

^{14}C 年代の補正と高精度化のための手法

奥村 晃 史*



正確で高精度な ^{14}C 年代を求めるために、年代値の補正は不可欠な手続きである。基本的な補正項目である海水および大気のリザーバ効果、同位体選別、大気 ^{14}C 濃度の経年変化についての補正は ^{14}C 年代測定の一部として普遍的に実施される。同位体選別の補正は、質量分析計を用いて年代測定と同時に $\delta^{13}\text{C}$ 測定を行う必要がある。これ以外の補正は既存のデータをもとにパーソナルコンピュータ用に開発されたプログラムで行うことが可能である。目的に応じた精度をもつ正確な年代を得るためには、これらの補正の内容を理解して高精度年代測定の戦略をたてる必要がある。

キーワード： ^{14}C 年代測定、補正、年輪年代、 $\delta^{13}\text{C}$ 、リザーバ効果

I. はじめに

^{14}C 年代測定法がカバーする 3~5 万年前から現在という時期は、歴史・考古時代および最も新しい地質時代に相当し、年代測定には最も高い時間分解能と正確さが要求される。数ある年代測定法の中でも、 ^{14}C 年代測定法は応用範囲の広さから最も幅広く、手軽に利用されている年代測定法の一つといえる。しかし、 ^{14}C 年代測定の結果が報告されるとき、測定値に補正が加えられている例はまだ少ない。

また、年代を知りたい事件と試料との時間差や試料の汚染のため、補正を行って細かな数字を議論しても意味がないとする意見もある。しかし、既知の誤差を取り除いた年代値を知り、試料のもつ問題だけを残して地質学的な判断に委ね、精密な年代を求めることは、現在の知識と技術から可能であり、必要である。補正によって年代の正確さが確立されることを前提として、はじめて精度の高い（すなわち誤差の小さい）年代の議論が可能となる。

このコメントでは、奥村 (1995) に加筆しておもな補正項の要点を紹介し、高精度化について簡単にふれる。記述にあたっては中村・中井 (1988)、中井・中村 (1988) および *Radiocarbon*, vol. 28 no. 2B (1986), *Radiocarbon*, vol. 35 no. 1 (1993) の各論文を参照した。*Radiocarbon* 誌の論文は多数にのぼるので、特に必要な場合を除き、個別の引用は行わなかった。

II. リザーバ効果

大気圏・水圏中で ^{14}C 濃度分布は、平衡状態、拡散・循環の影響を受けるため、均一ではない。中緯度地域の表層海水は、大気に較べると 400 年以上、深層海水は約 700~1,000 年以上、古い ^{14}C 年代をもつ。この差は時代と地域によっても違いがある。海岸部の試料についての直接の補正は、採取年代が明らかな核爆発以前の具の標本の年代測定や、火山灰層など鍵層について水中生物と陸上生物の ^{14}C 年代を比較することで可能となる。

Stuiver and Braziunas (1993) は、年輪年代補正と地球規模の炭素循環モデルおよび表層海水の年代の地域差を組み合わせて、リザーバ効果の補正を試み、10,000 BC までの海水に由来する試料の年代補正を提案している。また、年輪年代の得られていない時代については、Bard *et al.* (1993) がサンゴの $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 年代をもとに補正データを提出している。

海水起源と大気起源の炭素が混合する場合や、陸水一般、特に炭酸塩岩地域の陸水を起源とする有機物についてはリザーバ効果の見積もりは困難なことが多い。大気の拡散と混合に要する時間のため、南半球の大気は北半球に較べて 40 年古い年代をもつ。これは大気のリザーバ効果であるが、南半球の大気中の炭素を起源とする有機物の ^{14}C 年代からは、画一に 40 年を差し引くことが必要である。

1995 年 4 月 11 日受付。1995 年 5 月 2 日受理。1994 年度日本第四紀学会大会シンポジウムにおけるコメント。

* 地質調査所環境地質部 〒305 つくば市東 1-1-3.

