

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 9 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25241007

研究課題名(和文)陸上試料の炭素14年代較正データの検証研究

研究課題名(英文)Verification of terrestrial radiocarbon age calibration data

研究代表者

北川 浩之 (Kitagawa, Hiroyuki)

名古屋大学・宇宙地球環境研究所・教授

研究者番号：00234245

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 25,600,000円

研究成果の概要(和文)：木材や材化石、化石サンゴや洞窟堆積物(鍾乳石)、年縞堆積物などの年代既知の試料の炭素14測定から過去5万年からの炭素14年代キャリブレーションデータセット(IntCal13)が得られてきた。本研究では、国際陸上學術掘削計画(ICDP)死海深層掘削計画(DSDDP)で死海最深部(ICDP 5017-1地点)から得られた堆積物コアに含まれる陸上起源の植物遺体化石の高精度の炭素14年代測定を行い、同堆積物試料のアラゴナイトのウラン系列年代を比較することでIntCal13の検証研究を行った。列年代を比較することでIntCal13の検証研究を行った。

研究成果の概要(英文)：Radiocarbon dates do not equate directly with calendar time and must be corrected using a calibration curve. A calibration data set during the past 50 ka (e.g. IntCal13) has from radiocarbon date of known-age samples such as wood, fossil coral, cave deposit (stalactite) and lacustrine varve sediments. The high-resolution ^{14}C dating has been conducted for the terrestrial plant remains in a sediment samples from the deepest part of the Dead Sea (the ICDP 5017-1 site), which was recovered by the Dead Sea Deep Drilling Project (DSDDP) under the auspices of the International Continental Scientific Drilling Program (ICDP). The data set were compared with the U/Th-date of aragonite deposited chemically from lake water to validate and improve the latest calibration data: IntCal13.

研究分野：気候・環境動態解析

キーワード：炭素14年代法、キャリブレーション、死海、死海深層掘削計画、国際陸上學術掘削計画、加速器質量分析法、ウラン系列年代

1. 研究開始当初の背景

大気中の二酸化炭素の¹⁴C濃度の経年変化によって炭素14年代は実年代(あるいは暦上の年代)と一致しない。炭素14年代を実年代に較正するためには、炭素14年代キャリブレーションデータセットが必要となる。

現状では、年代が既知である材化石、化石サンゴ、洞窟堆積物(鍾乳石等)、湖沼・海洋の年縞堆積物の炭素14年代測定から得られた炭素14年代キャリブレーションデータを、統計的な手法を用い1つに合成したもの(IntCal13)を使い、炭素14年代を実年代に較正している。

年輪年代法で年代決定された材試料から得られた過去13,000年間の炭素14年代キャリブレーションデータは確定データとみなすことができるが、それ以前の時代に関しては、さまざまな理由からもたらされる不確かさが残され、さらにデータの時間分解能は低く、今後改善していく必要がある。

2. 研究の目的

本研究では、従来の方法と異なる新たなアプローチ(死海深層掘削プラットフォームで採集した堆積物に含まれる陸上植物遺体化石の炭素14年代測定を高解像度で実施して、同時に堆積物に含まれるアラゴナイトのU-Th法による年代測定を行う)で炭素14年代キャリブレーションデータを得て、IntCal13データセットの確からしを検証することを目的とした。将来的には、本研究で用いたアプローチを使い、炭素14年代キャリブレーションデータの高解像度化を図ることを目指す。

3. 研究の方法

(1) 死海深層掘削(DSDDP)

イスラエル・アメリカ・ドイツ・スイス・日本(本研究課題の研究代表者)の研究グループが中心となり、死海深層掘削プロジェクトを立案し、国際陸上学術掘削計画(ICDP)にそのプロジェクトを提案した(共同PIの所属・氏名は、本報告書の末尾の研究協力者リストを参照)。約50名の世界各地の研究者が本プロジェクトに参加し、2011年以降、共同プロジェクトを推進してきた。

(2) ICDP5017-1地点での堆積物掘削

2011/2012年死海のほぼ中央部のICDP5017-1地点(水深は約300m)の湖底から455mの堆積物コアを採集した(Stein et al., 2011)。

(3) 分析試料のサンプリング

採集した堆積物試料をドイツ・ポツダム地球科学センターに冷蔵輸送し、堆積物保管用の専用冷蔵庫で保管した。2011年から2017年の期間に計3回の試料の基本情報の取得、試料採集の合同作業(試料サンプリングパーティ)を企画、実施した。

