

^{14}C 年代の暦年代較正と海洋リザーバー効果

中村俊夫 (名古屋大学年代測定総合研究センター)

1. はじめに

^{14}C 年代測定では、試料炭素が固定された時の ^{14}C 濃度、すなわち ^{14}C 濃度の初期値は時間、場所に依らず常に一定であったと仮定される。しかし実際には、個々の試料について、この仮定の妥当性を吟味する必要がある。すなわち、時間がゼロ (試料炭素が固定された、あるいは閉鎖系になった時) の試料の ^{14}C 濃度が標準 ^{14}C 初期濃度 (例えば、中村 2003a,b) と同じであったとする仮定が、どの程度妥当であるかを検討しなければならない。試料の ^{14}C 初期濃度と標準 ^{14}C 初期濃度との差によって、 ^{14}C 年代が暦年代からずれる。このずれを検討するには、1) ^{14}C 濃度の地域差、2) ^{14}C 濃度の経年変化、について検討する必要がある。本稿では、 ^{14}C 濃度の地域変動について、特に海洋に溶存する炭素に関連して述べる。さらに、 ^{14}C 濃度の経年変化については、 ^{14}C 年代値から暦年代への較正に関連して議論する。

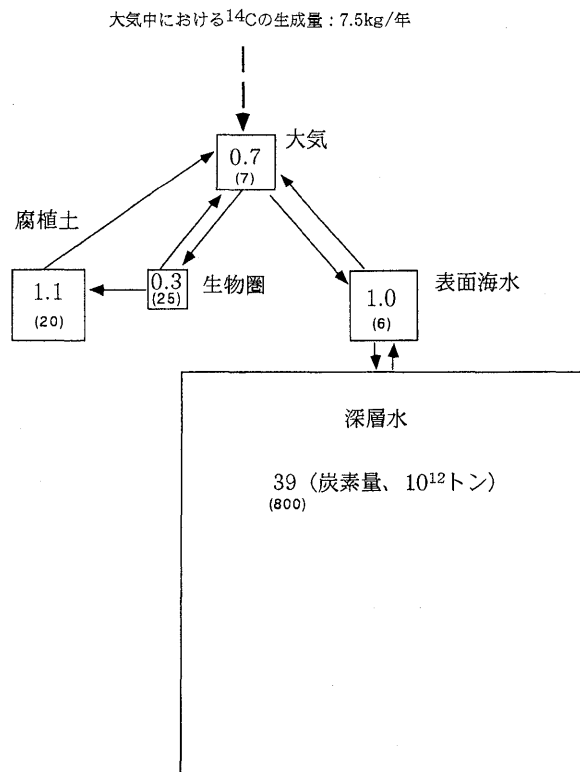


図1 天然の炭素リザーバー

矢印は炭素の移動を表す。ボックス内の数値は炭素量を 10^{12} トンの単位で表す。カッコ付きの数値は、おおよその炭素滞留時間 (年の単位) を表す。

2. 炭素リザーバーとリザーバー効果

大気中で、宇宙線の作用により生成された ^{14}C は、周囲に存在する酸素により直ちに一酸化炭素 (^{14}CO) に酸化され、引き続いて OH ラジカルの作用で二酸化炭素 ($^{14}\text{CO}_2$) となり (Lowe and Allan, 2002), $^{12}\text{CO}_2$ や $^{13}\text{CO}_2$ と共に大気圏内にしばらく存在するが、やがて物理的、化学的過程により ^{12}C や ^{13}C と共に水圏、生物圏、さらに堆積物などの炭素リザーバー間を循環する (図 1)。各炭素リザーバー内では、せいぶつの活動などにより炭素が固定される。これが後世に残り、採取されて ^{14}C 年代測定研究の対象となる。各炭素リザーバー間の炭素循環は、 ^{14}C の半減期 5730 年と比較して無視できるほどには速やかではない。図 1 に、炭素リザーバー内の平均的な滞留時間が示されている。従って、定常状態において、 ^{14}C の生産の場である大気圏と比較して、他のリザーバーは一般に低い ^{14}C 濃度を示すことになる。この、炭素リザーバー毎に ^{14}C 濃度が異なる効果を、 ^{14}C 濃度のリザーバー効果と称する。

