

令和 6 年 6 月 13 日現在

機関番号：11501

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2023

課題番号：20K13244

研究課題名（和文）ヒトの骨と歯に対する高確度年代測定法の開発研究

研究課題名（英文）Research and development of highly accurate dating methods for human bones and teeth

研究代表者

武山 美麗（Takeyama, Mirei）

山形大学・理学部・技術専門職員

研究者番号：80822668

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：考古学及び文化財科学の分野において、遺跡から出土するヒトの骨や歯は、先史時代の社会的・文化的側面と自然人類学的な関わりを明らかにしていく上で、極めて重要な試料である。しかし、遺跡からヒトの骨と歯の両方が発掘された場合でも、骨のみを年代測定の試料として選択し、放射性炭素年代測定が行われている場合が少なくない。本研究では、その出生及び死亡年代が判明している現代のヒトの骨と歯の試料に対して、加速器質量分析と元素分析型同位体比質量分析を行い、骨と歯のどちらの試料がより年代測定に適しているのかを調べた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

筆者が知る限り、これまで正確に出生及び死亡年代が判明している現代のヒトの骨コラーゲンと歯の試料を同時に用いて行った放射性炭素年代測定に関する研究報告はない。さらにその暦年代と食性を詳しく探究することで年代測定法をより高確度に行うことが期待される。

研究成果の概要（英文）：In the fields of archaeology and cultural property science, the human bones and teeth excavated from archaeological sites are extremely important samples for clarifying the social and cultural aspects of prehistory and their natural anthropological relationships. However, in many cases, even when both human bones and teeth are excavated from archaeological sites, only the bones are selected as samples for radiocarbon dating. In this study, accelerator mass spectrometry and elemental isotope ratio mass spectrometry were performed on contemporary human bone and tooth samples with known birth and death dates to determine whether bone or tooth samples are more suitable for radiocarbon dating.

研究分野：宇宙線物理学

キーワード：加速器質量分析 放射性炭素

1. 研究開始当初の背景

ヒトの骨や歯を用いて年代測定や食性分析を行う場合、骨については化学的風化作用に強い骨コラーゲンが、歯については歯牙コラーゲン、象牙質、エナメル質が試料として主に用いられる。年代測定では、その試料中の炭素同位体( $^{12}\text{C}$ : $^{13}\text{C}$ : $^{14}\text{C}$ )が、食性分析では炭素同位体比( $^{12}\text{C}$ : $^{13}\text{C}$ )と窒素同位体比( $^{14}\text{N}$ : $^{15}\text{N}$ )が測定される。炭素 14 ( $^{14}\text{C}$ ) は宇宙線と大気中の窒素 ( $^{14}\text{N}$ ) との相互作用により大気中に生成される (図 1)。生成された  $^{14}\text{C}$  は直ちに酸化されて二酸化炭素 ( $^{14}\text{CO}_2$ ) となり、大気中の二酸化炭素と混合し、光合成・食物連鎖によって植物・動物の生体内に移行する。炭素 14 は 5730 年の半減期をもつ放射性同位体で、一定の割合で  $^{14}\text{N}$  に崩壊する。大気中に生成される  $^{14}\text{C}$  の個数と崩壊により減少する  $^{14}\text{C}$  の個数とが平衡状態であれば、大気中の  $^{14}\text{C}$  濃度は時間的に変動しない。このため、炭素が試料に固定されて閉鎖系に入る際の  $^{14}\text{C}$  濃度の初期値は、その時の大気中の  $^{14}\text{C}$  濃度に等しく、固定された後は経過時間と共に指数関数的に減少する (図 2 赤線)。したがって試料中の  $^{14}\text{C}$  濃度を測定することで、炭素が試料に固定された年代、すなわち試料の放射性炭素年代を算出することができる。

しかしながら、大気中に生成される  $^{14}\text{C}$  の割合は、地球磁場、太陽フレア、超新星爆発などを起因とする宇宙線強度の変動に大きく影響を受けるため、試料中の  $^{14}\text{C}$  濃度の初期値は炭素が試料に固定された時代の宇宙線強度の変動を受けて変化する。このため、大気中の  $^{14}\text{C}$  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の放射性炭素年代と、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。そこで、考古学・文化財試料の暦年代を  $^{14}\text{C}$  年代から求めるため、国際的に定められた基礎データベースが北半球 (IntCal20: 図 2 青線) 及び南半球 (SHCal20: 図 2 緑線) の「暦年較正曲線」として用いられている。一方、海洋生物の  $^{14}\text{C}$  濃度は、海水循環の影響による海洋リザーバー効果のため、大気中よりも低い値を持ち、同時代の陸域の生物と比較して平均的に約 400 年の差が放射性炭素年代として生じる。このため、海洋性の試料の場合は暦年較正曲線として Marine20 (図 2 水色線) が用いられている。

