

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 3 月 31 日現在

機関番号：62501

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2009～2012

課題番号：21240072

研究課題名（和文）日本産樹木年輪による炭素 14 年代の高精度較正曲線の作成

研究課題名（英文）High-precision calibration curve for radiocarbon dating by Japanese tree rings.

研究代表者

坂本 稔 (SAKAMOTO Minoru)

国立歴史民俗博物館・研究部・准教授

研究者番号：60270401

研究成果の概要（和文）：精確な年代研究に資するため、主に弥生から古墳時代に書ける日本産樹木の炭素 14 年代測定を実施し、日本版較正曲線の提案を試みた。当時の大気中の炭素 14 濃度は地域間効果が大きく、統一的な較正曲線の整備には至らなかったが、北半球における大気中炭素 14 濃度の増減と東アジア地域における異常には相関が見られた。これは較正曲線の整備において、全球的な大気循環を考慮する必要性を示唆するものである。

研究成果の概要（英文）：Radiocarbon measurements of Japanese tree rings from Yayoi to Kofun period were carried out to establish Japanese calibration curve for precise dating. Although the attempt was not successful for the spatial variation of ^{14}C concentration of atmosphere, the ^{14}C anomalies appeared in the tree ring of Eastern Asia were in good agreement of the shape of IntCal representing the ^{14}C variation of North hemisphere. This may suggest the global atmospheric change affects the regional offset of Japanese calibration curve.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	6,600,000	1,980,000	8,580,000
2010 年度	9,700,000	2,910,000	12,910,000
2011 年度	9,400,000	2,820,000	12,220,000
2012 年度	6,800,000	2,040,000	8,840,000
総計	32,500,000	9,750,000	42,550,000

研究分野：複合領域

科研費の分科・細目：文化財科学

キーワード：炭素 14 年代・年輪年代・較正年代・AMS・ $\delta^{18}\text{O}$ 値・地域効果

1. 研究開始当初の背景

未知試料の「炭素 14 年代」の暦年代を得るためには、年輪年代法で年代の判明した樹木年輪の炭素 14 年代などと比較する「較正」という操作が必要になる。年代較正には一般的に、欧米産樹木年輪のデータを集成した較正曲線「IntCal」が用いられている。ところが、平成 16～20 年度科学研究費補助金（学術創成）「弥生農耕の起源と東アジア -炭素年代測定による高精度編年体系の構築」による日本産樹木年輪の炭素 14 年代の測定で、

弥生から古墳にかけての時期について IntCal と系統的にずれている可能性が明らかになってきた。この時期の較正年代の不自然さについては、考古学の立場からの指摘も多かった。

炭素 14 年代法は高精度の暦年代を導きうる方法であるが、基準となる較正曲線に不備があれば誤った年代観が構築される恐れがある。日本歴史学・考古学において、古墳の開始期は極めて大きな関心事であり、日本産樹木年輪による当該期の較正曲線の整備が

早急に求められていた。

IntCal は定期的に見直されているが、学会の興味はむしろ年輪年代の及ばない古い時期へと向かっている。比較的新しい時期には新たな測定値が追加されず、統計的な処理で妥当性を向上させているのが現状だった。樹木年輪の高精度な測定には多大な労力がかかり、総合的な再測定はこれまで敬遠されてきたという側面も伺えた。

2. 研究の目的

本研究は、高い精度が求められる日本歴史学・考古学の年代研究において必要不可欠な、炭素 14 年代の較正曲線を日本産樹木に基づいて整備することを目的とした。

主に紀元前後から古墳期にかけての時期に注力し、日本列島各地に生育した樹木年輪の炭素 14 年代がどのように変動し、欧米産の樹木年輪に対してどれほど一致、また違いがあるかを定量的に明らかにする。較正曲線の精度向上には複数試料の複数回測定が必要であり、古墳開始期については未だそのいずれもが不十分であった。本研究によって当該期の測定を充実させ、日本歴史学・考古学における暦年代導出のための日本版較正曲線として提案することを目指した。