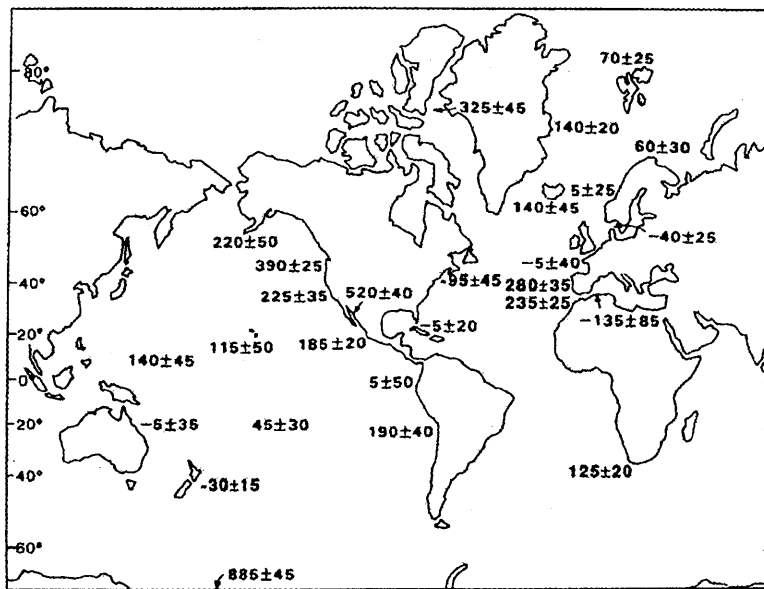


図 2 世界各地での表面海水の炭素リザーバー効果の大きさの変動量 (単位は年)

3. 海洋リザーバー

海水中の溶存全炭酸の ^{14}C 濃度の測定から、海洋の深層水は淀んでいるのではなく、絶えず循環しており、循環の周期は約 1500 年であることが明らかにされている (Ostlund and Stuiver, 1980)。この海洋深層水の循環のために、一般に海洋水中に溶存する炭素の ^{14}C 濃度は大気中 CO_2 の ^{14}C 濃度に比べて低い。実際、海産物試料は、大気中 CO_2 を直接固定する陸上植物試料に比べて、 ^{14}C 年代が平均して 402 年 (<R>: global mean reservoir correction) 古く得られることが明らかにされている。また海洋水の ^{14}C 濃度には地域差があり、深層水の湧昇域ではかなり低く、逆に沈降域では大気 CO_2 の ^{14}C 濃度と

ほぼ交換平衡になっている。従って、表面海水中の溶存炭酸を用いて殻を作る貝類の ^{14}C 濃度は地域差がある。世界各地での表面海水の炭素リザーバー効果の大きさの変動が図 2 に示される (Stuiver and Braziunas, 1993a)。図 2 に示される数値 (ΔR : regional variation) は、各地の海産物の ^{14}C 年代が、平均的な値(R)からさらにいかほどずれているかを、年の単位で示している。すなわち、アフリカ沖で示される ΔR (125 ± 20 年) は、海産物試料の ^{14}C 年代が陸上植物よりも 527 年 ($R = \langle R \rangle + \Delta R = 402 + 125$ 年) 古くなることを示している。深層水の湧昇がある赤道域や南極域で採取された海産物の ^{14}C 年代値は、同時代に炭素固定を行った陸上植物よりも古くなる傾向を示す (Omoto, 1983; Stuiver and Braziunas, 1993a; Southon et al., 2002)。特に南極域では、両者の ^{14}C 年代値の差が 1300 年を超えることが報告されている (Berkman and Forman, 1996)。

