

# $^{14}\text{C}$ 年代測定の法医学的利用

中村俊夫・太田友子・浅田梨詠・丹生越子

名古屋大学年代測定総合研究センター

## 1. はじめに

歴史の研究においては、本物の資料を用いて研究を進める必要がある。偽物をいくら調査しても、決して資料への理解が深まるはずはない。ところが、昨今、科学技術の進歩により、複製の技術が長足の進歩を遂げた。見た目には、本物と偽物が区別できないことはいくらでもある。そこで、年代測定が一役買う。 $^{14}\text{C}$  年代測定法は古文化財の年代測定に用いられるが、本来、それは古文化財が成立した年代を知ることにより、歴史上の発展を捉えるためである。しかし、 $^{14}\text{C}$  年代測定は古文化財資料の真贋を判定する材料になる。

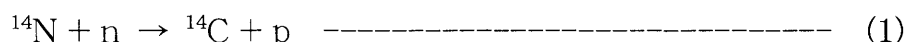
名古屋大学では、これまでさまざまな考古学・地質学試料の高精度年代測定を目的として  $^{14}\text{C}$  年代測定を行ってきたが、その過程において、測定した資料中に偽物を発見することがあった。数は多くないが、例えば古代中国で占卜に用いられたとされる獣骨（中村，1995）や竹簡（書道美術新聞，1996）である。資料一部を採取して  $^{14}\text{C}$  年代測定を行うといずれも現代の  $^{14}\text{C}$  濃度を示すことが判明した。このように、予想した年代と明らかにかけ離れると、贋作であると容易に判断がつく。

このような、真贋の判定は訴訟問題に巻き込まれる可能性があり、年代測定の研究者としては係わりたくないものであるが、時に避けがたい時もある。この度、人家跡から発掘されたヒトの死体について死亡年代にを推定するために、 $^{14}\text{C}$  年代測定を適用した。殺人事件に関連した資料であったが、幸い時効が成立し、訴訟問題にはならなかった。本報告では、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 $^{14}\text{C}$ による大気中二酸化炭素の $^{14}\text{C}$ 濃度変動

地球上の  $^{14}\text{C}$  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  $1\text{cm}^2$  あたり毎秒 2 個の  $^{14}\text{C}$  が作られるとされる。



一方、大気圏内の核実験において、 $^{235}\text{U}$  の核分裂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  $^{14}\text{C}$  が作られる。これを人工起源の  $^{14}\text{C}$  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  $^{14}\text{C}$  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  $\text{CO}_2$  の  $^{14}\text{C}$  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、サンゴ年輪及び生育した年のわかった松葉について  $^{14}\text{C}$  濃度を測定することにより、対流圏の二酸化炭素の  $^{14}\text{C}$  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  $^{14}\text{C}$  濃度の標準初期  $^{14}\text{C}$  濃度からのずれを、さらに標準初期  $^{14}\text{C}$  濃度で除して 1000 分率をとったものである。1000‰は、 $^{14}\text{C}$  濃度が標準初期  $^{14}\text{C}$  濃度の 2 倍であることを意味する。右の縦軸は、標準初期  $^{14}\text{C}$  濃度を 100 ‰としたときの試料の  $^{14}\text{C}$  濃度を示す。200pMC は、 $^{14}\text{C}$  濃度が標準初期  $^{14}\text{C}$  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  $^{14}\text{C}$  濃度のピークは、成層圏内で作られた  $^{14}\text{C}$  が対流圏に降下したためである。1964 年以降、対流圏内の  $^{14}\text{C}$  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。図 1 の  $^{14}\text{C}$  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、緯度依存性を示すが、経年と共に徐々に緯度効果は薄れる。従って、図 1 に示される  $^{14}\text{C}$  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、1964 年から 2000 年にかけての  $^{14}\text{C}$  濃度の単調な減少区間については、西暦年と  $^{14}\text{C}$  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、試料の  $^{14}\text{C}$  濃度から試料の西暦年を推定することができる。

## 2. 2 核実験起源 $^{14}\text{C}$ に起因するヒト歯牙コラーゲンの $^{14}\text{C}$ 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  $^{14}\text{C}$  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  $^{14}\text{C}$  濃度は、図 1 に示した大気中二酸化炭素の  $^{14}\text{C}$  濃度よりは 1,2 年遅れて、1965 年頃に鋭い増加を示す。樹木は光合成により大気中の  $^{14}\text{C}$  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、 $^{14}\text{C}$  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  $^{14}\text{C}$  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  $^{14}\text{C}$  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。従って、試料の  $^{14}\text{C}$  濃度から試料の西暦年を推定することができる。

