

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 5 月 26 日現在

機関番号：34315

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18H03744

研究課題名(和文)セルソーターによる化石花粉抽出技術を用いた、放射性炭素年代較正モデルの高精度化

研究課題名(英文) Improving radiocarbon calibration model by dating fossil pollen pellets prepared by cell sorter

研究代表者

中川 毅 (Nakagawa, Takeshi)

立命館大学・総合科学技術研究機構・教授

研究者番号：20332190

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 36,050,000円

研究成果の概要(和文)：水月湖の年縞堆積物のうち、主として1万3000年から2万年前まで(一部は3万7000年前まで)に相当する部分から112層準を選び、セルソーターを用いた化石花粉の抽出を実施、加速器による放射性炭素年代測定をおこなった。得られた結果は、先行研究によって水月湖の葉化石から得られていたデータと、長期的な傾向において良い一致を示し、短期的な傾向においてはより平滑であり、葉化石データのばらつきを目立たせる結果となった。これにより、化石花粉は放射性炭素年代較正モデルに優れたデータを提供できること、また花粉の年代と葉の年代を比較することで、大気中の放射性炭素濃度の年々変動を定量的に評価できる道が開けた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

まず化石花粉という、これまで年代測定に用いられてこなかった材料を、安定的に年代測定用の試料として用いることのできる技術確立したことが大きい。本研究の成果を元に、花粉の抽出と年代測定をおこなう受託サービスを立ち上げたので、この成果は今後コミュニティ全体に広く利用してもらえることができる(今年度は、オックスフォード大学と提携して国際展開する予定)。また、1万3000から2万年前については、年代較正の精度と信頼度を有意に向上させることに成功した。本研究で得られたデータは次期IntCalにも採用されることが確実であり、そうなれば2万年前までの年代決定を必要とするあらゆる学術分野に利益が及ぶ。

研究成果の概要(英文)：A total of 112 horizons were chosen from the annually laminated sediment of Lake Suigetsu, Japan, mainly from an interval of ca. 13-20 ka, but also including some samples up to ca. 37 ka. Fossil pollen grains were extracted from those samples using a cell sorter, and were submitted to the radiocarbon dating by AMS. Overall results showed good agreement with the results previously obtained on the leaf fossils recovered from the same sediment cores, and showed visibly better convergence when compared with leaf fossils. This indicates that (i) fossil pollen grains can provide good data for the radiocarbon calibration model, and that (ii) the departure of the leaf ages from the pollen ages can be used as a good indicator of the inter-annual variability of the atmospheric radiocarbon.

研究分野：古気候学、地質年代学

キーワード：放射性炭素年代較正 放射性炭素年代測定 花粉化石 セルソーター IntCal

1. 研究開始当初の背景

過去の出来事を理解しようとするとき、年代を正確に知ることが本質的に重要である。時間的な前後関係は、因果関係と密接に関係しており、後から起こった出来事は、前に起こっていた出来事の原因ではあり得ない。有名な例では、西暦 926 年に渤海が滅亡したことの原因が、同時期におこった白頭山の噴火だったかどうかを巡って、専門家の間では長い論争が続いていた。

正確な年代測定は、このような論争に決着をつける強力なツールである。とくに放射性炭素 (^{14}C) 年代測定は、その汎用性がきわめて高いことと、5 万年という適用範囲が人類史の主要部分をカバーしていることから、すでにもっとも普及した年代決定手法となっていた。上記の渤海と白頭山の例でも、土石流に埋まった樹木の ^{14}C 年代測定により、噴火は渤海滅亡の原因では「ない」と結論づけられるなどの事例報告が続いていた (Oppenheimer *et al.* 2017)。

いっぽう、有機物中の ^{14}C の残存量から計算によって求められる年代 (いわゆる ^{14}C 年代) には、時代によって数千年もの不確かさがあった。これは大気中の ^{14}C の濃度が、時代によって不規則に変動することから起こる現象だった。正確さを要求される現代の地質学において、このような不確かさは看過することができなかった。

