

令和 6 年 6 月 19 日現在

機関番号：11501

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20H01369

研究課題名（和文）最新型AMS装置の高精度化による単年14Cスパイク年代決定法の研究

研究課題名（英文）Study of single-year 14C spike dating using a new compact AMS system with high precision

研究代表者

門叶 冬樹（Tokanai, Fuyuki）

山形大学・理学部・教授

研究者番号：80323161

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,600,000円

研究成果の概要（和文）：近年、太陽活動や太陽圏環境の変動の他、天体現象にともなうと考えられる突発的な宇宙線増加現象が、放射性炭素(14C)濃度の異常上昇（14Cスパイク）として過去に度々発生していたことが明らかになりつつある。本研究では、日本で発見された14Cスパイクを用いた新しい年代測定法を世界に先駆けて確立するために、1)最新型加速器システムを用いて単年輪中の14Cを高精度に分析するための研究開発、2)開発した装置を埋没林などの国産樹木の単年輪14C分析に応用し14Cスパイクを新たに検出する技術開発、3)14Cスパイク年代測定方法を様々な時代の考古木質遺物や古建築材、自然埋没林の年代決定に用いる応用研究を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

放射性炭素年代法は、放射性炭素(14C)濃度測定に特化したコンパクト型加速器質量分析（AMS）法の発明により、微量試料での高精度測定が可能となり飛躍的にその利用が広まった。近年、名古屋大学の三宅グループによって発見された天体現象にともなうと考えられる突発的な宇宙線増加現象が、14C濃度の異常上昇（14Cスパイク）として過去に度々発生していたことが明らかになりつつある。本研究の成果による、コンパクトAMSシステムを用いた高精度14C年代AMS測定から、新しい14Cスパイク年代を見出すことで、地域や樹種の差別化なく分解能1年の精度で文化財年代を決定する新しい年代法の応用が期待できる。

研究成果の概要（英文）：Recently, the measurements of radiocarbon(14C) concentrations in each annual ring of old trees using accelerator mass spectrometry (AMS) have revealed anomalous increases in 14C concentrations in the tree rings. This result indicates that anomalous increases in high-energy cosmic rays such as extreme solar energetic particle (SEP) events have occurred in the past. These sudden increase of 14C concentration is called 14C spikes or Miyake events. To utilize this Miyake events for new radiocarbon dating with high precision, we have developed a pixelated silicon detector (PSD) for the position-sensitive detector on a focal plane of an AMS system. In addition, we have been searching a new 14C spike using asunaro samples which were excavated in the Shimokita Peninsula Aomori Prefecture. We also applied this research to determine the age of archaeological woody artifacts, old building materials, and natural burial forests from various periods.

研究分野：原子核実験

キーワード：加速器質量分析

## 様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

放射性炭素年代法で用いられる炭素<sup>14</sup>(<sup>14</sup>C)は、宇宙線によって大気中で生成され、二酸化炭素として光合成により植物に吸収される。5730年の半減期をもつ<sup>14</sup>Cは試料に固定された後、経過時間とともに指数関数的に減少する。したがって試料中の<sup>14</sup>C濃度を測定することで、炭素が試料に固定された年代、すなわち試料の形成年代『炭素<sup>14</sup>(<sup>14</sup>C)年代』を算出することができる。大気中の<sup>14</sup>Cは宇宙線(陽子)と窒素との相互作用により生成されるため、試料中の<sup>14</sup>C濃度は地球磁場、太陽フレア、超新星爆発などに起因する宇宙線強度の変動に大きな影響を受ける(図1)。したがって、大気中の<sup>14</sup>C濃度は変化せず一定であったという仮定のもとに得られるモデル年代値『<sup>14</sup>C年代』と、試料が形成された歴史上の年代である『暦年代』とは1対1に対応しない。そのため考古学・文化財試料の暦年代は、<sup>14</sup>C年代を国際的に定められた基礎データベース「暦年較正曲線」に照合し、統計的手法を用いて求められている。暦年較正曲線は定期的にデータベースが更新され、現在、海洋の占める面積比率や炭素循環システムが異なる北半球・南半球用にそれぞれIntCal20およびSHCal20が用意されている。放射性炭素年代法は、<sup>14</sup>C濃度測定に特化したコンパクト型加速器質量分析(AMS)法の発明により、微量試料での高精度測定が可能となり飛躍的にその利用が広まった。AMSを用いた放射性炭素年代測定法の測定精度は、一般的なAMS測定で紀元前5000年までの試料に対して約30年程度である。また、100年以上の年輪を持つ試料から複数箇所の年輪を採取して<sup>14</sup>C年代を測定し、較正曲線の形状と比較して較正年代を絞り込む「ウィグルマッチ法」により10年の精度での年代決定が達成されているが、年輪年代学や酸素同位体比年輪年代学に匹敵する1年の精度が切望されている。