3. 研究の方法

(1) 年輪年代法の実施

紀元前後から古墳期にかけての樹木年輪試料を選定し、必要に応じて年輪年代法を実施する。

(2) 測定試料の調製

年輪層の採取、洗浄、セルロースの抽出、炭素の抽出、AMS 測定のためのグラフィイト調製について、系統的な処理を行う。

(3) AMS-炭素 14 年代法の実施

大学などの研究期間に加え、民間企業へも測定依頼も積極的に行う。また複数の測定機関を利用して偏りをなくし、測定結果の普遍性を高める。

(4) IntCal との比較

得られた測定結果を IntCal に代表される欧米産樹木年輪の測定値と比較し、その相違を明らかにする。

(5) 考古学からの検討

弥生期および古墳期を専門とする研究者と連携し、遺物の炭素 14 年代測定を行って土器形式などから導かれる考古学的な年代と比較する。

(6) 日本版較正曲線の提案

国内外の学会に対して、論文や発表による成果の公表を行う。

4. 研究成果

(1) 年代測定の実施

研究期間中に測定された主な樹木年輪試

料は次の通りである。括弧内に試料記号を示し、個体ごとに異なった記号を付した。

- ① 京都府北白川追分町出土木材 (KTKSO-1)
- ② 大分市玉沢条里跡遺跡出土木材 (FJ-0462, OIFJ-C22)
- ③ 新潟県姫御前 II 遺跡出土木材 (HGN-170)
- ④ 奈良県柳本大塚古墳出土木棺 (NRYOK-4)
- ⑤ 奈良県桜井茶臼山古墳出土木棺 (NRSCK-2)
- ⑥ 韓国・釜山広域市古村里遺跡出土木材 (KRGCR-C1)
- ⑦ 長野県遠山川河床出土木材 (NNMSM-TR1)
- ⑧ 長野県宮田村出土木材 (NNMT-1)
- ⑨ 伝法隆寺古材 (KUW018, NRHRJ-A)
- ⑩ 中国・白頭山山麓埋没樹 (CHNCBS-1, CHNCBS-2)

本研究の実施にあたり直面した課題は、年輪年代の定まった樹木試料の選定、ないし年輪年代法の実施であった。日本での年輪年代法はスギ、ヒノキ、コウヤマキなどの針葉樹に限られ、広葉樹は対象外である。また対象樹種であっても測定が成功するとは限らない。NRYOK-4, NRSCK-2 はいずれもコウヤマキであったが、両者の年輪幅には同調が認められたものの年輪年代は確定できなかった。

しかしながらこの間に、名古屋大学の中塚教授によって、年輪セルロース中の酸素同位体比 ($\delta^{18}O$ 値) の変動パターンを用いた新しい年輪年代法が開発された。これは $\delta^{18}O$ 値が樹木の生育していた環境の湿度・降水量にตอบสนองすることを利用し、日本列島内の比較的広範な地域について、樹種を問わず適用できるという画期的な年代測定法である。基準となる変動パターン作成にあたっては、光谷が年輪年代を確定させた NNMSM-TR1 も用いられ、現在から過去 3000 年分のマスタークロノロジーが完成している。

中塚教授に研究協力を仰ぎ、この方法を用いた年輪年代法を実施した。その結果、従来の年輪年代法では実現できなかった NRYOK-4 の年代が確定し、それと同調する NRSCK-2 の年代も確定された。

年輪年代の確定しない試料についても、炭素 14 年代の測定結果を較正曲線 IntCal と比較することで異常を確認できると判断し、また近い将来、上記の酸素同位体による年輪年代法で年代の確定も期待できることから、積極的に測定を進めた。

(2) 測定試料の調製

(3) AMS-炭素 14 年代法の実施

AMS による樹木年輪試料の炭素 14 年代法の実施には、年輪の採取・分割、化学的な洗浄処理、測定試料となるグラフィイトの調製が必要となる。その過程で、一般的な化学的洗浄法である酸・アルカリ・酸処理 (AAA 処理) では不十分なことが明らかになった。