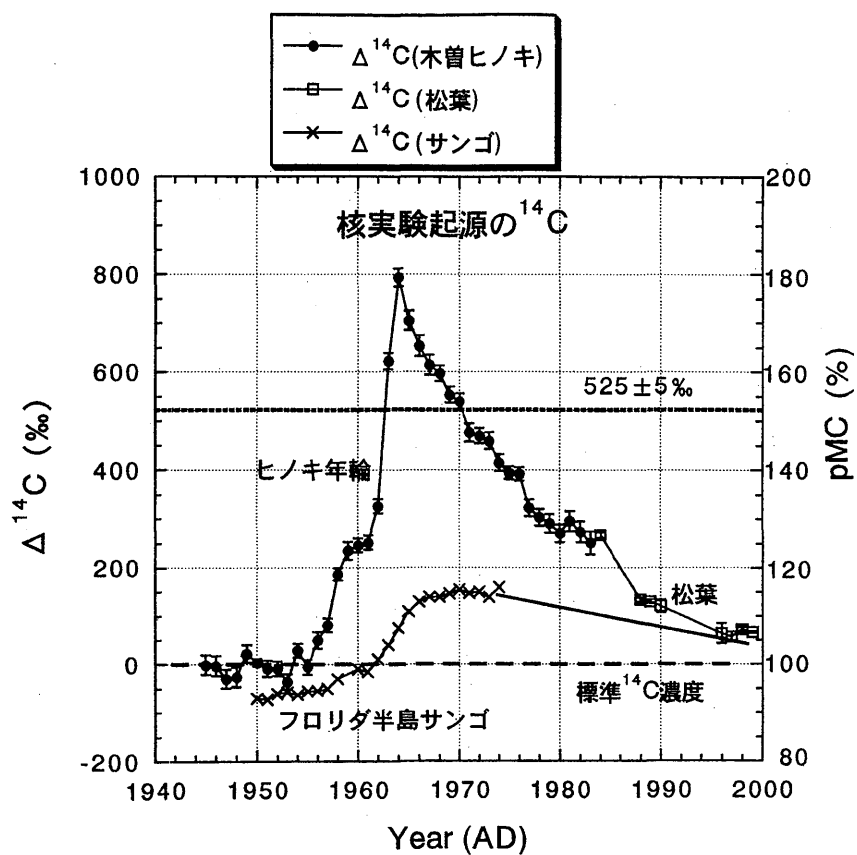


図1 大気圏内核実験による大気中二酸化炭素の $^{14}\text{C}$ 濃度の経年変動

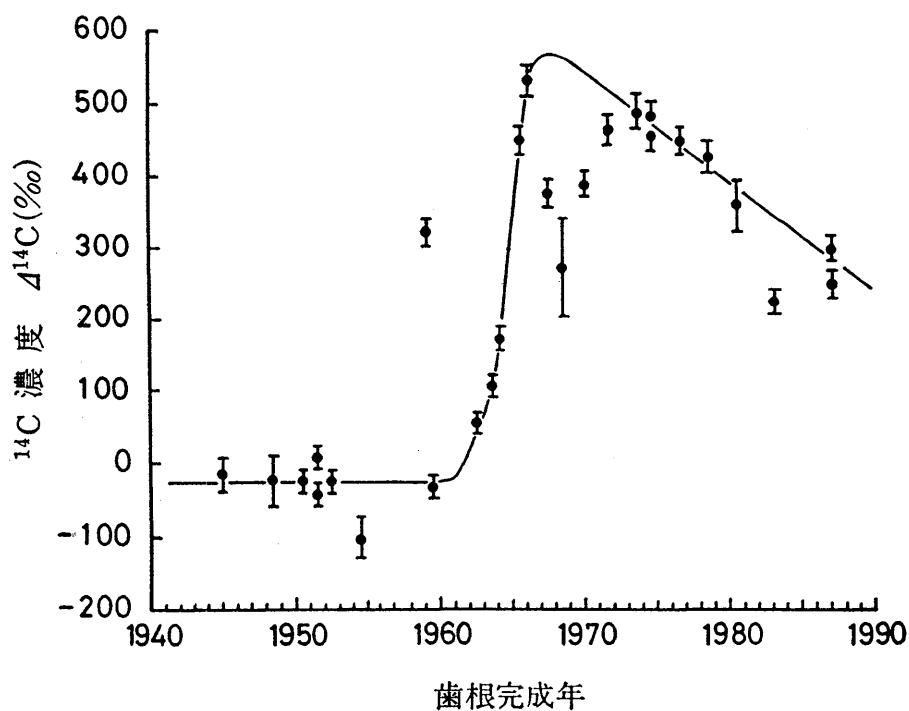


図2 歯根完成年とヒト歯牙コラーゲン中 $^{14}\text{C}$ 濃度の関係

### 3. 死亡年の推定に用いた資料と分析結果

#### 3. 1 $^{14}\text{C}$ 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（下顎左 8 番）	1 本
資料 2	毛髪	数本

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 $^{14}\text{C}$ 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してあったため、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 9 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 1.2 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 に加熱して、資料を燃焼して試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  $^{14}\text{C}$  濃度として、( $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ )<sub>AD 1950</sub> 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。

$$\Delta^{14}\text{C} (\text{‰}) = [ (^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{sample, corr}} / (^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{AD 1950, corr}} - 1.0 ] \times 1000 \quad \text{-----} \quad (2)$$