塩ビ製の堆積物採集チューブから試料を取り出し、堆積物の基本的な化学的・物理的

特性である高解像度のデジタル画像、マイクロXRF元素プロファイル、地磁気強度プロファイルなどのデータを取得、分析用の試料の採集を行った。本研究で必要な陸上植物遺体化石・アラゴナイトの採集を実施した。

(4) 層序プロファイルの作成

ICDP5017-1地点では、複数の掘削穴から堆積物コアを採集した。高解像度のデジタル画像の解析を行い、コア間の関連づけ作業を行い、ICDP5017-1地点複合プロファイル(Composited profile)を作成した(Ina et al., 2014, Kitagawa et al., 2017)。また、死海周辺の露頭から得られている地質層序区分との関連づけを行った。このICDP5017-1地点複合プロファイル作成することで、炭素14年代測定結果を有効に利用することが可能となった(Kitagawa et al., 2017)。

(5) 試料の化学処理の適正の確認

FTIRスペクトル分析による外来炭素の混入の有無の確認・炭素安定同位体分析による陸上植物であることの確認を行った。経験的な方法であるが、今後追加実験を行い、試料の適正の確認法の確立を目指す。

(6) 約100試料の植物遺体化石加速器質量分析法による植物遺体化石の炭素14年代測定を行なった。最終氷期の炭素14年代キャリブレーションの検証が目的なので、厳密なバックグラウンド補正を行った。

(7) アラゴナイトのウラン系列年代測定

研究協力者であるコロンビア大学S. L. Goldstein及びA. Torfstein(博士研究員)らが中心となり堆積物中のアラゴナイトのウラン系列年代測定を実施した(Torfstein et al. 2013)。

(8) 情報共有ワークショップ

2014年には、関係研究者が得た研究成果(中間とりまとめ)の共有を目的としたワークショップを開催(イスラエル)。2017年には今までに研究を総括し、今後の研究の課題・方向性等を話題としたワークショップを開催した(ドイツ、ブレーメン)。

(9) 堆積物の基本的な化学的・物理的特性測定

堆積物中のアラゴナイトの炭素14年代測定(一部測定済み、データは未公開)結果を堆積物コアの編年・炭素14キャリブレーションデータの整備に使えるかとの検討(研究分担者、M SteinとBoaz Lazar)についてメール等を使い実施した。

(10) ICDP 5017-3地点からの堆積物コア

ICDP 5017-1地点での堆積物採集の不完全な層序を補完するために、死海湖岸(ICDP 5017-3地点)からの堆積物コアからの植物遺体化石の加速器質量分析法による炭素14年代測定を実施するとともに、2地点の堆積物の層序対比を行った(湖水面の高い時代に関しては、有効であることが確認された)。

4. 研究成果

(1) 化学処理法の検討

死海堆積物に含まれている植物遺体は、通常の化学的な処理（AAA 処理）を行うと、大部分が分解してしまう。高精度な炭素 14 年代測定を行う炭素量を確保することができない場合がある。堆積物コアの高分解能な炭素 14 データセットを得るためには、通常より“マイルドな化学処理”を行う必要がある。しかし、マイルドな化学処理では、二次的に混入した炭素（コンタミネーション）を完全に除去できていない可能性がある。化学処理が適正であることを確認する方法の確立が算できる体制を整えた。必要となった。本研究では、化学的な説明を与えるにいたらなかったが、FTIR スペクトルを比較することで、経験的であるが化学処理の適正を判断できることがわかった（本方法は、他の試料の炭素 14 年代測定にも応用可能と思われるので、追加実験後に論文として報告する予定である）。

(2) コンポジットファイルの作成

ICDP 5017-1 地点では、特に岩塩相のセクションでの試料回収率が著しく低く（現在の掘削技術では回収率を高めることは困難である）、6つの掘削穴から堆積物コアを採集した。大まかな対比に関しては Ina et al (2013)で報告した。その後、本研究の目的の1つの課題である、ICDP5017-1 地点での炭素 14 年代編年構築のため、センチメートル・スケールの層序対比を行った（図1 . Kitagawa et al., 2017）。