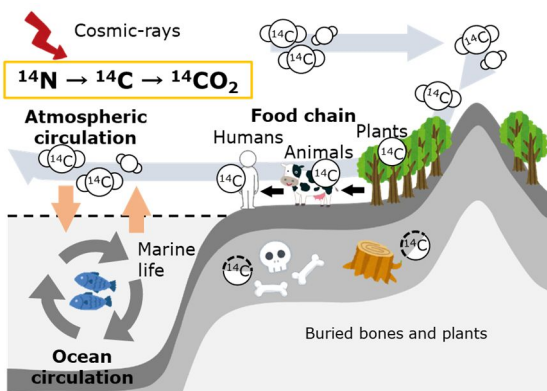


図 1.  $^{14}\text{C}$  の生成とサイクル

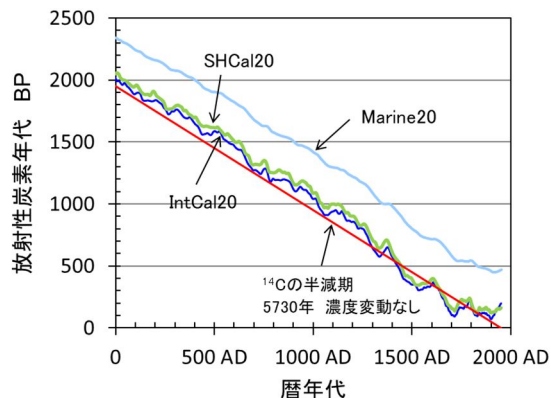


図 2. 放射性炭素年代と較正曲線

多くの人間は陸上と海洋起源の食物を摂取して生活するため、骨や歯には当時の大気中の  $^{14}\text{C}$  濃度とそれよりも濃度の薄い(年代の古い)海洋性の両方の  $^{14}\text{C}$  が含まれていることになる。このため、骨や歯の放射性炭素年代測定から暦年較正を行った場合、実際の年代よりも古くなることが予想される。この場合、放射性炭素年代測定における測定誤差 ( $\pm 20$  年程度) に骨や歯のコラーゲンの同位体比から食性を復元するモデルの不確実性と海洋リザーバー効果の地域差による不定性が加わり、その年代決定精度は 200 年を超える場合があることから、より確度の高い年代決定精度が求められている。

近年、法医学分野での応用に向けた歯のエナメル質の  $^{14}\text{C}$  年代測定がネイチャー誌に発表され注目を集めている (Spalding et al., Nature 2005)。歯のエナメル質は幼少期までに形成されその後代謝しないことと、後述する核実験の影響を反映した大気中の  $^{14}\text{C}$  濃度曲線 (Bomb 曲線) との関係から (図 3)、 $\pm 2$  年程度の測定誤差で身元不明遺体の出生年の同定が可能となり、法医学の実務レベルでの応用が展開されている。この事実、歯のエナメル質の形成に関わる炭素は、海洋中の  $^{14}\text{C}$  濃度の影響を受けず、陸上の動植物に強く依存しており、遺跡から出土したヒト由来の年代を決定する上で歯のエナメル質が最も適した試料であることを示唆している。しかしながら、遺跡からヒトの骨と歯の両方が発掘された場合でも、骨のみを年代測定の試料として選択し、放射性炭素年代測定が行われている場合が少なくない。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、その出生及び死亡年代が判明している現代のヒトの骨と歯の試料に対して、加速器質量分析（AMS）と元素分析型同位体比質量分析（EA-IRMS）を行い、得られた放射性炭素年代測定と食性解析の結果から、遺跡から出土したヒトの骨と歯を試料に用いた場合の年代測定法の最適化の研究を行うことである。