この問題を抜本的に解決する技術として、「 ^{14}C 年代較正 (キャリブレーション)」が注目されていた。正確な年代 (暦年代) が分かっている試料をなるべく多くの時代から集めてきて、 ^{14}C 年代測定を実施すれば、 ^{14}C 年代と暦年代とをつなぐ巨大な「換算表」が完成する。研究者たちは 90 年代以降、このような換算表 (厳密にはある種のグラフであり、「較正曲線」あるいは「較正モデル」などと呼ばれる) を作る努力を続けていた。

樹木年輪は計数によって正確な年代が分かる上に、直接 ^{14}C 年代を測定できることから、較正曲線を作るための材料としては最適である。じっさい、もっとも正確な較正曲線は樹木の年輪の試料から得られていた。ところが、古い時代の樹木は存在自体が珍しく、入手が困難なため、年輪に基づいた較正曲線は、2018 年の時点で今からおよそ 1 万 2600 年前までしかカバーしていなかった。

樹木年輪が届かない時代については、サンゴや鍾乳石、プランクトンの殻の化石など、様々な代替試料を用いる方法が提案されてきていたが、当時とくに注目されていたのが、福井県の水月湖の底に堆積している一年に一枚の薄い地層、いわゆる「年縞」だった。年縞は年輪と同様に、一枚ずつ数えることで絶対年代を求めることができる。また水月湖の年縞堆積物には、周辺の木から落ちた葉の化石が含まれており、 ^{14}C 年代測定が可能であることが知られていた。樹木の葉は、深海の水や石灰岩に含まれる「古い」炭素の影響を受けておらず、上述のサンゴや鍾乳石、プランクトンなどに比べてデータの「素性」がよかった。

代表者 (中川) をリーダーとする国際研究グループは、2006 年に水月湖でボーリング調査を実施し、まったく欠落のない年縞堆積物試料を採取することに成功していた。同グループは、「SG06」として知られるこの堆積物試料に対し、5 万枚を超える年縞の計数

と、800枚以上の葉の化石の ^{14}C 年代測定をおこなうことで、5万年前までを一気にカバーする ^{14}C 年代較正モデルを構築した(Nakagawa *et al.* 2012; Bronk Ramsey *et al.* 2012)。水月湖の ^{14}C 年代較正データが高品質であることは国際社会からも評価され、2013年には水月湖のデータセットが、 ^{14}C 年代較正モデルの国際標準であるIntCalの主要部分に採用された(Reimer *et al.* 2013)。

いっぽう、水月湖の ^{14}C 年代較正データにも欠点はあった。とくに重要なのは、i)葉の化石が見つかるかどうかは運によるため、データの間隔がきわめて不規則だったこと、また、ii)葉の化石は「特定の一年」における大気中の ^{14}C 濃度をスナップショットとして記録しているため、太陽フレアなどの突発的な事件の影響によるデータの乱れが避けられないこと(Miyake *et al.* 2012)の二点だった。より正確な年代測定をめざす科学の流れにとって、これらは必ず解決されなくてはならない喫緊の問題だった。

ライバルも存在していた。当時カリフォルニア大学で、中国のHulu洞窟の石筍を用いて、5万3000年前までさかのぼる高精度データを準備中であることが判明していた(Southon *et al.* 2012; 2017など)。様々なデータが提出され、結果として ^{14}C 年代較正曲線が高精度化することは学門的には歓迎されるべきであるが、「世界最高の年代目盛り」が日本に存在していることで日本が得ている利益はきわめて大きい。水月湖の相対的な地位低下は避けることが望ましく、早急な対応が必要だった。

2. 研究の目的

本研究では、過去1万2500年前から3万年前までの時代について、 ^{14}C 年代較正の精度を大幅に向上させることを目指した。 ^{14}C 年代較正の精度は、とくにウィグルマッチングと呼ばれる統計的な手法を用いる場合には、較正データの密度および等間隔性に強く左右される。本研究ではデータ数を従来の倍に増やし、かつ準等間隔化することで、較正年代の不確かさを現状のおよそ半分にまで減らすことを当初の目標とした。