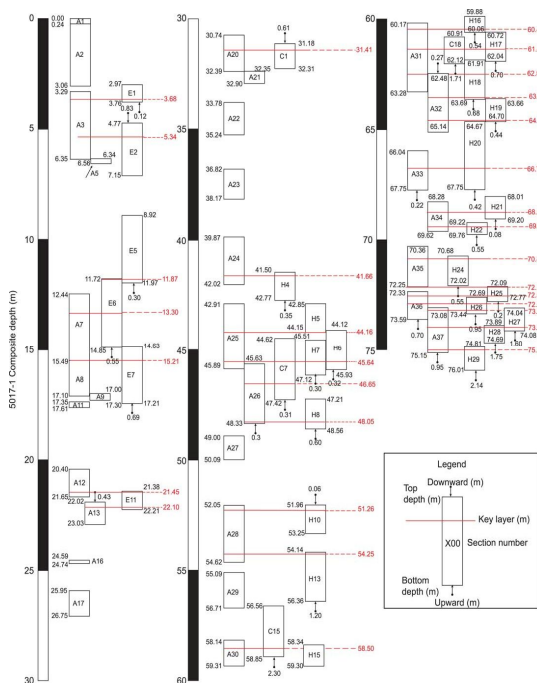


図1 . 堆積物コアの層序対比 (Kitagawa et al., 2017) . 赤いラインは、コア間の対比につかした鍵層である（詳細に関しては、Open Journal
<https://www.cambridge.org/core/journals/radiocarbon/article/radiocarbon-chronology-of-the-dsddp-core-at-the-deepest-f>

loor-of-the-dead-sea/B931AB84888D795618 64E31B71CCF19D を参照

(3) 年代深度モデルの構築

化学処理が適正に行われ、同位体分析及び植物遺体の形態解析から陸源植物であることが確認できた試料の炭素 14 年代を使い、上部 150 m に関して年代 深度モデルを構築した（図2）。本研究では、新たにモンテカルロ法をベースとした年代 層序関係を解析するソフト（統計言語 R を使ったソフト）を開発した。現在、本編年モデルは ICDP-DSDDP に参加した研究者の共通の編年フレームとして活用している。

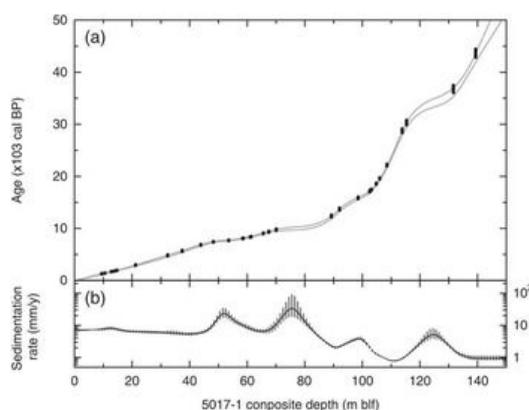


図2 (a) ICDP 5017-1 地点の堆積物の年代深度モデル(Kitagawa et al., 2017)。(b)堆積速度の推定。堆積速度は著しく大きい層準は岩塩が堆積している。

(4) アラゴナイトのウラン・トリウム年代 (Torfstein et al., 2013)

死海堆積物には、湖水から沈殿したアラゴナイトと風成塵起源（湖岸からの流れ込みを含む）のカルサイトが含まれている。風成塵起源のカルサイトは、乾燥地域（サハラ砂漠など）から飛来したものである。本研究を計画した時点で、炭素 14 年代及びウラン・トリウム年代へのカルサイトの影響は予見していたが、カルサイト含有率の時代変化が、年代測定に大きな問題を与えることが明らかになった。

試験的にアラゴナイトの濃縮層（カルサイトの相対寄与が低いことが予想される）のウラン・トリウム年代測定と炭素 14 年代測定を行った。炭素 14 年代測定は、炭酸塩試料のストロンチウムや酸素同位体測定結果を使い補正できる可能性がある（現在、詳細な検討を行っている）。ウラン・トリウム年代の測定の誤差を小さくするためには、アラゴナイトの含有量が高い試料をだけ年代測定の対象とする（時間分解能をあげることができない）、アラゴナイトとカルサイトを分離する、もしくはカルサイトの寄与の補正方法を考案する必要がある。現在、の方法の確立を目指した基礎実験を共同で行う

とともに、の方法を使いウラン・トリウム年代測定を実施している。炭酸塩試料の Sr や酸素同位体測定結果を使い補正する方法については、今後詳細な検討・考察を行い論文として報告する予定であり、本方法を過去の湖水の溶存無機炭素の時代変化（水文変化と関連する）を探るために利用する予定である。

