出物	
α-オキシ酸	11,350 ± 340
XAD-精製ハイドロシレイト	11,450 ± 350
酢酸処理した全骨	10,950 ± 450
XAD-精製ゼラチン	10,850 ± 400
0.6N-HCl不溶性全有機物	10,800 ± 300
イミノ酸	10,500 ± 350
ゼラチン	10,450 ± 400
0.6N-HCl可溶性全有機物	9,500 ± 400
酢酸処理で生成する CO_2	9,350 ± 320
全骨の燃焼による CO_2	8,000 ± 450
炭酸塩	7,250 ± 320
フルボ酸	5,100 ± 200

第5表 獣骨 (mammoth bone) の各種炭素化合物の ^{14}C -年代 (DONAHUE *et al.*, 1984)

水面上昇期の樹木であることがわかる。そして、測定試料のほとんどがハシノキ (*Alnus japonica*) で、水深 22 m の試料 No. 21-1 のみがヤナギ (*Salix sp.*) であった。何れの試料も汀線に近い水湿低地で生育していた可能性の高いものである。従って、第9図の海底樹木採集深度による ^{14}C 年代の変化から、海面上昇平均速度を計算することができる。その結果は 19.7 mm/年となった。

4-3. 象化石の ^{14}C 年代

獣骨や歯の中に含まれる硬タンパク質であるコラーゲンの ^{14}C 濃度から年代を求めることができる。獣骨、人骨や歯には数%のコラーゲンが含まれており、特に歯の中の有機物は保存が良く汚染が少ないとされている。また、近年の AMS 測定技術の実用化にともない、少

量の試料で年代が容易に求められるようになった。

AMS による ^{14}C 測定技術を用いて、DONAHUE *et al.* (1984) はマンモスの化石骨に含まれる各種の有機・無機化合物を分離し、それぞれの ^{14}C 年代を測定した。アメリカ大陸のオクラホマ州の Demebo で発掘された Demebo mammoth の骨について、9種の有機物、2種の無機物、1種の有機・無機混合物の各 fraction の ^{14}C 年代と発掘同一層準の木材の ^{14}C 年代を測定し、第5表の結果を示した。同一地層の木は約 11,000 年 BP であった。マンモス骨の ^{14}C 年代を眺めてみると、表の上部の5つの抽出有機物から得られた ^{14}C 年代値は木材の ^{14}C 年代値とよく一致していることがわかる。一方、残りの下部7種の抽出物による年代は 1,000 年以上新し

第6表 象の牙化石のコラーゲンによる ^{14}C 年代

試料	採集水深 (m)	^{14}C 年代 (yr. BP)	コード No.
山陰沖海底 ナウマンゾウ (農林魚区 旧 207番) ¹⁾ (38°30' N, 132°5' E) ²⁾ (35°30' 59" N 130°58' 43" E) ³⁾	250 176 166	29,000± 300 38,500± 600 35,560±1,300	NUTA-477 NUTA-478 GaK-12898
レニングラード博物館 マンモス 試料	—	24,260±270	NUTA-504
出所不明 マンモス	—	$\delta^{14}\text{C} = +47.7$ $\pm 1.6 \%$	NUTA-480

1), 2) : 秋山・亀井・中井 (1988)

3) : 星見・森岡 (1987)

い値を示し、特に炭酸塩や水に可溶性のフルボ酸は約5,000年も若い値を与えた。炭酸塩はより新しい年代の炭酸と同位体交換を、後者のフルボ酸はより新しい上部地層からの混入があることを示している。同じ地層の材木の年代が正しいとすると、コラーゲンに近い性質をもつ精製ゼラチン、0.6N-HClに不溶な有機物、酢酸処理した残留物などが正しい年代を与えるといえよう。このような詳細な炭素化合物別の ^{14}C 年代測定の検討は、AMS による測定技術の導入により初めて可能になったもので、その成果が大いに期待される。