CHNCBS-1 は予備的な測定で想定される値よりも古い炭素 14 年代を与えていたが、有機溶媒（クロロホルム・メタノール混液）で超音波洗浄することで妥当な結果が得られた。有機溶媒には試料からの抽出物による着色が見られ、脂（ヤニ）と推測される。樹木試料はリグニンが年輪間を移動するとの懸念から塩素漂白を行うことが多いが、リグニンほどの分子量の多い物質は移動しないとの指摘もある。一方で脂は年輪間を容易に移動し、かつ脂溶性の汚染を受ける可能性がある。有機溶媒洗浄はこのような汚染を除去する方法として、取り入れられるべきものだろう。

リグニン除去の必要性については本研究では十分に比較・検討できていないが、有機溶媒洗浄と AAA 処理だけで妥当な結果を得た試料が多かった。しかしながら効率化を目指して本研究終盤で試みた、年輪を 1mm 厚の板に切り出して処理する方法は、切断時の年輪間の相互汚染や板状試料の漂白が十分でない場合の残留リグニンの積極的な移動を引き起こし、結果として良好な測定結果が得られなかった。

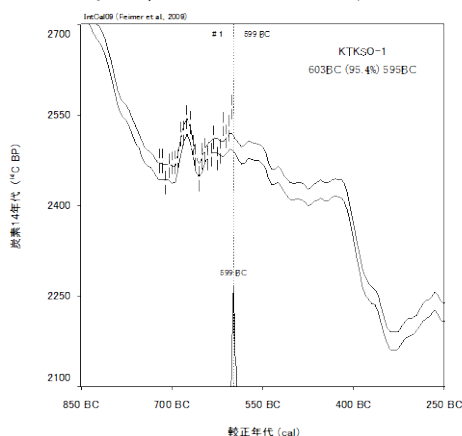
なお、グラファイト調製は当初国立歴史民俗博物館で実施したこともあったが、品質の悪さから AMS 測定が不安定になることが多く、基本的には調製を各測定機関に依頼することとなった。

(4) IntCal との比較

以下に各試料の測定結果を、較正曲線 IntCal 上に示す。年輪年代の確定した試料はその年代にあわせ、そうでない試料はウィグルマッチ法により最適な年代に配した。

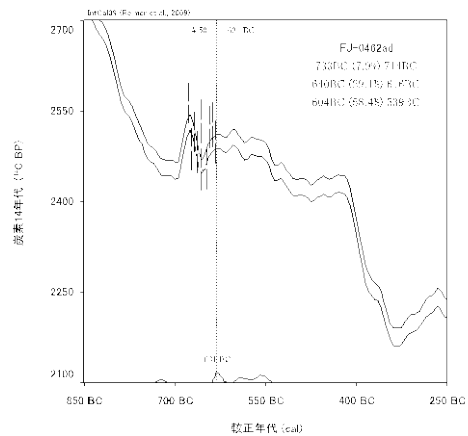
① KTKSO-1 (125 層, 年輪年代なし)

700BC 前後に見られる特徴的な上下動を再現し、ほぼ IntCal に沿っている。



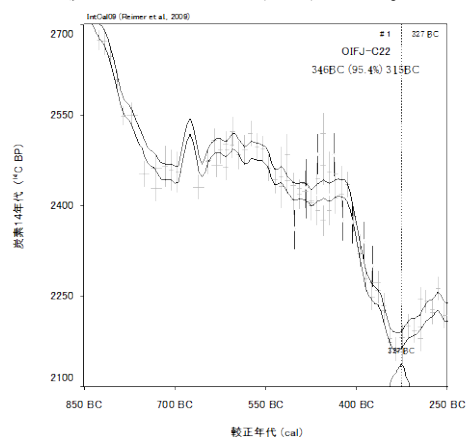
② FJ-0462 (50 層, 年輪年代なし)