海洋の炭素リザーバー効果により、海岸線近くの遺跡では、同じ層準から発掘される同年代を示すと思われる陸生獣の骨と海獣の骨では ^{14}C 濃度が異なり、後者の ^{14}C 年代が数百年古くなる (Yoneda et al., 2001)。また、人骨を用いた年代測定では、陸上産の食糧と海産の食糧の摂取の割合に応じて、みかけの ^{14}C 年代値が変わることを考慮する必要がある。陸産および海産食糧の摂取の割合は骨コラーゲンの炭素安定同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$) を用いて推定できる。 ^{14}C 年代から暦年代への較正に際して、この摂取割合を用いて正確度の高い暦年代を推定することが出来る (例えば、三原ほか, 2002)。

湖水、河川水、地下水などに含まれる炭素は、陸上の堆積物中の古い炭素の影響を受けている可能性が高い。すなわち、雨水が地層中を通過する際に、土壌中の腐植質の分解で生じた CO_2 を溶かし込んだり、石灰岩を溶かし出す。従って、一般にその ^{14}C 濃度は、大気中 CO_2 の ^{14}C 濃度に比べて低いことが予想される。

4. ^{14}C 年代—暦年代較正データ

^{14}C 年代測定では、年代算出における基本的な仮定として、過去の大気中 CO_2 の ^{14}C 濃度が、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、Libby による ^{14}C 年代測定法の開発の直後から明らかとなっていた (Libby, 1955)。年代の明白な古代エジプトの遺品や年輪年代が決定されている年輪試料について得られた ^{14}C 年代と推定された暦年代とが一致しないことがあった。これは、 ^{14}C 年代測定の誤差に依るものではなく、 ^{14}C 年代と暦年代との系統的なずれであることが示された。1960 年代には、過去の大気中 CO_2 の ^{14}C 濃度変動が樹木年輪を用いて盛んに研究された (Stuiver et al., 1998)。日本では、木越 (1966)、Kigoshi & Hasegawa (1966)らにより、屋久杉の巨木を用いた研究が進められ、 ^{14}C 濃度の経年変動は地磁気の変動と関連させて解析された。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。

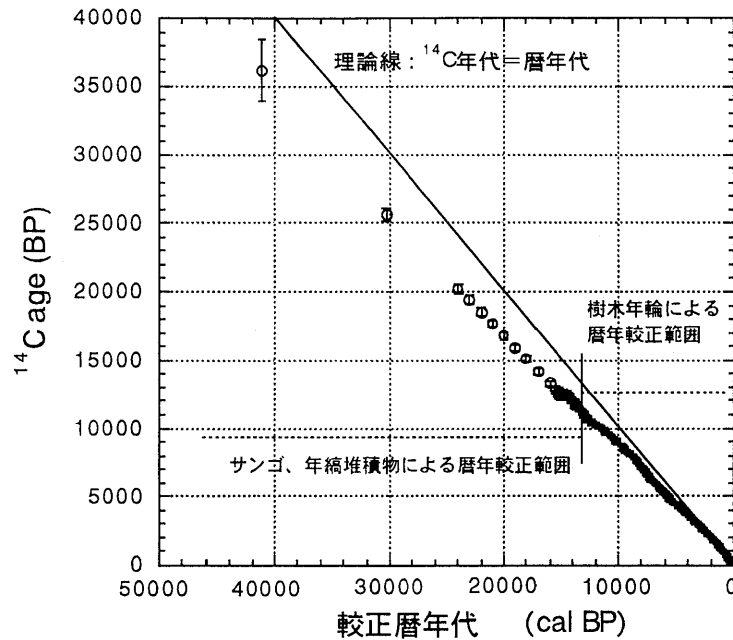


図3 ^{14}C 年代から暦年代への校正に用いられるデータ（陸産物に適用）
0～42,000 cal BP の区間の ^{14}C 年代-暦年代校正データ (INTCAL98, Stuiver et al., 1998)