日本列島にも、長鼻目エレファンス属に属するナウマンゾウ (*Elephas naumanni*) の化石が見出される。黄海・中国大陸北部と東北部・朝鮮海峡や対馬海峡にも分布し、日本列島における棲息年代を知ることは大陸との動物の交流を明らかにする上でも重要である。ナウマン象化石そのものの年代を求めることが、それらの棲息年代を知る最も直接的な方法である。そして、AMS 技術がそれをより容易にしたといえよう。そこで、近年山陰の日御崎沖の海底から引揚げられたナウマンゾウの切歯から抽出されたコラーゲンによる ^{14}C 年代測定値を紹介する。第6表に ^{14}C 年代値を示したが、NUTA のコード No. で示した値は名古屋大学の AMS により測定した年代(秋山ほか, 1988), GaK は学習院大学年代測定実験室で β -線計数法で測定した値(星見・森岡, 1987), である。これら山陰沖海底のナウマンゾウの年代は

30,000~40,000 年 BP の Würm 氷期最盛期より少し古い同氷期の海水準低下時期の頃のものであることがわかる。また、レニングラード博物館のマンモス試料および産地不明のマンモス試料の測定もおこなった。これらの中で、産地不明 マンモスの ^{14}C 測定値は $\delta^{14}\text{C} = +47.7\text{‰}$ となり、現代の大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の約 1.5 倍の濃度を示した。これは明らかに化石ではなくて、1964 年前後の核爆発実験の影響を受けた頃の ^{14}C 濃度 (NAKAI *et al.*, 1984; 中村ほか, 1987b) であることが示された。

以上のように、埋没地層の年代でなく象化石そのものの年代を求めることに意味がある。そして、近い将来 AMS による ^{14}C 年代値が得られ興味ある議論が展開されるであろう。

4-4. 人骨コラーゲンと農作物の年代

考古学分野における遺跡の年代測定試料として、炉あとの炭化木、貝殻、人骨などが広く用いられている。これらの中で、人骨に含まれる有機物による年代測定が最も直接的で、しかも正しい年代を示すと考えられる。そして、その有機微量成分であるアスパラギン酸の光学的性質から年代を決めるラセミ化法が提案されたことがある。しかし、このラセミ化法はラセミ化の半減期の温度依存性などの不確定要素が多いため、不正確な年代を与える。近年、AMS 技術を用いて人骨のコラーゲンの ^{14}C 年代測定が可能になってきた (TAYLOR *et al.* (1983))

第7表 人骨 (Yuha 遺跡) の炭素化合物の加速器 ^{14}C 年代 (STAFFORD *et al.*, 1984)

分割成分	Yuha I ¹⁾	Yuha II ²⁾	Yuha III ³⁾
0.3N-HCl不溶性有機物	3,850 $\pm$ 250		
0.3N-HCl可溶性有機物	1,650 $\pm$ 250		2,820 $\pm$ 200
全無機炭素化合物	2,400 $\pm$ 300	2,650 $\pm$ 200	2,700 $\pm$ 200
骨表面の薄層 CaCO_3	2,800 $\pm$ 250		

1) The Imperial Valley College Museum, El Centro, California 保存試料

2) The Department of Anthropology, University of California, Riverside, California 保存試料

3) USGS, Menlo Park, California 保存試料

発掘場所	^{14}C 年代 (yr. BP)	発掘場所	^{14}C 年代 (yr. BP)
Yuha	3,850 $\pm$ 250	La Jolla	5,600 $\pm$ 400
Stanford	4,830 $\pm$ 150 4,950 $\pm$ 130	Sunnyvale	6,300 $\pm$ 400
Laguna	5,100 $\pm$ 500	Del Mar	5,400 $\pm$ 120

第8表 California 州の paleoindian 人骨の ^{14}C 年代 (BADA *et al.*, 1984; STAFFORD *et al.*, 1984)