較正曲線の平坦な時期にあたるが、ほぼ IntCal に沿っている。



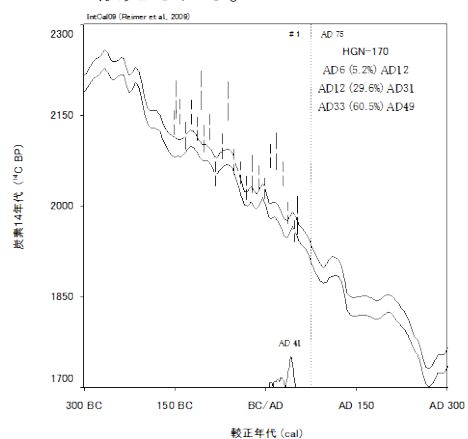
OIFJ-C22 (180 層, 年輪年代なし)

測定結果がばらついているが、この時期は IntCal の元データが不安定で、それを反映しているように見える。



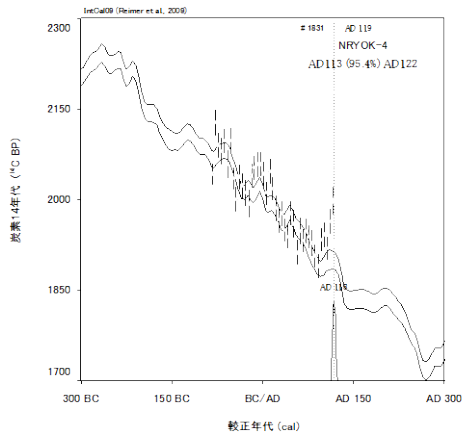
③ HGN-170 (225 層, 150BC~AD75)

IntCal に基づいたウィグルマッチングでは AD41 を与える。上方に外れるデータが散見される。

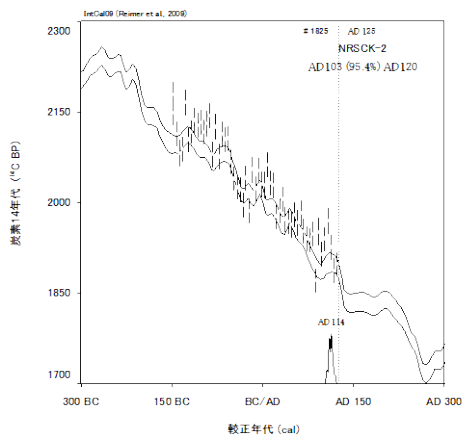


④ NRYOK-4 (205 層, 86BC~AD119)

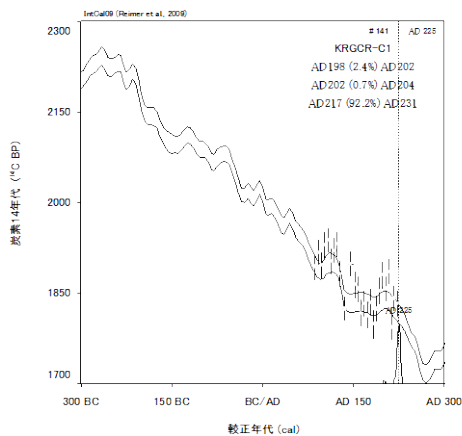
紀元前後に上方に外れる時期があるが、1 世紀頃は IntCal に沿っている。



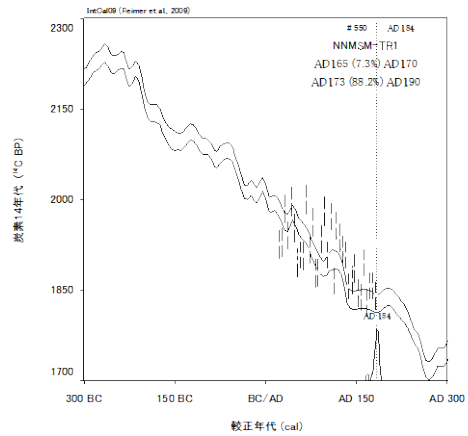
- ⑤ NRSCK-2 (275 層, 150BC~AD125)
NRYOK-4 とほぼ同じ挙動を示すが、
AD100 頃は IntCal に沿っている。