樹木年輪や海底堆積物の縞模様の計数及びサンゴの U-Th 年代測定から得られる暦年代とそれらの試料の ^{14}C 年代の関係を図3に示す(^{14}C 年代-暦年代校正データ;INTCAL98; Stuiver et al., 1998) . また図4に, 0～12,000 cal BP の領域を拡大して示す. 図3および図4の横軸の年代は, 真の暦年代ではなく, 実際には, 樹木年輪年代測定法, 縞模様の計数, U-Th 年代測定法から求められた暦年代である. このことから, ^{14}C 年代と対応をつけるための暦年代として, 校正暦年代 (calibrated age) と称してある. 校正暦年代は, あとに述べるように, AD1950 から過去に遡った暦年数に”cal BP”をつけて表記する. cal は, ^{14}C 年代を校正した年代であることを意味する”calibrated”の略記である. 図3および図4から, ^{14}C 年代は校正暦年代からずれていることがわかる. おおよそ AD 1 年以前では, ^{14}C 年代は暦年代よりも系統的に若い値を示し, そのズレは年代が古くなるほど大きくなる. 暦年代で4千年前から1万年前では ^{14}C 年代は暦年代よりも500～1000年若く, 1万年前以降になると2千～5千年若い. また, 樹木年輪を用いて暦年代と ^{14}C 年代の関係が詳細に測定されている, 現代から11,850 cal BP (暦年代)の間では, ^{14}C 年代の有意なデコボコ (^{14}C ウイグルと称される)があることが知られている.

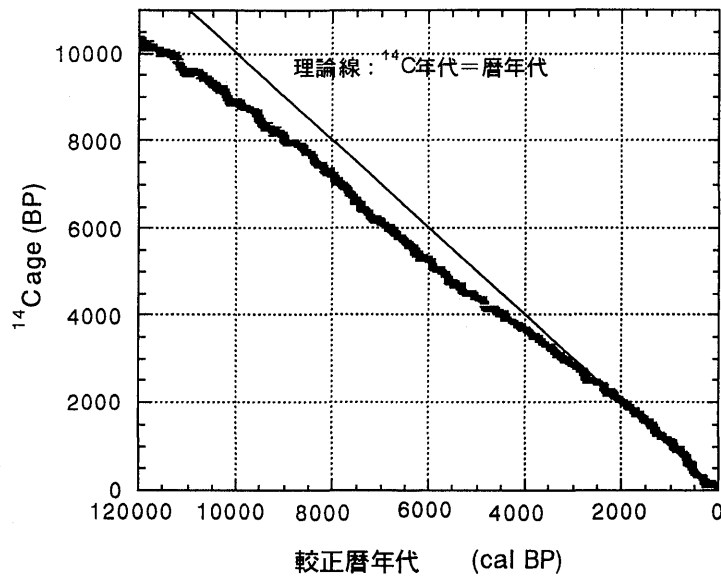


図4 ^{14}C 年代から暦年代への較正に用いられるデータ（陸産物に適用）
 0～12,000 cal BP の区間の ^{14}C 年代-暦年代較正データの拡大図
 (INTCAL98, Stuiver et al., 1998)

5. 海産物試料についての ^{14}C 年代から暦年代への較正

海洋の炭素リザーバー効果については既に述べたとおりである。海産物試料について得られた ^{14}C 年代を暦年代へ較正するためには、海産物用の ^{14}C 年代-暦年代較正曲線が必要となる。INTCAL98 データでは、実測されている大気中の ^{14}C 濃度をもとにして、大気-表面海水-深層水間の炭素循環機構をボックス-拡散モデル (Oeschger et al, 1975) を用いて解析することにより海洋表層水の ^{14}C 濃度を推定し、それをを用いて海産物用の ^{14}C 年代-暦年代較正曲線を作っている (図5)。このモデルでは、大気 CO_2 の ^{14}C 濃度に対して、表面海水(水深 0～75m)中の炭素の ^{14}C 濃度は平均的に 5%低く、また、深層水(水深 1000～3800m)中の炭素の ^{14}C 濃度は平均的に 19%低いと仮定している。