はラセミ化法で 70,000 年 BP とされていたカリフォルニア州 Sunnyvale の人骨を用いて、初めて AMS による ^{14}C 年代測定値を報告した。その ^{14}C 年代は 3,500 ~ 5,000 年 BP で、ラセミ化法にくらべ1桁以上若い年代であった。STAFFORD *et al.* (1984) は、より正確な人骨年代を得るためにカリフォルニア州の Yuha 遺跡の人骨について、炭素化合物を幾つかの fraction に分けて AMS により ^{14}C 年代を測定した。そして第7表の如く、0.3N-HCl に不溶性の有機物が最も正しい ^{14}C 年代を与えるとした。

人骨 ^{14}C 年代測定の基礎的な研究に続いて、BADA *et al.* (1984) は、カリフォルニア州の各地のパレオインディアン遺跡から発掘された人骨のコラーゲンを用いて、 ^{14}C 年代を AMS 法で測定した。その結果は第8表に示されるように、3,500 ~ 7,000 年 BP であった。このパレオインディアン人骨の年代は、人骨が発掘された土壌の ^{14}C 年代やラセミ化法による年代よりも可成り新しいことが明らかになった。従来はモンゴロイドがユーラシア大陸から新大陸であるアメリカ大陸へ初めて移動したのは、最終氷期の低海水準期で陸化したベーリング海

峡を渡ったとされていた。しかし、モンゴロイドがパレオインディアンの祖先であったとすると、人骨の ^{14}C 年代値からみて新大陸への移動は完新世のむしろ海水面の高かった時期であったと考えてもよいことになる。この研究分野における数多くの ^{14}C 年代値が期待されている。

次に、人類が狩猟生活から農耕による食生活を始めた年代を求めた例を紹介する。イリノイ州のパレオインディアン遺跡から発掘されたカボチャの皮とトウモロコシの AMS 法による ^{14}C 年代測定の結果は第9表のようになった (CONARD *et al.*, 1984)。表にみられるように、カボチャは 4,000 ~ 7,000 年 BP、トウモロコシは 1,500 年 BP より新しい年代を示した。DONAHUE *et al.* (1984) も、トウモロコシについては 2,500 年 BP より古い年代のものは見つからなかったと報告している。

5. 氷床の ^{14}C 年代測定

極地の氷床には過去の降雪が保存されている。これらの氷床コアの $\delta^{18}\text{O}$, δD の垂直変動から古気候変動のパターンを推察する研究 (DANSGAARD *et al.*, 1969a, b) や氷

作物	発掘場所	^{14}C -年代 (yr. BP)	第9表 Illinois 州の paleoindian 耕作物の ^{14}C 年代 (CONARD <i>et al.</i> , 1984)
カボチャの皮 (Squash skin)	Koster	7,100 $\pm$ 300	
	Napoleon Hollow	7,000 $\pm$ 250	
	Lagoon	4,300 $\pm$ 600	
トウモロコシ (Maize)	Koster	250 $\pm$ 300 600 $\pm$ 400	
	Jasper Newman	450 $\pm$ 500	
	Napoleon Hollow	0 $\pm$ 300	
	Crane	1,450 $\pm$ 350	

試料番号	No. 81	No. 83	第10表 グリーンランド Dye 3 氷床コア試料の AMS- ^{14}C 年代測定 と他の方法による年代値の比較 (ANDREE <i>et al.</i> , 1984)
深度	1691.82 ~ 1703.87m	1725.95 ~ 1738.55m	
使用した氷	10.2 Kg	11.2 Kg	
AMS- ^{14}C 年代	7640 $\pm$ 660 yr. BP	9115 $\pm$ 650 yr. BP	
他の方法による年代			
方法(1)	8304 $\pm$ 50 yr. BP	9019 $\pm$ 50 yr. BP	
方法(2)	8132 yr. BP	9362 yr. BP	