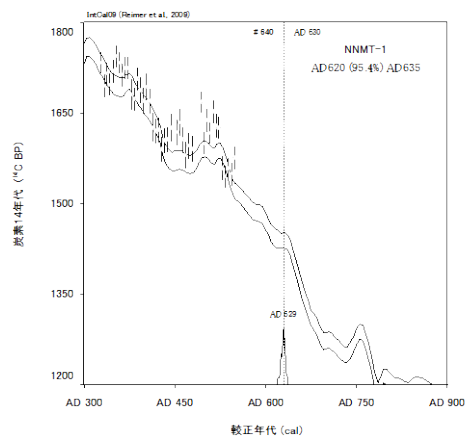
- ⑥ KRGR-C1 (141 層, 年輪年代なし)
2 世紀の IntCal が平坦な時期は日本産
樹木での乖離が指摘されていたが、韓国
産樹木では顕著ではない。



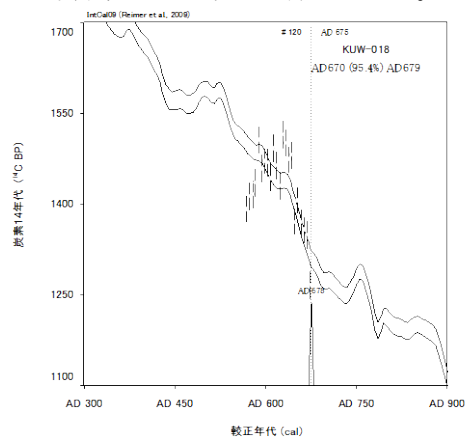
- ⑦ NNMSM-TR1 (165 層, 年輪年代不明)
AD386~550 の試料として測定を進めた
が、取り違いがあり 1~2 世紀の試料と
判明。ノイズが多く、検討は難しい。



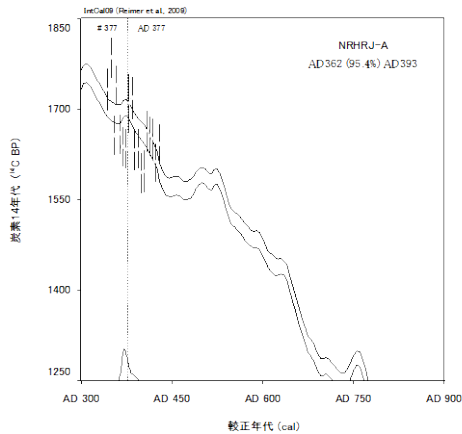
- ⑧ NNMT-1 (415 層, AD336~640)
10 数年前に蘭グローニンゲン大学で測
定された試料の再測定。当時よりも精
度・確度の高い結果が得られた。



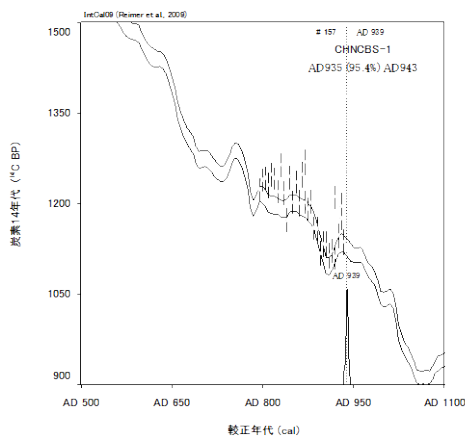
- ⑨ KUW018 (120 層, 年輪年代なし)
6 世紀中頃の乖離は試料汚染と思われ
る。一方、AD600 前後の乖離は後述す
る考古学的な事象と整合的である。



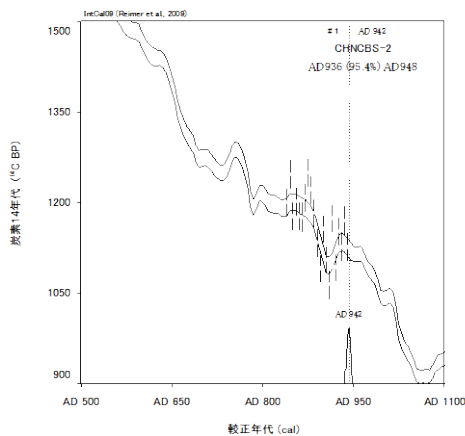
- NRHRJ-A (90 層, AD342~431)
IntCal の下方に位置する値が見られる
が、調製グラファイトの不具合と思われ
る。