III. 同位体選別の補正

生物が炭素を固定する際に起こる同位体選別の結果、生物と大気・海水中の炭素同位体組成に差が生じ、試料の ^{14}C 濃度と ^{14}C 年代とに違いを生ずる。同位体選別による ^{14}C の濃度差は、安定同位体 ^{13}C の濃度を質量分析計によって測定し、PDB標準試料との濃度差($\delta^{13}\text{C}$)から求めることができる。 $\delta^{13}\text{C}$ 補正前の ^{14}C 年代では $\delta^{13}\text{C}$ を温帯の樹木・草本の平均的な値、 -25‰ としている。しかし、ある種の植物や骨、炭酸塩などの $\delta^{13}\text{C}$ は 0‰ ～ -50‰ の範囲で変化し、 ^{14}C 年代の補正量は $\delta^{13}\text{C}$ 1‰あたり16年、最大400年に達する。

^{14}C 年代と歴史記録との照合を行う場合、 $\delta^{13}\text{C}$ 1‰の違いを無視することはできない。また完新世の貝や骨などの試料では、測定誤差以上の補正量が予想される。同位体効果の補正は、若い ^{14}C 年代測定の上で不可欠と考えるべきである。過去に $\delta^{13}\text{C}$ 測定を行わずに年代測定を行った場合、同一試料が残っていれば、年代測定と同様の前処理を行って、 $\delta^{13}\text{C}$ 測定を単独に行うことで信頼できる $\delta^{13}\text{C}$ を求めることができる。すでに試料の存在しない年代測定値を補正するためには、類似した試料の $\delta^{13}\text{C}$ を測定して外挿するか、それぞれの有機物ごとの一般的な値(Stuiver and Reimer, 1993: User's Guide of the Table 1)を外挿することも可能である。

IV. 年輪年代補正

^{14}C 年代測定では、大気中の ^{14}C 濃度が一定であることを仮定している。しかし、実際には大気中の ^{14}C 濃度は地球磁場や太陽活動の影響をうけて経年変化している。たとえば、 ^{14}C 濃度の減少速度が ^{14}C の壊変速度と一致すると、一致している期間 ^{14}C 年代の時計は停止する。また減少速度が壊変速度を上回ると、時計は逆に進むことになる。このような ^{14}C 濃度の変化の実態は年輪年代学と ^{14}C 年代測定を組み合わせることによって解明されてきた。

大気中の ^{14}C 濃度の経年変化の影響は、年輪年代学によって暦年のわかっている木の試料を20年あるいは10年分の年輪ごとに ^{14}C 年代測定した結果を用いて補正される。最新のデータでは、約1万年前までの確実な補正曲線が求められている。図1に1,000 BCから現在までの補正曲線を示した。考古・歴史時代を通じて、年輪年代にもとづく補正量は最大200年に達し、正負は時代とともに変化する。750～400 BCにかけて、補正曲線はほぼ水平で、暦年代を正確に決めることはできない。18世紀以後はいくつものピークがみられ、暦年代の確定は困難となる。

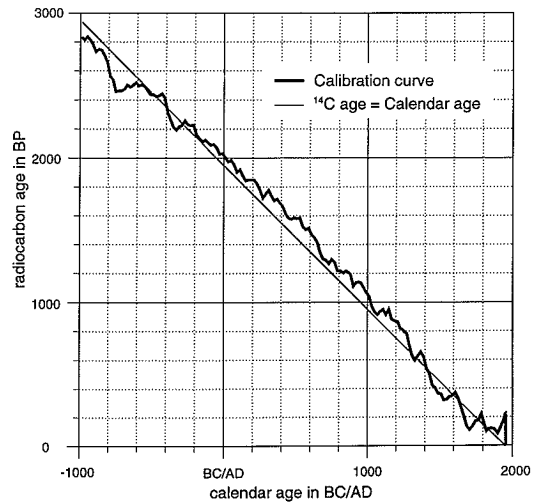


図1 年輪年代に基づく過去3,000年間の ^{14}C 年代補正曲線

Niklaus(1991)のデータに基づく。

1000 BC以前には、3000 BC頃・7000 BC前後などに顕著な時計の止まる時期をはきんで、 ^{14}C 年代は暦年代から徐々に若い方へ離れていく。サンゴの ^{14}C 年代と $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 年代を比較した結果から、 ^{14}C 年代が暦年代より10～20%若くなる傾向は過去3万年間一定している(Bard *et al.*, 1993)。歴史時代以前あるいは完新世以前の年代を議論する場合でも、 ^{14}C 年代をもとに堆積速度、変動速度などを求める場合には、暦年補正を行わないと時間の長さの見積りに有意な誤差を生ずる。