方法(1) : "Ice flow model"から推算

方法(2) : 氷の $\delta^{18}\text{O}$ の季節変動パターンの計数

河活動の推移の研究が行われてきた。そして、これらの氷床コアの研究に絶対年代の尺度を得るための努力が続けられてきた。その一つに氷の中に気泡として閉じ込められている過去の大気 CO_2 の ^{14}C 年代測定がある。HEMMINGSSEN (1959), COACHMAN *et al.* (1958), OESCHGER *et al.* (1966, 1967, 1976) は数トンの氷から抽出した CO_2 を比例計数管による β 線計数法で測定を試みた。多量の氷を処理することは実用的ではないし、氷床コアの場合は多量の氷を用いることは不可能である。

近年開発された AMS による ^{14}C 測定法が、氷の年代測定を可能にした。ANDREE *et al.* (1984b) は南グリーンランドの Dye 3 で掘削された氷床コア (全長 2,037m) を用いて、AMS 法で ^{14}C 年代測定を行った。第 10 表にその結果の概略を示したように、10 kg の氷から CO_2 を抽出して年代測定した。現在のところ、約 10,000 年

BP までは正しい年代が得られるとされている。将来、 CO_2 抽出過程における汚染を少なくすることによって、より少量の試料でより古い年代までの測定が期待されている。

氷床の絶対年代を知る他の方法に宇宙線生成核種である ^{10}Be (半減期 $= 1.5 \times 10^6$ 年) による方法がある。この氷の中の ^{10}Be も従来の β 線計数による場合は、多量の氷を必要とする。McCORKELL *et al.* (1967) は 1.2 $\times$ 10% の融氷水を使用した。この ^{10}Be の測定も AMS 測定法により実用化され、RAISBECK *et al.* (1978) は東南極の Dome C で採取された氷床コア試料を用いて、10l の試料による ^{10}Be 年代測定に成功した。このように、氷床コアの年代も 10 kg の試料で測定できる時代になった。

6. 結 語

放射性炭素法による年代値の意味と年代測定に関する諸問題と応用について述べてきた。放射性炭素の測定には年代測定と tracer としての2面の応用がある。本稿では、その前者を主に解説したが、後者については引用文献を参照して頂きたい。また、加速器質量分析法も実用化の段階にはいっており、少量試料による測定から多くの学問分野における新事実が究明されるであろう。この新測定技術は年代測定に適する試料の選択という基礎的な研究の面でも有用であり、今後の研究成果が学問分野に貢献するであろう。