- ⑩ CHNCBS-1 (157 層, 年輪年代なし)
B-Tm 火山灰をとまなう白頭山の噴火年代として AD939 を与える。ところどころ IntCal からの乖離が確認できる。



- CHNCBS-2 (105 層, 年輪年代なし)
9・10 世紀の上方への乖離は CHNCBS-1 と共通する。



樹木年輪の炭素 14 年代は、IntCal の形状に応じた乖離を示すように見える。すなわち、傾きが急な時期は IntCal に沿い、平坦な時期、あるいは上昇に転ずる時期は上方にずれることが多い。IntCal は北半球大気中の炭素 14 濃度の変動を示すもので、平坦な時期や上昇する時期はそれが減少に転じていることを意味している。その時期に、日本列島周辺

ではさらに大気中の炭素 14 濃度が減少している、つまり炭素 14 濃度の低い大気が混入していることを示す。ただしその現象は普遍的ではなく、①のようにほとんど乖離しない時期もある。

基本的に、IntCal の下方にずれることは考えにくい。炭素 14 は主に高緯度地域の気圏上層で作られ、下方にずらすにはそれ以上に高い炭素 14 濃度の大気存在を仮定する必要があるからである。

これまで、箱根産樹木と長野県産樹木 (⑦ と同一個体) の測定から、日本産樹木は 1~2 世紀に IntCal からの顕著な乖離を見せるとされてきた。本研究では 2 世紀の平坦な時期を十分に測定できていないが、1 世紀の乖離はそれほど大きくはなく、むしろ紀元前後の校正曲線の形に合わせたずれが強調される。また、ほぼ同緯度にある⑥が一部の時期を除いてそれほどずれていないことから、この時期の日本列島周辺の大気中炭素 14 濃度は地域的に不均一だった可能性がある。

(5) 考古学からの検討

⑧や⑨において、AD500 および 7 世紀前半に IntCal の形状に応じた上方へのずれが認められる。⑨についてはこれまで伝法隆寺古材 (⑨とは別個体) および岡山県鬼城山出土木材でも同様な傾向が認められ、また 7 世紀中頃に遡る前期難波宮の壁中の植物繊維がこの傾向を用いると妥当な校正年代が得られることから、ほぼ確実なずれと考えられる。

一方、韓国の 5 世紀資料 (未報告) が IntCal による校正で 100 年ほど古い年代を示してしまうのに対し、⑧によって妥当な年代を示すことが分かっている。これは、当時の韓半島の気中炭素 14 濃度が日本列島と同じ傾向を示していたことを意味する。2 世紀における状況と整合的でないが、大気中炭素 14 濃度の不均一さを反映しているかも知れない。

(6) 日本版校正曲線の提案

本研究は「日本版」校正曲線の提案を目指したものであったが、達成することはできなかった。それは、大気中炭素 14 濃度の地域的な変動が予想以上に複雑で、定量化が難しかったからである。

南半球の大気中炭素 14 濃度は北半球よりも低く、その進入による濃度変動を説明する試みが行われている。本研究で確認された校正曲線の形状に依存する異常は、全球的な大気循環を考慮する必要性を示唆する。

そのなかで、⑩で示した IntCal からの乖離は注目される。もしこれが南半球の大気の影響とすれば、北半球の中緯度地域にまでそれが及んでいたことになる。当該期の日本産樹木の測定が行われていないため検証は十分ではないが、太平洋に面した東アジア地域

に特有の現象の可能性が高い。

$\delta^{18}\text{O}$ 値による新しい年輪年代法は、資料選択の幅を大きく広げるものとして期待される。また気候変動を反映し、本研究で明らかになった大気循環と ^{14}C 濃度変動を関連づけるプロキシとなりうる。「東アジア版」較正曲線の整備とその微細構造の解明に向け、新たな課題とツールが得られることになった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計3件)