海産物試料の ^{14}C 年代を高精度で測定し、それを暦年代へ較正するには、試料を採取した地点における海洋の炭素リザーバー効果 (ローカルリザーバー効果) がよくわかっていることが不可欠である。すなわち、上記のボックス-拡散モデルで用いられているグローバルリザーバー効果 (<R>: 402 年) からのズレ (ΔR : regional variation, 図6) である。

暦年代較正では、海産物試料の ^{14}C 年代から、試料採取地点の近海について得られている ΔR 値を差し引いたあと、それを、海洋試料のための較正曲線 (CALIB4.3 暦年代較正プログラム(Stuiver et al, 1998)では、Dataset 3; for marine samples from 460~10,760 ^{14}C BP にあたる) を用いて較正する。 ΔR の測定データが無い場合には、 ΔR をゼロに仮定することもある。

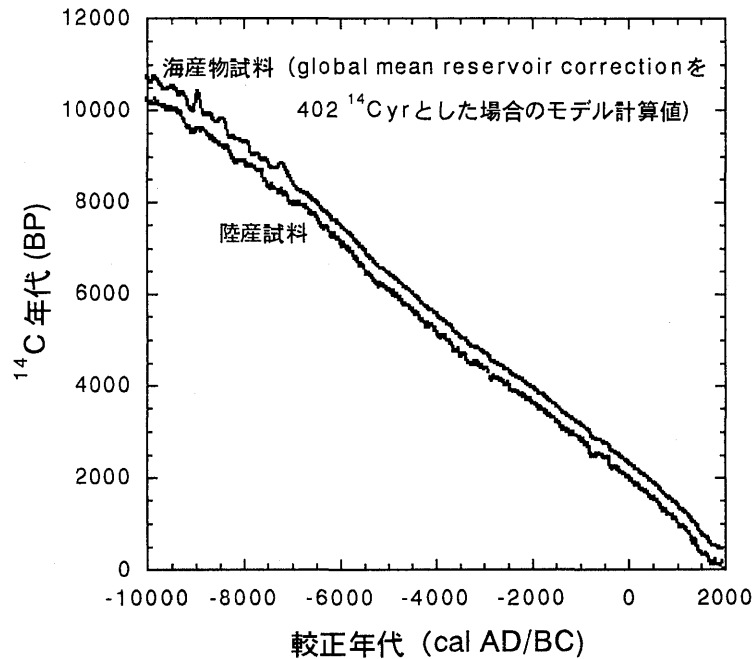
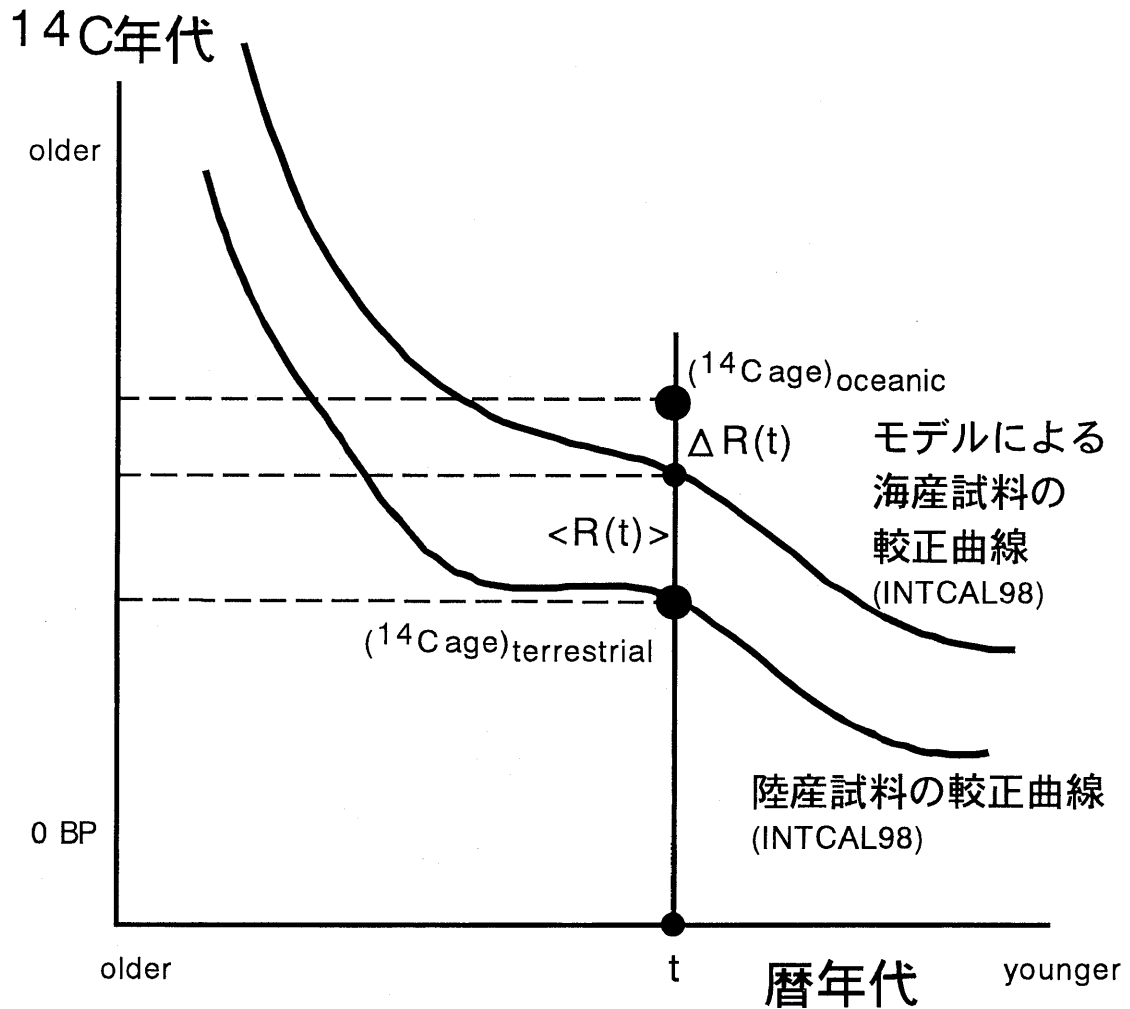