引 用 文 献

- 秋山雅彦・亀井節夫・中井信之, 1988: 加速器質量分析計による山陰沖海底産ナウマンゾウの ^{14}C 年代——日本の第四紀層の ^{14}C 年代. 地球科学, **42**(1), 29-31.
- ANDREE, M., BEER, J., OESCHGER, H., BROECKER, W., MIX, A., RAGANO, N., O'HARA, H., BONANI, G., HOFMANN, H. J., MORENZONI, E., NESSI, M. and WÖFLI, W., 1984a: ^{14}C measurements on foraminifera of deep sea core V28-238 and their preliminary interpretation. *Nucl. Instr. and Meth.*, **233**(B5), 340-345.
- , MOOR, E., BEER, J., OESCHGER, H., STAUFFER, B., BONANI, G., HOFMANN, H. J., MORENZONI, E., NESSI, M., SUTER, M. and WÖFLI, W., 1984b: ^{14}C dating of polar ice. *Ibid.*, **233**(B5), 385-388.
- BADA, J. L., GILLESPIE, R., GOWLETT, J. A. J. and HEDGES, R. E. M., 1984: Accelerator mass spectrometry radiocarbon ages of amino acid extracts from Californian palaeoindian skeletons. *Nature*, **312**, 442-444.
- BARD, E., ARNOLD, M., DUPRAT, J., MOYES, J. and DUPLESSY, J.-C., 1987: Reconstruction of the last deglaciation: Deconvolved records of $\delta^{18}\text{O}$ profiles, micropaleontological variations and accelerator mass spectrometric ^{14}C dating. *Climate Dynamics*, **1**, 101-112.
- BEGET, J. E., 1983: Radiocarbon-dated evidence of worldwide early Holocene climate change. *Geology*, **11**, 389-393.
- BENTLEY, H. W., PHILLIPS, F. M. and DAVIS, S. N., 1986: Chlorine-36 in the terrestrial environment. *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry* (Ed. by FRITZ, P. and FONTES, J. Ch.), Elsevier, 427-480.
- BERGER, W. H. and KILLINGLEY, 1982: Box core from the equatorial Pacific: ^{14}C sedimentation rates and benthic mixing. *Marine Geol.*, **45**, 93-125.
- , KILLINGLEY, J. S., METZLER, C. V. and VINCENT, E., 1985: Two-step deglaciation: ^{14}C -dated high-resolution $\delta^{18}\text{O}$ records from the tropical Atlantic Ocean. *Quat. Res.*, **23**, 258-271.
- BROECKER, W., MIX, A., ANDREE, M. and OESCHGER, H., 1984: Radiocarbon measurements on coexisting benthic and planktonic foraminifera shells: Potential for reconstructing ocean ventilation times over the past 20000 years. *Nucl. Instr. Meth.*, **233**(5B), 331-339.
- CAIN, W. F. and SUSS, H. E., 1976: Carbon 14 in tree rings. *J. Geophys. Res.*, **81**, 3688-3694.
- COACHMAN, L. K., ENNS, T. and SCHOLANDER, P. F., 1958: Gas loss from a temperate glacier. *Tellus*, **10**, 393-395.
- CONARD, N., ASCH, D. L., ASCH, N. B., ELMORE, D., GOVE, H., RUBIN, M., BROWN, J. A., WIAIT, M. D., FARNSWORTH, K. B., and COOK, T. G., 1984: Accelerator radiocarbon dating of evidence for prehistoric horticulture in Illinois. *Nature*, **308**, 443-446.
- DANSGAARD, W., JOHNSON, S. J., MÖLLER, J. and LANGWAY, C. C., 1969a: One thousand centuries of climatic record from Camp Century on the Greenland ice sheet. *Science*, **166**, 377-381.
- and TAUBER, H., 1969b: Glacier oxygen-18 content and Pleistocene ocean temperatures. *Ibid.*, **166**, 499-502.
- DONAHUE, D. J., JULL, A. J. T. and ZABEL, T. H., 1984: Results of radioisotope measurements at the NSF-University of Arizona Tandem Accelerator Mass Spectrometer facility. *Nucl. Instr. and Meth.*, **233**(B), 162-166.
- DUPLESSY, J.-C., ARNOLD, M., MAURICE, P., BARD, E., DUPRAT, J. and MOYES, J., 1986: Direct dating of the last deglaciation by ^{14}C accelerator mass spectrometry. *Nature*, **320**, 350-352.
- 浜田達二, 1981: 遺跡の年代を測る——炭素 14 と年輪年代. 学考古学のための化学 10 章(馬淵久夫・富永健編), 東京大学出版会, 69-90.
- HEMMINGSEN, E., 1959: Permeation of gases through ice. *Tellus*, **11**, 355-359.
- 星見清晴・森岡 弘, 1987: 山陰沖海底産ナウマンゾウ化石の ^{14}C 年代——日本の第四紀層の ^{14}C 年代(166). 地球科学, **41**, 248-250.
- KAMIYAMA, K., OKUDA, S. and KOYAMA, M., 1982: Vertical distribution of ^{137}Cs and its accumulation rate in lake sediments. *Japn. J. Limnol.*, **43**, 35-38.
- KIGOSHI, K. and HASEGAWA, H., 1966: Secular variation of atmospheric radiocarbon concentration and its dependence on geomagnetism. *J. Geophys. Res.*, **71**, 1065-1071.
- 木越邦彦, 1976: 同位体・年代測定. 新実験化学講座——宇宙地球化学, 丸善, 337-352.
- 小西健二・中井信之・中村俊夫・藤井昭二, 1987: 海底林の年代. 「海底林——黒部川扇状地入善沖の海底林を中心として」(藤井昭二・那須紀幸編)東京大学出版