本研究のもう一つの目的は、水月湖が日本の研究者コミュニティに対してもたらしているアドバンテージを死守することだった。上述のように、水月湖の ^{14}C 年代較正データは、過去5万年の地質年代の「国際標準目盛り」としての地位を確立していた。そのため、たとえば日本近海の堆積物コアを火山灰などで水月湖に対比することができれば、水月湖が誇る世界最高水準の年代軸をそのまま利用することができ、年代論に関して国際社会が疑義を唱えることはなかった。海洋の堆積物には深海の古い炭素の影響があり(リザーバー効果と呼ばれる)、通常は精密な年代測定が困難であることから、水月湖の年代軸を利用できることの意義は大きかった。本研究では、水月湖の ^{14}C 年代較正データが現在持っている国際的な地位を維持ないし発展させ、ひき続き日本の地質学コミュニティの利益に寄与することをめざした。

3. 研究の方法

分析には、立命館大学の古気候学研究センターに保管されている水月湖の年縞堆積物コア「SG06」と、東京大学が2012年に採取した「SG12」を使用した。湿重量およそ30グラムのサンプルに対し、酸アルカリ処理、比重分離、フィルター処理を施した後、SONY製セルソーターSH800型に導入し、化石花粉を高純度抽出した。抽出された花粉ペレットはまず光学顕微鏡で観察し、花粉分類群のパーセンテージ組成を求めた。また、アル

カリ雰囲気と塩酸雰囲気中でそれぞれ限外濾過をおこない、化学的な汚れを徹底的に排除した。その後、東京大学のコンパクト AMS システム (^{14}C 専用機) を用いて化石花粉ペレットの ^{14}C 年代を測定した。

なお平成 29 年度までは、福井県が所有する SONY 製セルソーター SH800 型を、立命館大学と福井県の協力協定に基づいて優先的に使用できていた。だが平成 30 年度には同装置を福井県に返還しなくてはならなかったため、本研究のために占有できる装置を新たに導入した。

4. 研究成果

率直に言って、最初の 3 年間は予想外の技術的トラブルに悩まされ続けた。花粉が想定以上に流出していた問題と、凍結乾燥の際の飛散の問題は、1 年目と 2 年目におけるデータの量産を妨げた。また 2 年目の終わりからはコロナが始まり、当初予定していた実験室の使用や、実験補助の雇用がことごとく不可能になった。問題解決のアドバイスを求めるために、世界のエキスパートを訪問することもできなかった。

花粉流失の問題に対しては、アルカリ廃液の再濾過などの方法で解決を得た。また凍結乾燥の際の飛散の問題は、デシケーターを長時間使用することで解決した。それでも当初意図したサンプル量を常に確保することは困難だったが、加速器のターゲットをグラファイトではなくセメントイトにする方法の開発に成功したことで、測定に必要なサンプル量を半減させることに成功した。また、従来はセルソーターに導入することが困難だった大型 ($> 50 \mu\text{m}$) の花粉も、ジルコンのビーズによって花粉以外の植物片だけを選択的に粉砕する技術を獲得したことで、年代測定用の試料として使用できるようになった。