(5) 炭素 14 年代キャリブレーションデータの検証

ウラン・トリウム年代測定に適した高純度なアラゴナイト層と保存状態のよい陸上植物遺体化石が含まれる層準が必ず一致していないことから、炭素 14 年代 深度の関係を示す数値モデルを作成した。現状では、アラゴナイトのウラン・トリウム年代の信頼性及び年代測定誤差が大きく、炭素 14 年代キャリブレーションデータ (IntCa113) を検証にするに至っていない。ただ、限られたデータであるが、IntCa113 及びアラゴナイトの年代測定の誤差を考慮すると、IntCa113 と整合的なデータが得られた。現在進めている新たなアプローチでのアラゴナイトのウラン・トリウム年代測定の結果が出そろったら、本研究成果を利用して、炭素 14 年代キャリブレーションデータの本格的な検証を行うこととした。また、DSDDP では、ICDP5017-1 地点だけでなく、ICDP5017-3 地点でも深層掘削を行い、現在、採集試料をドイツ・ブレーメン大学内のコアセンター (MARUM) で保存している。本研究で得た知見を活用して、ICDP5017-1 地点、ICDP5017-3 地点の解析を進めれば、炭素 14 年代キャリブレーションデータを更新するためのデータが得られると結論した。

引用文献

M Stein, Z Ben-Avraham, SL Goldstein (2011) Dead Sea deep cores: a window into past climate and seismicity. *Eos, Transactions American Geophysical Union* 92, 453-454
A Torfstein, SL Goldstein, EJ Kagan, M Stein (2013) Integrated multi-site U-Th chronology of the Last Glacial Lake Lisan. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 104, 210-31.
(その他の引用文献は、以下の主な発表論文等を参照のこと)

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 6 件)

[1] H Kitagawa, M Stein, SL Goldstein, I Nakamura, B. Lazar, and DSDDP Scientific Party (2017) Radiocarbon chronology of the DSDDP core at the deepest floor of the Dead Sea Radiocarbon 59(2) 383-394 (査

読有)

(<https://doi.org/10.1017/RDC.2016.120>)

[2] I Neugrbauer, A Brouer, MJ Sxhwab, P Dulski, U. Frank, E Hadzhilivannova, H Kitagawa, T Litt, V Schiebel, N Taha, ND Waldmann and DSDDP Scientific Party (2015) Evidences for centennial dry periods at ~3300 and ~2800 cal ye BP from macrofossil analyses of the Dead Sea sediments. *The Holocene* 25 1358-1371 (査読有)
(doi:10.1177/0959683615584208)

[3] I Neugrbauer, ND Waldmann, MJ Sxhwab, A Brouer, Y Enzel, H. Kitagawa, U Frank, P Dulski, A. Aragon, D Ariztegui Z. Ben-Avraham, SL Goldstein, M Stein (2014) Lithology of the long sediment record recovered by the ICDP Dead Sea Deep Drilling Project (DSDDP) Quaternary Science Reviews 102, 149-165 (査読有)
(doi: 10.1016/j.quascirev.2014.08.013)

[4] 北川浩之(2014) 炭素 14 年代法による高精度年代決定と編年モデル構築. *ぶんせき* 2014 年 2 月号、52-57 (査読無)
(<http://www.jsac.or.jp/bunseki/pdf/bunseki2014/201402nyuumon.pdf>)

[5] RA Staff, G Scholout, C Bronk Ramsey, F Brock, CL Bryant, H. Kitagawa, J. van der Plicht, MH Marshall, A Brauer, HF Lamb, RL Payne, PE Tarasov, T. Haraguchi, K. Gotanda, H. Yonenobu, Y. Yokoyama T. Nakagawa, Suigetsu 2006 Project Members (2013) Integration of the Old and New Lake Suigetsu (Japan) Terrestrial Radiocarbon Calibration Data Sets. *Radiocarbon* 55(2), 2049-2058 (査読有)
(DOI: 10.2458/azu_js_rc.v55i2.16339)

[6] 北川浩之 (2013) 水月年縞堆積物の ^{14}C 年代測定. *Isotope News* 2013 年 4 月号 15-19
(https://www.jrias.or.jp/books/pdf/201304_TRACER_TAKIGAWA.pdf)

[学会発表](計 10 件)

[1] H Kitagawa: M Stein: Present status of the ICDP DSDDP core chronology, DSDDP workshop 2017/1/12-13 (Bremen, Germany)

[2] 北川浩之、M. Stein: 死海深層掘削プロジェクト: レヴァント地域の気候変動. パレオアジア文化史学研究集会第 2 回 2017/2/11-12 (名古屋大学野依学術交流会)