図5 ^{14}C 年代から暦年代への較正に用いられるデータ
海産物及び陸産物についての、0~12,000 cal BP 区間の ^{14}C 年代-暦年代較正データ
(INTCAL98, Stuiver et al., 1998)

一方、人骨などの ^{14}C 年代測定においては、ヒトが海産物と陸上植物・動物を合わせて食した場合には、陸上食糧と海産食糧の摂取割合の変化に応じて、海洋リザーバー効果の影響が異なる。それを考慮して、測定された ^{14}C 年代から暦年代へと較正する必要がある (図7)。すなわち、大気 CO_2 を直接吸収した試料のための較正曲線 (Calib4.3 暦年代較正プログラムでは、Dataset 1; for atmospheric samples from 0~20,265 ^{14}C BP にあたる) と海洋試料のための較正曲線 (Dataset 3) を組み合わせて用いる。較正は次のように行えばよい。ある較正暦年代を決めて、そこに対応する、大気、海洋のそれぞれの較正曲線の ^{14}C 年代2個から、陸上食糧と海産食糧の摂取の割合に応じて予想される ^{14}C 年

代を算出する。その予想年代値が、試料の測定された ^{14}C 年代値に一致するように校正年代をずらしていく。算出された予想 ^{14}C 年代が測定値に一致するとき、試料の校正年代が求められたことになる（図7）。以上のような原理に基づいて、CALIB Rev.4.3 プログラムを用いて、人骨試料の ^{14}C 年代を暦年代に校正することが可能となっている。



Oceanic reservoir effect (海洋リザーバー効果) :

$$R(t) = (^{14}\text{C age})_{\text{oceanic}} - (^{14}\text{C age})_{\text{terrestrial}}$$

Global mean reservoir correction(グローバルリザーバー効果) :

$$\langle R(t) \rangle = R(t) \text{の平均的な値} (\langle R(\text{AD}1930) \rangle \approx 402 \text{ } ^{14}\text{C yr})$$

Regional variation(ローカルリザーバー効果) :

$$\Delta R(t) = R(t) - \langle R(t) \rangle$$

図6 ローカルリザーバー効果

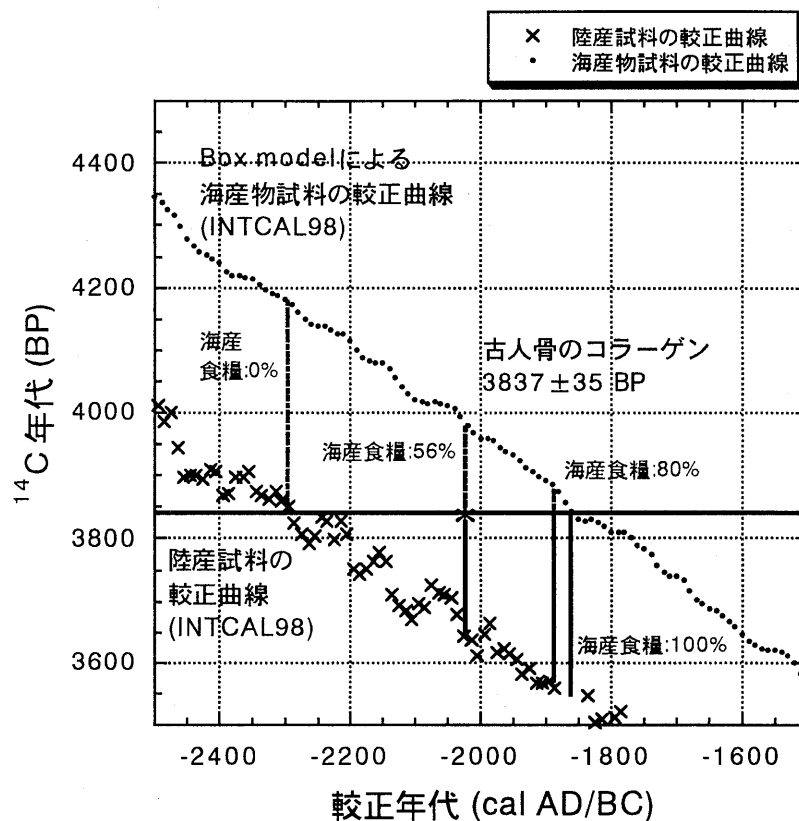


図7 人骨（陸産及び海産の食糧の混合物）の場合の¹⁴C年代-暦年代較正

海産食糧を56%、陸産食糧を44%食した人の骨から回収したコラーゲンの¹⁴C年代を3837 ± 35BPとした。較正方法の概念については本文を参照のこと。

6. まとめ

海産物を多く食した人の骨について測定した¹⁴C年代から暦年代を正確に得るためには、人骨が発掘された周辺海域のリザーバー効果(ΔR)がよくわかっている必要がある。しかし、海洋表層水の¹⁴C濃度の地域変動(ΔR)は、図2に示されるようにまだよくわかっていない。現状では、さまざまな試料や分析方法を組み合わせ、 ΔR 値のデータが蓄積されているところである。