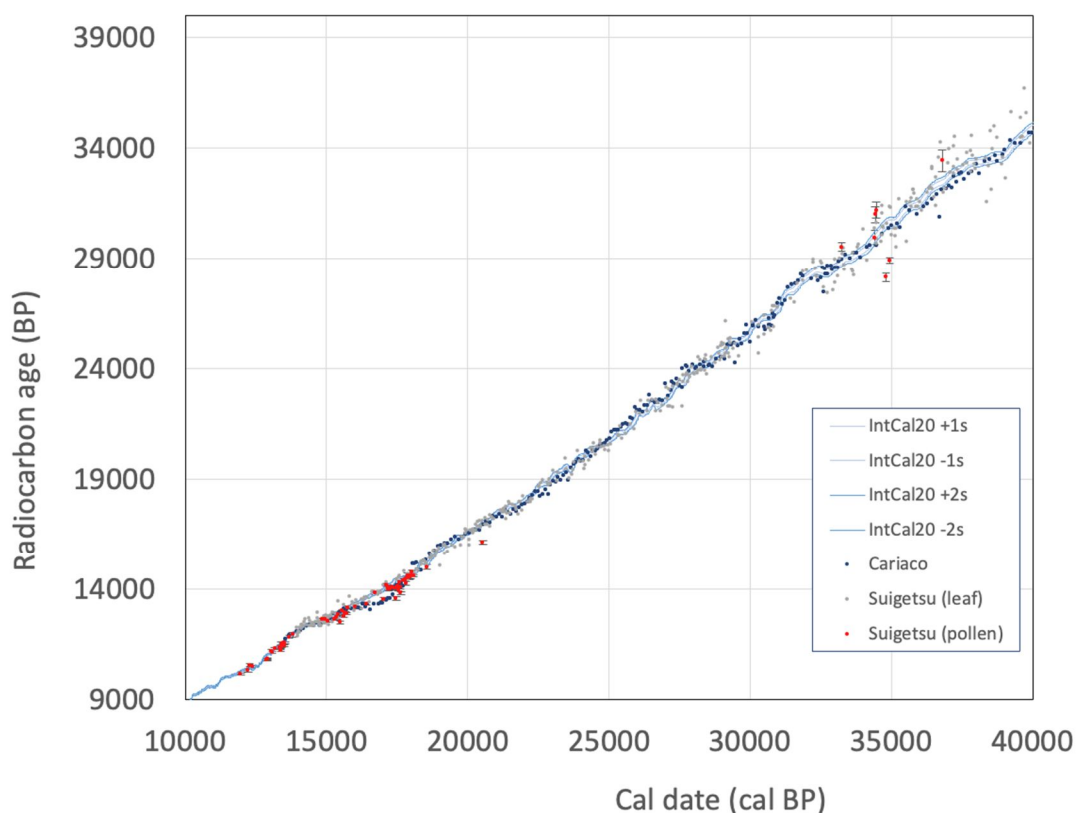
これらの技術的進歩の結果、4 年目から本格的なデータ量産モードに入ることができた。当初の目標は 4 年間で 230 サンプルを分析することであり、さすがに 1 年で遅れをすべて取り戻すことはできなかった。しかし、ほぼその半量 (当初の予定では 2 年分) に相当する、99 サンプルを測定に供することができた (実験補助が得られなかったことを考慮するなら、当初計画の倍以上の分析効率を達成したことを意味する)。最終的なデータセットの大きさは、(まだ加速器による分析結果を待っているものまで合わせると) およそ 150 点に達する予定である。

分析の結果は次ページの図に示した通りであり、控えめに言っても「きわめて」良好であった。全体的な傾向が葉化石の年代と一致しただけでなく、葉化石よりもデータのばらつきは目に見えて小さかった。このことは、葉化石データは放射性炭素濃度の年々変動の影響を強く受けており、そのため放射性炭素年代較正モデルとしては年代の制約力が弱いこと、またこれらの問題が、花粉年代によって解決できることを示していた。また葉化石と花粉化石の年代を比較することで、大気中の放射性炭素の年々変動の幅を定量化できること、さらには Hulu 洞窟の放射性炭素年代が、地面のリザーバー効果によってどの程度平滑化されているかの推定までできる可能性を示唆しており、当該分野の発展の可能性が大きく広がった。

以上のことから、それまで懐疑的に語られることもあった花粉の年代測定は、完全に「使える」技術として完成の域に達したと結論づけることができる。またこの成功を受けて立命館大学では、堆積物中の化石花粉を抽出して年代測定をおこなう、有償の受託