近年、名古屋大学の三宅グループ(分担者)は屋久杉1年輪毎の<sup>14</sup>C濃度分析から西暦775年と994年に突発的な宇宙線増加現象に起因する<sup>14</sup>C濃度の異常上昇(<sup>14</sup>Cスパイク)を検出し、その成果をNature誌に発表した。この特異的な<sup>14</sup>Cイベントは発見後すぐに『未知考古木試料を1年輪毎に分割して<sup>14</sup>C年代を測定し、異常上昇のあった較正曲線の形状に照合する<sup>14</sup>Cスパイク法』として新しい放射性炭素年代測定法に応用された。この他、紀元前660年や紀元前3371年にも新たな<sup>14</sup>Cスパイクが発見され、広い年代範囲における精度1年の<sup>14</sup>Cスパイク年代測定法が現実味を帯びてきた。

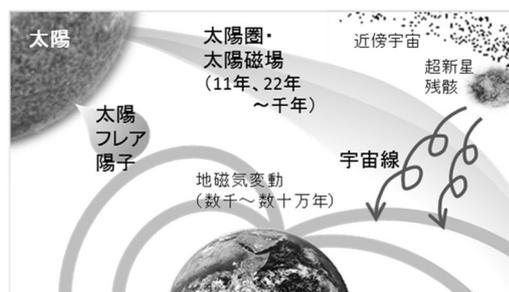


図1. 宇宙線強度変動の要因の概念図。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は本研究の目的は、山形大学、東京大学、パレオ・ラボ株式会社が有する最新型のコンパクト加速器質量分析(AMS)システム(図2)の高精度化の研究を行い、樹木1年輪毎に対する高精度<sup>14</sup>C年代AMS測定から、新しい<sup>14</sup>Cスパイク年代を見出すことで、地域や樹種の差別化なく分解能1年の精度で文化財年代を決定する新しい放射性炭素年代法を創出することである。試料調整は山形大学高感度加速器質量分析センターに整備された自動グラフィット作製装置を用いて行う。自動セルロス化装置の開発は東京大学博物館および歴史民族博物館の実験室を用いて行う。グラフィット試料の評価は本学に設置されている電子顕微鏡、安定同位体質量分析計装置、エネルギー分散型X線分光器などを用いて行う。

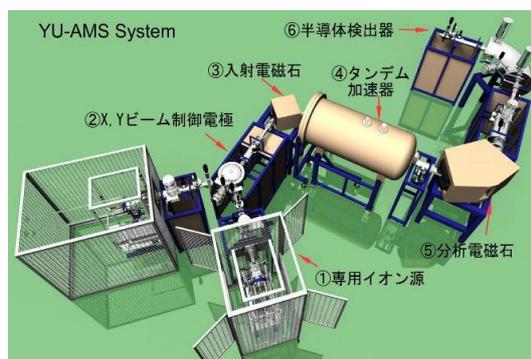


図2. 山形大学の最新型コンパクト加速器質量分析(AMS)システム。

### 3. 研究の方法

本研究では、日本で発見された<sup>14</sup>Cスパイクを用いた新しい年代測定法を世界に先駆けて確立するために、1)同タイプの最新型加速器システムを有する3つの加速器施設において、単年輪中の<sup>14</sup>Cを高精度に分析するための研究開発、2)開発した技術を屋久杉や埋没林などの国産樹木の単年輪<sup>14</sup>C分析に応用し<sup>14</sup>Cスパイクを新たに検出する技術開発、3)<sup>14</sup>Cスパイク年代測定

方法を様々な時代の考古木質遺物や古建築材、自然埋没林の年代決定に用いる応用研究を行った。

#### 4. 研究成果

山形大学、東京大学、パレオ・ラボが有する、同タイプの最新型コンパクト AMS システム (NEC 社製 0.5MV-1.5SDH) に対して、イオン源に設けた Cs 収束用レンズの電極構造と印加電圧の依存性をイオン光学設計ソフト SIMION 3D を用いて最適化した。次に、試料が装填されたカソードホイールの位置 (最大 40 個装填) に対する炭素  $^{13}\text{C}^+$  ビームの透過率を、球面電極型静電分析器、XY 方向に設けたビーム制御電圧、入射および分析電磁石の磁場強度をパラメータとして調べ、カソード位置に対する依存性を明らかにした。