- 会. 78-82.
- MCCORKELL, R., FIREMAN, E. L. and LANGWAY, C. C., 1967 : Aluminum-26 and Beryllium-10 in Greenland ice. *Science*, **158**, 1690-1692.
- MEHRINGER, P. J., Jr. and WARREN, C. N., 1976 : Marsh, dune and archaeological chronology, Ash Meadows, Amargosa Desert, Nevada. In *Nevada Archaeol. Res.*, No. 6 (Ed. by University of Nevada), 120-150.
- 中井信之, 1979 : 加速器による放射性同位体分析法の最近の進歩. *Radioisotopes*, **28**, 780-788.
- ・太田友子・藤沢 寛・吉田正夫, 1982 : 堆積物コアの炭素同位体比, C/N 比および FeS₂ 含有量からみた名古屋港周辺の古気候, 古海水準変動. 第四紀研究, **21**, 169-177.
- ・中村俊夫. 1983 : 加速器質量分析による放射性同位体の定量と年代測定. *Radioisotopes*, **32**, 645-655.
- ・———, 1984 : 加速器質量分析による天然レベル ¹⁴C 測定. 質量分析, **32**, 211-219.
- NAKAI, N., NAKAMURA, T., KIMURA, M., SAKASE, T., SATO, S. and SAKAI, A., 1984 : Accelerator mass spectrometry of ¹⁴C at Nagoya University. *Nucl. Instr. and Meth.*, **233**(B5), 171-174.
- 中井信之, 1986 : 地下水研究への同位体の利用. 地学雑誌, **95**, 455-462.
- NAKAI, N., NAKAMURA, T., OHISHI, S. and KURIYAMA, T., 1987 : Application of ¹⁴C -dating to sedimentary geology and climatology : Sea-level and climate change during the Holocene. *Nucl. Instr. and Meth.*, **B 29**, 228-231.
- NAKAMURA, T., NAKAI, T., SAKASE, T., KIMURA, M., OHISHI, S., TANIGUCHI, M., and YOSHIOKA, S., 1985 : Direct detection of radiocarbon using accelerator techniques and its application to age measurements. *Japn. J. Appl. Phys.*, **24**, 1716-1723.
- 中村俊夫・中井信之・木村雅也・小島貞男・前田広人, 1986 : 琵琶湖底堆積物中の放射性核種の分布. 堆積学研究会報 No. 25, 1-14.
- ・———・小野田伸一・坪田博行, 1987 a : 1968—1969 年における 太平洋海水中的 放射性炭素濃度分布. 日本地球化学会 1987 年会講演要旨集, 46.
- ・———・木村雅也・大石昭二・服部芳明・木方洋二, 1987b : 樹木年輪(1945-1983)の ¹⁴C 濃度変動. 地球化学, **21**, 7-12.
- 日本アイソトープ協会, 1986 : 考古学の年代を解き明かす. *Isotope News*, No. 379, 2-11.
- NOZAKI, Y., COCHRAN, J. K., TUREKIAN, K. K. KELLER, G., 1977 : Radiocarbon and ²¹⁰Pb distribution in submersible-taken deep-sea cores from submersible-submersible-taken deep-sea cores from Project Famous. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **34**, 167-173.
- NYDAL, R., 1968 : Further investigation on the transfer of radiocarbon in nature. *J. Geophys. Res.*, **73**, 3617-3635.
- and LÖVSETH, K., 1983 : Tracing bomb ¹⁴C in the atmosphere 1962-1980. *Ibid.*, **88**, 3621-3642.
- O'BRIEN, K., 1979 : Secular variations in the earth's atmosphere. *Ibid.*, **84**, 423-431.
- OESCHGER, H., ALDER, B., LOOSLI, H., LANGWAY, C. C., Jr. and RENAUD, A., 1966 : Radiocarbon dating of ice. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **1**, 49-54.
- , ALDER, B. and LANGWAY, C. C., 1967 : Instruments and methods-an in situ gas-extraction system to radiocarbon date glacier ice. *J. GLACIOL.*, **6**, 939-942.