四方を海に囲まれた日本では、海産物食糧は大いに利用されたに違いない。人骨を用いる編年の発展のためにも、海洋リザーバー効果研究の今後の発展を期待したい。

参考文献

- Berkman, P.A. and Forman, S.L. (1996) Pre-bomb radiocarbon and the reservoir correction for calcareous marine species in the Southern Ocean. *Geophys. Res. Lett.*, 23, 633-636.
- 木越邦彦(1966)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.
- Kigoshi, K. and Hasegawa, H. (1966) Secular variation of atmospheric radiocarbon concentration and its dependence on geomagnetism. *J. Geophys. Res.*, 71, 1065-1071.
- Libby, W.F. (1955) Radiocarbon dating, Univ. of Chicago Press, 175p.
- Lowe, D.C. and Allan, W. (2002) A simple procedure for evaluating global cosmogenic ^{14}C production in the atmosphere using neutron monitor data. *Radiocarbon*, 44 (1), 149-157.
- 三原正三・宮本一夫・小池裕子 (2002) 佐賀県大友遺跡出土人骨の ^{14}C 年代と海洋リザーバー効果. 月刊地球, 24, 11. 807-812.
- 中村俊夫 (2003a) 放射性炭素年代測定法と暦年代較正. 環境考古学マニュアル, 松井 章編著, 同成社, p.301-322.
- 中村俊夫 (2003b) 加速器質量分析(AMS)による環境中およびトレーサ放射性同位体の高感度測定. *Radioisotopes*, 52, 3, 145-171.
- Oeschger, H., Siegenthaler, U., Schotterer, U. and Gugelmann, A. (1975) A box diffusion model to study the carbon dioxide exchange in nature. *Tellus*, 27: 168-192.
- Omoto, K. (1983) The problem and significance of radiocarbon geochronology in Antarctica. Antarctic Earth Science, (Oliver, R.L., et al., ed.), *Australian Academy of Science*, Canberra, :450-452
- Ostlund, H.G. and Stuiver, M. (1980) Geosecs Pacific radiocarbon. *Radiocarbon*, 22:25-53
- Southon, J., Kashgarian, M., Fontugne, M., Metivier, B. and W-S. Yim, W. (2002) Marine reservoir corrections for the Indian Ocean and southeast Asia. *Radiocarbon*, 44 (1), 167-180.
- Stuiver, M. and Braziunas, T.F. (1993a) Modeling atmospheric ^{14}C influences and ^{14}C ages of marine samples to 10,000 BC. *Radiocarbon*, 35(1) 137-189
- 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. (1998) INTCAL98 Radiocarbon age calibration, 24,000-0cal BP. *Radiocarbon*, 40, 1041-1083, 1998.
- Yoneda, M., Hirota, M., Uchida, M., Uzawa, K., Tanaka, A., Shibata, Y., Morita, M. (2001) Marine radiocarbon reservoir effect in the western north Pacific observed in archaeological fauna. *Radiocarbon* 43, 2A, 465-471.

Calibration of Radiocarbon Ages for Marine Samples

Toshio NAKAMURA

Center for Chronological Research, Nagoya University
e-mail: nakamura@nendai.nagoya-u.ac.jp

Abstract:

Accurate knowledge on marine reservoir effect is particularly important to estimate active periods of archeological sites in Japan. Since most of archeological sites are situated in an alluvial plain in Japan, archeological remains include inevitably marine products. To obtain precise calendar ages for marine samples such as shell fragments and sea mammal bones by ^{14}C dating, a correction for marine reservoir effect is necessary. In addition, ^{14}C ages on a collagen fraction extracted from human bones should be corrected for the sources of their diet, the uptake ratio of terrestrial food to marine one. However, the local fluctuation of marine reservoir effect around Japan Islands is not known well. This study gives a brief summary of a calibration method for ^{14}C ages of samples containing marine-derived carbon.