ホイールの回転による  $\text{C}^+$  ビームの場所依存性に着目し、カソードの位置ごとに上述した装置のパラメータが設定できる装置開発として新たにコンパクト AMS (NEC 社製 1.5SDH-1) の焦点面に設置する位置有感型のシリコン半導体検出器の開発を行った (図 3)。開発したシリコン半導体検出器は 2 mm × 2 mm の電極を XY 方向に 8 × 8 の計 64 チャンネル配列したピクセル型の検出器である。開発したピクセル型半導体検出器の基礎特性試験を  $^{241}\text{Am}$  線源からの  $\alpha$  線を照射して行った。検出器のバイアス電圧が 41 V および 200 V のとき、5.486 MeV の  $\alpha$  線に対するエネルギー分解能 (半値幅) はそれぞれ 32 keV および 22 keV であった (図 4)。続いて開発したピクセル型半導体検出器を YU-AMS 装置の焦点面に設置して  $^{14}\text{C}$  ビームに対する特性試験を行った。その特性試験結果については、イオンビーム分析法に関する国際会議 (IBA&PIXE2023) で発表した。

国産樹木単年輪中からの  $^{14}\text{C}$  スパイク検出の研究については、青森県下北半島から採取されたアスナロ試料を用いて行った。使用したアスナロ試料は年輪年代が西暦 1191 年から 1330 年、1329 年から 1450 年のサンプルであり、各サンプルから 1 年輪試料を剥離し、セルロース抽出を行った後、山形大学高感度加速器質量分析センターに設置した自動グラファイト化装置を用いてグラファイト化を行い、AMS 測定から太陽活動に伴う  $^{14}\text{C}$  濃度変動が示唆された。

$^{14}\text{C}$  スパイク年代測定方法の文化財試料への応用研究については、唐古・鍵遺跡から出土した炭化物試料について AMS 測定を行い、その手法についての検討を行った。