- , H., STAUFFER, B., BUCHER, P. and MOELL, M., 1976 : Instruments and methods -Extraction of trace components from large quantities of ice in bore holes. *J. Glaciol.*, **17**, 117-128.
- PENG, T. -H BROECKER, W. S. and BERGER, W. H., 1979 : Rates of benthic mixing in deep-sea sediment as determined by radiocative tracers. *Quat. Res.*, **11**, 141-149.
- RAISBECK, G. M., YIOU, F., FRUNEAU, M., LIEUVIN, M. and LOISEAUX, J. M., 1978 : Measurement of ¹⁰Be in 1,000- and 5,000-year-old Antarctic ice. *Nature*, **275**, 731-733.
- SHACKLETON, N. J. and OPDYKE, N. D., 1973 : Oxygen isotope and paleomagnetic stratigraphy of equatorial Pacific core V28-238 : Oxygen isotope temperatures and ice volumes on a 10⁵ year and 10⁶ year scale. *Quat. Res.*, **3**, 39-55.
- SCHARPENSEEL, H. W., 1979 : Soil fraction dating. In *Radiocarbon Dating* (Ed. by BERGER, R. and SUSS, H. E.), University of California Press, Berkeley, Los Angeles, London, 277-283.
- SHELL, W. R. and BARNES, R. S., 1986 : Environmental isotope and anthropogenic tracers of recent lake sedimentation. *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry* (Ed. by FRITZ, P. and FONTES, J. Ch.), Elsevier, 169-206.
- SHEPPARD, J. C., ALI, S. Y. and MEHRINGER, P. J. Jr., 1979 : Radiocarbon Dating of organic compounds of sediments and peats. In *Radiocarbon Dating* (Ed. by BERGER, R. and SUSS, H. E.), University of California Press, Berkeley, Los Angeles, London, 284-305.
- STAFFORD, T. W., Jr., JULL, A. J. T., ZABEL, T. H., DONAHUE, D. J., DUHAMEL, R. C., BRENDEN, K., HAYNES, C. V., Jr., BISCHOFF, J. L., PAYEN, L. A. and TAYLOR, R. E., 1984 : Holocene age of the Yuha burial : direct radiocarbon determinations by accelerator mass spectrometry. *Nature*, **308**, 446-447.
- STERNBERG, R. S., and DAMON, P. E., 1979 : Sensitivity of radiocarbon fluctuations and inventory to geomagnetic and reservoir parameters. In *Radiocarbon Dating* (Ed. by BERGER, R. and SUSS, H. E.), University of California Press, Berkeley, Los Angeles, London, 305-311.

- H. E.), University of California Press, Berkeley, Los Angeles, London, 691-717.
- TAYLOR, R. E., PAYEN, L. A., GEROW, B., DONAHUE, D. J., ZABEL,, T. H., JULL, A. J. T. and DAMON, P. E., (1983) : Middle Holocene age of the Sunnyside human skeleton . *Science*, **220**, 1271-1273.
- 富樫茂子・松本英二, 1983 : ペンゼン-液体シンチレーションによる ^{14}C 年代測定法. 地調月報, **34**, 513-527.
- WILLIAMS, P. M. and DRUFFEL, E. R. M., 1987 : Radiocarbon in dissolved organic carbon in the Central North Pacific Ocean. *Nature* [in press].
- ZUBER, A., 1986 : Mathematical models for the interpretation of environmental radioisotopes in ground water systems. Handbook of Environmental Isotope Geochemistry (Ed. by FRITZ, P. and FONTES, J. Ch.), Elsevier, 1-59.
-