年輪年代補正の実際の例を図2に示す。平均値土標準偏差の正規分布で表現される ^{14}C 年代(BP)は補正曲線を介して不規則な確率分布に変換される。補正後の確率分布は ^{14}C 年代に対応する時期の補正曲線の形態、すなわちその時期の大気 ^{14}C 濃度変化によって決定される。補正曲線にピークや谷がある場合、一定の信頼限界に対応する補正結果が不連続な暦年代をとることも理解できるであろう。

V. 補正のためのプログラム

以上に述べたそれぞれの補正は、最近開発されたパーソナルコンピュータ用のソフトウェアを用いて行うことができる。CALIB3.0(Stuiver and Reimer, 1993: IBM-PC・Apple Macintosh用)はRadiocarbon, vol. 35 no. 1に付属しているほか、インターネットから無償で入手することもできる[anonymous ftp: ftp.u.washington.edu / public / user-supported / calib/]. CALIB3.0には年輪

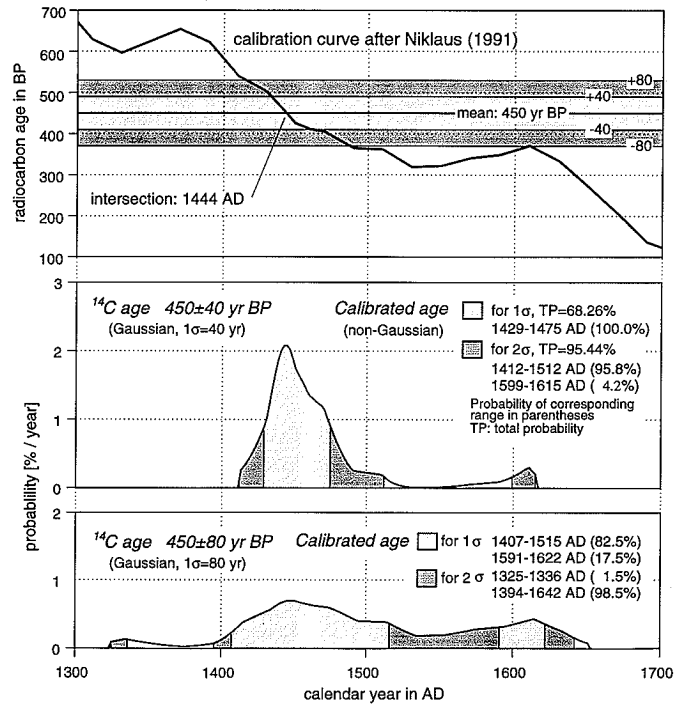


図2 年輪年代に基づく補正の実例

平均値と標準偏差で表現される ^{14}C 年代が補正曲線(上)を介して不規則な確率分布(中・下)に変換される。補正後の年代は補正曲線の形態と ^{14}C 年代の標準偏差によって変化する。CalibETH (Niklaus, 1991)の補正計算結果をプロットした。

年代補正に加えて上に記したような各種補正項のオプションが充実しており、Radiocarbon, vol. 35 no. 1で報告されている各種の補正項を含めて補正計算を行うことができる。CalibETH (Niklaus, 1991: IBM-PC・Apple Macintosh用)は年輪年代補正だけを行うが、操作の簡便さと結果の出力の面で優れており、扱いやすいプログラムとなっている。

VI. 高精度年代測定の戦略

これまで解説した補正は、年代値をより正確にするための手続きであり、年代の精度を高める、すなわち年代測定の誤差を小さくするものではない。 ^{14}C 年代測定値のもつ誤差を小さくするためには、試料中の ^{14}C を定量する際の測定誤差を小さくする以外に方法はない。このためには β 線計数法の場合でも、加速器質量分析計の場合でも、よりノイズレベルの低い測定装置で、より多量の炭素を、より長時間測定することが要求される。

β 線計数法では、性能のよい液体シンチレーションカウンターを用いて、なるべく多量(木材の場合100~200g)の試料について長時間測定を続ける(1週間

程度: 測定誤差は測定時間の平方根に反比例する)。これによって、最近1,000年程度の理想的な試料の場合、最低15~20年程度まで標準偏差を小さくすることができる。従来の加速器質量分析計では、10時間かけて $1\sigma=40$ 年程度が限度であり、50~60年以上の 1σ が報告されることが普通だった。しかし、最近開発された新しいタイプの加速器質量分析計では、20~30年の 1σ が1時間以下の測定で達成できる(中村ほか, 1995)。