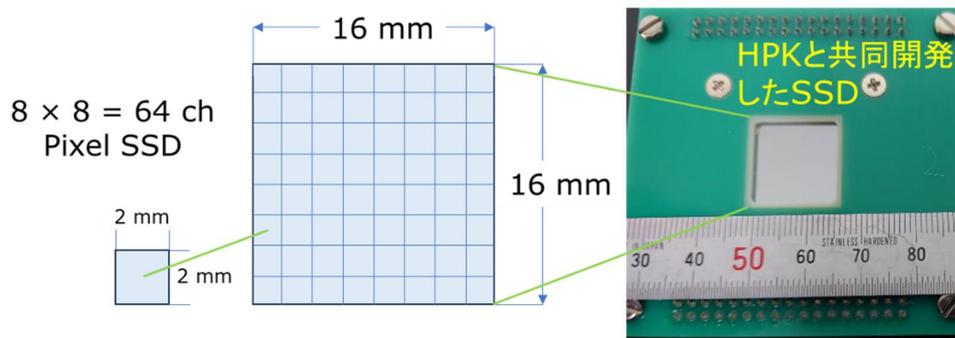


図 3. 開発した有効面積  $16 \times 16 \text{ mm}^2$  を持つピクセル型半導体検出器

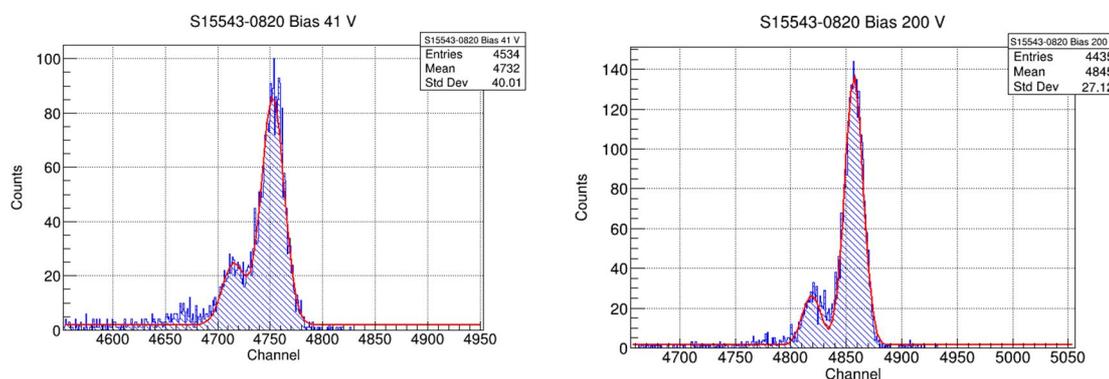


図 4. 開発したピクセル型半導体検出器の印加電圧が 41 V と 200 V のときに得られた  $^{241}\text{Am}$  の 5.486 MeV  $\alpha$  線に対して得られたエネルギースペクトル。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Miyake Fusa, Hakozaki Masataka, Kimura Katsuhiko, Tokanai Fuyuki, Nakamura Toshio, Takeyama Mirei, Moriya Toru	4. 巻 9
2. 論文標題 Regional Differences in Carbon-14 Data of the 993 CE Cosmic Ray Event	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Frontiers in Astronomy and Space Sciences	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3389/fspas.2022.886140	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Miyahara Hiroko, Tokanai Fuyuki, Moriya Toru, Takeyama Mirei, Sakurai Hirohisa, Ohyama Motonari, Horiuchi Kazuho, Hotta Hideyuki	4. 巻 49
2. 論文標題 Recurrent Large Scale Solar Proton Events Before the Onset of the Wolf Grand Solar Minimum	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Geophysical Research Letters	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1029/2021gl097201	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Segawa Takahiro, Yonezawa Takahiro, Mori Hiroshi, Kohno Ayako, Kudo Yuichiro, Akiyoshi Ayumi, Wu Jiaqi, Tokanai Fuyuki, Sakamoto Minoru, Kohno Naoki, Nishihara Hidenori	4. 巻 32
2. 論文標題 Paleogenomics reveals independent and hybrid origins of two morphologically distinct wolf lineages endemic to Japan	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Current Biology	6. 最初と最後の頁 2494 ~ 2504.e5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.cub.2022.04.034	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Miyahara Hiroko, Tokanai Fuyuki, Moriya Toru, Takeyama Mirei, Sakurai Hirohisa, Ohyama Motonari, Horiuchi Kazuho, Hotta Hideyuki	4. 巻 49
2. 論文標題 Recurrent Large Scale Solar Proton Events Before the Onset of the Wolf Grand Solar Minimum	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Geophysical Research Letters	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1029/2021GL097201	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Segawa Takahiro, Yonezawa Takahiro, Mori Hiroshi, Akiyoshi Ayumi, Allentoft Morten E., Kohno Ayako, Tokanai Fuyuki, Willerslev Eske, Kohno Naoki, Nishihara Hidenori	4. 巻 8
2. 論文標題 Ancient DNA reveals multiple origins and migration waves of extinct Japanese brown bear lineages	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Royal Society Open Science	6. 最初と最後の頁 210518 ~ 210518
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1098/rsos.210518	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Miyake F., Panyushkina I. P., Jull A. J. T., Adolphi F., Brehm N., Helama S., Kanzawa K., Moriya T., Muscheler R., Nicolussi K., Oinonen M., Salzer M., Takeyama M., Tokanai F., Wacker L.	4. 巻 48
2. 論文標題 A Single Year Cosmic Ray Event at 5410 BCE Registered in 14C of Tree Rings	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Geophysical Research Letters	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1029/2021GL093419	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 武山 美麗, 森谷 透, 櫻井 敬久, 宮原 ひろ子, 大山 幹成, 斉藤 久子, 門叶 冬樹
2. 発表標題 山形大学に導入した高感度加速器質量分析装置の現状 VI
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 武山 美麗, 森谷 透, 櫻井 敬久, 宮原 ひろ子, 門叶 冬樹
2. 発表標題 ハイマツ試料中放射性炭素濃度の年変動に関する研究 IV
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 武山 美麗, 森谷 透, 櫻井 敬久, 宮原 ひろ子, 門叶 冬樹
2. 発表標題 ハイマツ試料中放射性炭素濃度の年変動に関する研究III
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Mirei Takeyama, Toru Moriya, Hisako Saito, Hiroko Miyahara, Motonari Ohyama, Hirohisa Sakurai, Fuyuki Tokanai
2. 発表標題 Present status of the YU-AMS system and its operation over the past 10 years
3. 学会等名 The 15th International Conference on Accelerator Mass Spectrometry (AMS-15)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 武山 美麗, 森谷 透, 櫻井 敬久, 宮原 ひろ子, 大山 幹成, 斉藤 久子, 門叶 冬樹
2. 発表標題 山形大学に導入した高感度加速器質量分析報告V
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 武山 美麗, 森谷 透, 櫻井 敬久, 宮原 ひろ子, 大山 幹成, 斉藤 久子, 岡田 靖, 門叶 冬樹
2. 発表標題 山形大学に導入した高感度加速器質量分析報告 IV
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2021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	宮原 ひろ子 (Miyahara Hiroko) (00532681)	武蔵野美術大学・造形学部・教授  (32681)	
研究分担者	尾崎 大真 (Ozaki Hiromasa) (20399265)	東京大学・総合研究博物館・特任研究員  (12601)	
研究分担者	白石 哲也 (Shiroishi Tetsuya) (60825321)	山形大学・学士課程基盤教育機構・准教授  (11501)	
研究分担者	三宅 芙沙 (Miyake Fusa) (90738569)	名古屋大学・宇宙地球環境研究所・准教授  (13901)	

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
---------	---------