[3] 北川浩之: レヴァント地方の過去 20 万年間の水文変動を探る—死海深層掘削プロ

ジェクト(ICDP-DSDDP) 砂漠学会(招待講演)2016/5/28-29 島根大学乾燥地研究センター

[4] 北川浩之: 初期ホモサピエンスの居住環境の探求. 第1回パレオアジア文化史学研究集会 2016/11/5-6 東京大学小柴ホール

[5] I Neugrbauer, A Brouer, MJ Sxhwab, P Dulski, U. Frank, E Hadzhilivannova, H Kitagawa, T Litt, V Schiebel, N Taha, ND Waldmann and DSDDP Scientific Party: Response to the 2800 years BP climatic oscillation in shallow- and deep basin sediments from the Dead sea European Geosciences Union General Assembly, 2015/4/12-17 (Vienna, Austria)

[6] H Kitagawa, M Stein, SL Goldstein, I Nakamura, B. Lazar, and DSDDP Scientific Party: Age depth model of the upper most 150 m section of ICDP core 6017-1 from the deepest point of Dead Sea north basin. Radiocarbon Conference 2015/11/16-20 (Dakar, Senegal).

[7] H. Kitagawa: Radiocarbon chronology of the DSDDP core. Ein Gedi 1st workshop 2014/12/8-12 (invited) (Ein Gedi, Israel)

[8] I Neugrbauer, A Brouer, MJ Sxhwab, P Dulski, U. Frank, E Hadzhilivannova, H Kitagawa, T Litt, V Schiebel, N Taha, ND Waldmann: The ICDP Dead Sea Drill Core: Chronology and implications for Levant climate change (Goldschmidt conference 2013, 2013/8/25-30, Florence, Italy)

[9] I Neugrbauer, MJ Sxhwab, A Brouer, U Frank, P Dulski, H Kitagawa, Y Enzel, ND Waldmann, D Ariztegui and DSDDP party: Micro-facis of Dead Sea sediments. European Geosciences Union General Assembly, 2013/4/7-12 (Vienna, Austria)

[10] I Neugrbauer, A Brouer, MJ Sxhwab, U Frank, P Dulski, ND Waldmann, D Ariztegui, H. Kitagawa, E Hadzhilivannova and DSDDP party: The ICDP Dead Sea Deep Drilling Project: An overview and the potential for high-resolution records of flood and droughts in the Levant. European Geosciences Union General Assembly, 2013/4/7-12 (Vienna, Austria)

〔図書〕(計3件、広報誌等を含む)

[1] 北川浩之(2015)「湖底の地層から炭素14時計を読み解く」理philosophia, 名古屋大学理学部・大学院理学研究科広報誌 28

8-11(査読無)

[2] 北川浩之(2015)「水月湖年縞プロジェクト過去5万年間の大気中の¹⁴CO₂変化」日本地球惑星科学連合ニュースレター11(2) 2015年5月号1-3(査読無)

[3] 北川浩之(2013)「第四紀研究における年代測定法の新展開:最近10年間の進展(1)放射性炭素年代 放射性炭素年代測定AMS法を中心とした最近10年間の進展」. 月刊地球 号外35(9)494-501 海洋出版(査読無)

〔その他〕

研究紹介ホームページ

<http://www.leis21.net>

ICDP-DSDDP ホームページ

http://www-icdp.icdp-online.org/front_content.php?idcat=825

6. 研究組織

(1)研究代表者

北川浩之(Hiroyuki Kitagawa)

名古屋大学宇宙地球環境研究所・教授

研究者番号: 00234245

(2)研究分担者

南 雅代(Masayo Minami)

名古屋大学宇宙地球環境研究所・准教授

研究者番号: 90324932

中村俊夫(Toshio Nakamura)

名古屋大学宇宙地球環境研究所・招聘教授

研究者番号: 10135387

(3)研究協力者(海外)

(ICDP-DSDDP 共同代表研究者)

Mordechai (Moti) Stein, Geological Survey of Israel, Geochemistry, Israel

Zvi Ben-Avraham, Tel Aviv University, Department of Geophysics, Atmospheric and Planetary Sciences, Israel

Steven L. Goldstein, Columbia University, The Earth Institute, Lamont Doherty Earth Observatory, USA

Hans Joachim (Achim) Brauer, German Research Centre for Geosciences, Section 5.2, Climate Dynamics and Landscape Evolution, Germany

Amotz Agnon, Hebrew University of Jerusalem, Institute of Earth Sciences, Israel

Gerald H. Haug, Max-Planck-Institute Mainz for Chemistry, Department of Climate Geochemistry, Germany

Daniel Raul Ariztegui, Université de Genève, Sciences de la Terre et de l'environnement, Limnogeology and Geomicrobiology, Swiss

Emi Ito, University of Minnesota at
Minneapolis, Department of Earth
Sciences, USA