- ① 寺澤薫, 坂本稔ほか, 桜井茶臼山古墳出土木棺の年代測定. 奈良県立橿原考古学研究所彙報青陵, 136, 2012, 4-6. 査読なし
- ② 坂本稔, ^{14}C -ウィグルマッチ法による高精度年代測定. 考古学ジャーナル, 632, 2012, 20-24. 査読なし
- ③ SAKAMOTO Minoru et al., Design and Performance Tests of an Efficient Sample Preparation System for AMS- ^{14}C Dating. NIM B 268, 2010, 935-939. 査読あり

[学会発表] (計9件)

- ① 坂本稔ほか, 林堂洞古墳群出土人骨にみる東アジア地域の大気中炭素 14 濃度の異常. 第15回AMSシンポジウム, 2013年3月10日, 名古屋大学.
- ② 坂本稔・今村峯雄, 炭素 14-ウィグルマッチ法によるB-Tmを伴う白頭山の噴火年代-較正曲線に対する異常値について. 日本地球化学会 2012 年会, 2012年9月13日, 九州大学.
- ③ SAKAMOTO Minoru, NAKATSUKA Takeshi, OZAKI Hiromasa, MITSUTANI Takumi, Radiocarbon dating of Japanese tree-rings with delta- ^{18}O chronology. 21st International Radiocarbon Conference. 2012年7月9~13日, UNESCO, Paris, France.
- ④ SAKAMOTO Minoru, Regional effects of atmospheric ^{14}C appeared in East-Asian tree rings. 第4回東アジアAMSシンポジウム, 2011年12月16~18日, 東京大学.
- ⑤ SAKAMOTO Minoru, Comments on "14C Wiggle-Matching of the B-Tm Tephra, Baitoushan Volcano" (Yatsuzuka S. et al., 2010. Radiocarbon 52: 933-940). 2011 年度質量分析学会同位体比部会研究会, 2011年11月23~25日, Haeundae Grand Hotel, Busan, Korea.
- ⑥ 坂本稔, 紀元前後の東アジア産樹木年輪の示す炭素 14 年代の変動. 日本文化財第26回大会, 2011年6月11~12日, 筑波大学.

⑦ SAKAMOTO Minoru et al., Radiocarbon dating of archaeological remains from Gochon site, Busan, Korea. "Radiocarbon and Archaeology" 6th International Symposium, 2011年4月10~15日, Palia Ilektriki Cultural Center, Paphos, Cyprus.

⑧ SAKAMOTO Minoru, OZAKI Hiromasa, MITSUTANI Takumi, Wiggle-matching of wooden coffins of Kofun Period: supporting regional offsets on Japanese tree-ring from IntCal, The 12th International Conference on Accelerator Mass Spectrometry, 2011年3月20~25日, Te Papa Museum, Wellington, New Zealand.

⑨ 坂本稔ほか, 大分県大道遺跡から出土した臼の炭素 14 年代測定-年輪に基づく検討-. 日本文化財科学会第26回大会, 2009年7月11・12日, 名古屋大学.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

坂本 稔 (SAKAMOTO MINORU)
国立歴史民俗博物館・研究部・准教授
研究者番号: 60270401

(2) 研究分担者

大河内 隆之 (OOKOUCHI TAKAYUKI)
奈良文化財研究所・埋蔵文化財センター・主任研究員
研究者番号: 50372181
(H21)
光谷 拓実 (MITSUTANI TAKUMI)
奈良文化財研究所・埋蔵文化財センター・客員研究員
研究者番号: 90099961
(H21~H24)

(3) 連携研究者

今村 峯雄 (IMAMURA MINEO)
国立歴史民俗博物館・名誉教授
研究者番号: 10011701
尾寄 大真 (OZAKI HIROMASA)
東京大学・総合研究博物館・特任研究員
研究者番号: 20399265

(4) 研究協力者

中塚 武 (MAKATSUKA TAKESHI)
名古屋大学・環境学研究科・教授
研究者番号: 10011701