#### 3. 3 測定結果

両試料の種類、試料量、炭素の回収率、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 、 $^{14}\text{C}$  濃度、見かけの  $^{14}\text{C}$  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)	$\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$	$R_{\text{spl}}/R_{\text{AD 1950}}$ ( $\Delta^{14}\text{C}$ : ‰)	$^{14}\text{C}$ age (BP $\pm 1\sigma$ )	Lab. #
ヒトの髪の毛 (細い毛が 6本)	1.16mg 湯洗浄後 (1.30mg 元の量)	0.5 mg (44.0%)	-33.6	$1.525 \pm 0.005$ (525 $\pm 5$ )	$-3438 \pm 27$	NUTA2 -4409
奥歯 (1本, 詰め物が残 存)	8.94 mg (奥歯一本を、蒸留水 で洗浄後、粉碎して分 取)	0.77 mg (8.57%)	-23.3	$0.992 \pm 0.003$ (-8 $\pm 3$ )	16 $\pm 27$	NUTA2 -4408

毛髪は、提供された量が少なかったため、回収された炭素量も 0.5mg と少なかったが、 $^{14}\text{C}$  濃度は精度良く測定できた。歯牙コラーゲンからの炭素の収率は 8.57%と得られた。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  $^{14}\text{C}$  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  $^{14}\text{C}$  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  $^{14}\text{C}$  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  $^{14}\text{C}$  濃度は  $\Delta^{14}\text{C}=525 \pm 5\text{‰}$  である。この値に相当する樹木年輪の  $^{14}\text{C}$  濃度は、図 1 からほぼ西暦 1970 年の濃度である。従って、1970 年頃に生えた毛髪であると考えられる。

同様に、歯牙中タンパク質であるコラーゲンの  $^{14}\text{C}$  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  $^{14}\text{C}$  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  $^{14}\text{C}$  濃度に等しいはずである。

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

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  $^{14}\text{C}$  濃度は  $\Delta^{14}\text{C} = -8 \pm 3\%$  であることから、1960年以前に形成された歯牙であると考えられる。すなわち、1960年頃には、22歳以上の年齢であったと考えられる。

#### 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1970年頃、その時の年齢は32歳以上であると推定される。

#### 5. おわりに

この事件は既に解決しているが、警察の捜査によると、死体の女性は1968年6月に殺害され埋められた。女性の年齢は当時38歳であったとされる。死体から採取した毛髪と歯牙の  $^{14}\text{C}$  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よそ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に人工  $^{14}\text{C}$  の影響が現れる1940-1945年以降に生まれたヒトについては推定が可能であるが、それ以前に生まれたヒトについては適用が出来ない。

大気中二酸化炭素の  $^{14}\text{C}$  濃度変動曲線（人工  $^{14}\text{C}$  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

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  $^{14}\text{C}$  濃度変動, 地球化学, 21, 7-12.

T. Nakamura, N. Nakai and S. Ohishi (1987) Applications of environmental  $^{14}\text{C}$  measured by AMS as a carbon tracer, *Nucl. Instrum. and Methods in Nucle. Physics*,

B29, 355-360.

中村俊夫（1995）加速器 C-14 年代測定法による古文化財の正確な年代決定に関する基礎研究（研究成果の概要）．平成 5-6 年度文部省科学研究費補助金研究成果報告書，1-8.

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.

書道美術新聞，1996 年 2 月 11 日版，美術新聞社.

# Applications of AMS $^{14}\text{C}$ measurements to forensic researches

Toshio Nakamura, Tomoko Ohta, Rie Asada and Etsuko Niu

Center for Chronological Research, Nagoya University

$^{14}\text{C}$  variations of atmospheric  $\text{CO}_2$  and collagen fractions from human teeth are influenced by artificial  $^{14}\text{C}$  produced by nuclear bomb testing from late 1950s to early 1960s. By careful investigation of  $^{14}\text{C}$  concentration of tree rings and human teeth formed in this time ranges, we can establish a relation between  $^{14}\text{C}$  concentration and calendar year. By applying this relation to a sample whose  $^{14}\text{C}$  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 excavated from a building scrapped in 2002 that had been constructed since 1971. By measuring  $^{14}\text{C}$  abundance of several pieces of hair and human tooth (the third molar), the time of death of the body was estimated at around 1970, and her age was more than 32 years old at that time. These estimations were consistent with the real values that were revealed after the case was solved by finding out the real murderer