上に記した補正項のうち、特に年輪年代補正は、もとの ^{14}C 年代の標準偏差によって補正結果の年代幅が大きく変化する。図2では ^{14}C 年代測定値の標準偏差が40年と80年の場合を比較した。補正結果は補正曲線の形態によって支配されるが、年輪年代補正のデータを使って、測定の目的と試料のおよその年代値から逆に必要とされる標準偏差の大きさを決定することもできる。測定精度を高めることの意義は、時代によって著しく異なる。このような方法を用いて測定した年代値から、さらに精密な年代の特定を行うためには、(1)厳密に同一年代を示すであろう試料を分割し、それぞれの分画から得られた複数の高精度年代を平均化する方法(Ward

and Wilson, 1978), (2) 層序・堆積速度などの情報を、年輪年代補正された年代値の確率分布を拘束する条件として、定量的に用いる方法 (Biasi and Weldon, 1994), (3) および年輪をもつ試料を 10~20 年ごとに高精度年代測定して、年輪補正曲線の変化と一致させる方法 (Wiggle-Matching: 古城, 1995) などが考えられている。研究の目的に照らして、必要な試料を採取するとともに、要求される年代測定精度をあらかじめ決定することは、 ^{14}C 高精度年代測定を行う上で重要な戦略である。

引用文献

- Bard, E., Arnold, M., Fairbanks, R.G. and Hamelin, B. (1993) ^{230}Th - ^{234}U and ^{14}C ages obtained by mass spectrometry on corals. *Radiocarbon*, 35: 191-199
- Biasi, G. and Weldon, R. J. II (1994) Quantitative refinement of calibrated ^{14}C distribution. *Quat. Res.*, 41: 1-18
- 古城 泰 (1995) 測定値の平均化とウイグル・マッチング—高精度年代決定のための二、三のテクニックについて. 第四紀研究, 34: 129-134
- 中井信之・中村俊夫 (1988) 放射性炭素年代測定法. 地質学論集, 29: 235-252
- 中村俊夫・中井信之 (1988) 放射性炭素年代測定法の基礎—加速器質量分析法に重点を置いて—. 地質学論集, 29: 83-106
- 中村俊夫・池田晃子・太田友子・柴田 賢 (1995) 名古屋大学タンデロン加速器質量分析計の現状と 2 号機導入計画. 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, VI: 9-22
- Niklaus, T. R. (1991) *CalibETH version 1.5, 2 diskettes and manual*. 151 p, ETH Zürich
- 奥村晃史 (1995) ユーザーが行う ^{14}C 年代の補正. 第四紀通信, 2(1): 12-13
- Stuiver, M. and Braziunas, T. F. (1993) Modeling atmospheric ^{14}C influence and ^{14}C ages of marine samples to 10,000 BC. *Radiocarbon*, 35: 137-190
- Stuiver, M. and Reimer, P.J. (1993) Extended ^{14}C data base and revised CALIB 3.0 ^{14}C Age Calibration Program [Program diskette with User's Guide attached]. *Radiocarbon*, 35: 215-230
- Ward, G.K. and Wilson, S.R. (1978) Procedures for comparing and coming radiocarbon age determinations: a critique. *Archaeometry*, 20: 19-31

Refinement of Radiocarbon Dates for Higher Precision and Accuracy

Koji Okumura*

Correction and calibration of radiocarbon dates are indispensable procedures for accurate and precise age estimation. The most significant factors for correction and calibration are reservoir effect, isotopic fractionation, and secular variation in atmospheric ^{14}C concentration. The correction of the reservoir effect is enabled by carbon-cycle modeling or by dating pre-atomic age marine samples of known age. The effect of isotopic fractionation ranges from 0 to -50 permill $\delta^{13}\text{C}$ or up to 400 ^{14}C years.

This effect is easily corrected through $\delta^{13}\text{C}$ measurement using a mass spectrometer. Accumulated ^{14}C dates of dendrochronologically dated tree ring samples made it possible to calibrate the deviation caused by ^{14}C concentration variation. Now versatile correction and calibration programs for personal computers are available. High precision ^{14}C dating will be meaningful through understanding all calibration and correction methods.

* Seismotectonic Research Section, Geological Survey of Japan. Higashi 1-1-3, Tsukuba, Ibaraki 305.