分析サービス POLARIS (POLlen RADio ISotope : 花粉の放射性同位元素) を開始した (POLARIS の URL: <http://14c.rits-palaeo.com>)

これまでに得られた較正データは、現在 Quaternary Geochronology 誌に登校中である (Omori et al., submitted)。また非公式ながら、IntCal グループの代表である Christopher Bronk Ramsey 教授とデータの進捗状況を共有しており、次回の IntCal の更新に向けてデータを提供する用意ができています。将来にわたって IntCal の基幹データを提供し続け、日本の第四紀学のアドバンテージを担保するという当初の目的は、これによって完全に達成されつつある(ただし、データ生産は何らかの資金を獲得して継続する必要があります)。



図：水月湖とカリアコ海盆の放射性炭素年代。赤：水月湖の花粉化石（本研究）。グレー：水月湖の葉化石（先行研究）。青：カリアコ海盆（先行研究）。背景の細かい線は IntCal20 年代較正モデル。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Takeshi NAKAGAWA, et al.	4. 巻 202
2. 論文標題 The spatio-temporal structure of the Lateglacial to early Holocene transition reconstructed from the pollen record of Lake Suigetsu and its precise correlation with other key global archives: Implications for palaeoclimatology and archaeology	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Global and Planetary Change	6. 最初と最後の頁 103493
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.gloplacha.2021.103493	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Keitaro YAMADA, Takayuki OMORI, Ikuko KITABA, Tatsuo HORI, Takeshi NAKAGAWA	4. 巻 272
2. 論文標題 Extraction method for fossil pollen grains using a cell sorter suitable for routine 14C dating	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Quaternary Science Reviews	6. 最初と最後の頁 107236
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.quascirev.2021.107236	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 中川 毅	4. 巻 -
2. 論文標題 水月湖年縞堆積物の花粉分析と精密対比によって復元された、晩氷期から完新世初期にかけての気候変動の時空間構造 - その古気候学および考古学的意義 -	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 第四紀研究	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 2件/うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Keitaro YAMADA, Takayuki OMORI, Ikuko KITABA, Akiteru YAMASAKI, Takeshi NAKAGAWA
2. 発表標題 Pollen isotope records from Lake Suigetsu, Japan
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Keitaro Yamada, Takayuki Omori, Takeshi Nakagawa, Ikuko Kitaba
2. 発表標題 Stable isotope records of pollen fossils in Lake Suigetsu, Japan, during the Last Glacial-Interglacial Transition
3. 学会等名 20th Congress of the International Union for Quaternary Research (INQUA) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ritsumeikan University and Fukui Varve Museum
2. 発表標題 14C dating of fossil pollen grains - a commercial service will be in place - (exhibition booth)
3. 学会等名 20th Congress of the International Union for Quaternary Research (INQUA) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takayuki Omori, Keitaro Yamada, Ikuko Kitaba, Takeshi Nakagawa
2. 発表標題 Extraction of high-quality 14C data from terrestrial sediments containing pollen fossils: High-efficiency pollen 14C analysis using next-generation cell sorter
3. 学会等名 23rd International Radiocarbon Conference (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 中川 毅、山田 圭太郎、大森 貴之、北場 育子
2. 発表標題 世界の追撃を いかにして振り切るか -水月湖プロジェクトの憂鬱と勝算-
3. 学会等名 第四紀学会公開シンポジウム「自然環境と人類の将来予測に向けた第四紀学の最先端:各領域分野の最新動向とその 共有・発展をめざして」(招待講演)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	大森 貴之 (Omori Takayuki) (30748900)	東京大学・総合研究博物館・特任研究員 (12601)	
研究 分担者	山田 圭太郎 (Yamada Keitaro) (30815494)	立命館大学・立命館グローバル・イノベーション研究機構 (BKC)・助教 (34315)	
研究 分担者	北場 育子 (Ikuko Kitaba) (60631710)	立命館大学・総合科学技術研究機構・准教授 (34315)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------