図3に1950年以降の大気中<sup>14</sup>C濃度を示す。1945年以降の約20年間に数多くの大気中核実験が行われた（図3第二軸）。その結果、大気中の<sup>14</sup>C濃度はそれ以前と比べて2倍近くまで急上昇した。その後、大気中核実験が禁止され、<sup>14</sup>C濃度は海洋への吸収効果によって、急速に減少している（Bomb曲線）。このBomb曲線による<sup>14</sup>C濃度の急速な変化を用いれば、ヒトの骨と歯の試料に対する高確度な年代測定法を行うことができる。

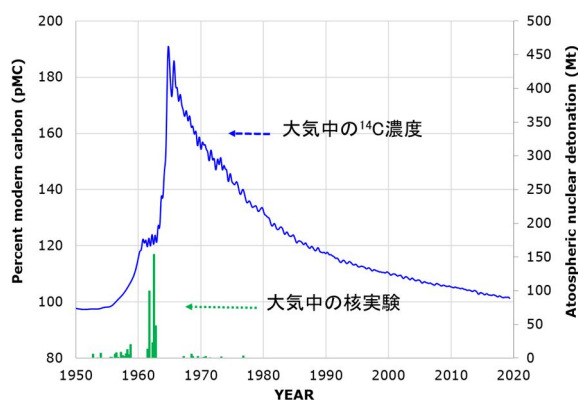


図3. 1950年以降の<sup>14</sup>C濃度

## 3. 研究の方法

試料については、千葉大学大学院医学研究院の斉藤久子准教授（当時）より、同大学院倫理審査委員会の承認の上で提供を受けた。

(1) 骨試料は、歯科技工士用マイクロモータを使用して1g程度切り分け、表面の汚れを物理的・化学的に除去した後、塩酸中で脱灰を行って骨コラーゲンを得た。

(2) 歯試料は、表層の付着物を歯科用切削機器で除去後、歯冠部と歯根部に切断し、歯冠部を近心歯冠部と遠心歯冠部に縦断に分割した。歯冠部の半分はエナメル質のみを単離し、残りの半分は歯冠部全体を使用した。

(3) それぞれの試料を山形大学高感度加速器質量分析センターの元素分析装置で燃焼し、90%のCO<sub>2</sub>ガスを専用ガラスラインで自動回収し、鉄を触媒とした水素還元反応（CO<sub>2</sub>+<sup>2</sup>H<sub>2</sub>→C+<sup>2</sup>H<sub>2</sub>O）によってグラファイトに精製した。残りの10%のガス（CO<sub>2</sub>ガスとNO）を質量分析計（IRMS）に送り、炭素（δ<sup>13</sup>C）・窒素（δ<sup>15</sup>N）安定同位体比の測定を行った。

(4) 精製したグラファイト試料を専用カソードに装填し、そのカソードをAMS測定専用のホイールにセットし、同センターの最新型AMS装置を用いて<sup>14</sup>C濃度を測定した。

## 4. 研究成果

歯試料の<sup>14</sup>C濃度測定について、今まで報告されていた研究ではほとんどが大白歯を使用していたが、本研究では単根で抜歯しやすい下顎第一小臼歯を使用した。下顎第一小臼歯の歯冠部完成期間は男性では5.3年、女性では5年で、エナメル質と歯冠部全体の測定により得られた暦年代よりこの期間を差し引くことで出生年を推定することができる。暦年較正には<sup>14</sup>Cの半減期としてLibbyの半減期5568年を使用し、較正曲線データとして暦年較正結果が1950年より前の試料についてはIntCal20、1950年以降の試料についてはBomb13NH2を使用した。5本のエナメル質においては、実際の出生年と推定した出生年との絶対誤差が1.0年から8.8年の範囲内であったのに対し、7本の歯冠部全体における絶対誤差は0.1から4.0年の範囲内であり、下顎第一小臼歯の歯冠部全体を使用した場合も出生年の推定が可能であることがわかった。この結果はJournal of Forensic and Legal Medicineに掲載された。

骨試料は頭蓋骨、上腕骨および大腿骨のコラーゲン試料を測定した。これらの結果については、さらに個体数を増やした上で、すみやかに成果を公表する予定である。

## 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 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Tokanai Fuyuki, Moriya Toru, Takeyama Mirei, Kuramoto Kosaku, Morimoto Kouji, Kaji Daiya, Nakamura Kentaro, Itoh Shigeru, Kosugi Kazumasa	4. 巻 552
2. 論文標題 Development of pixelated silicon detector for AMS study	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms	6. 最初と最後の頁 165353 ~ 165353
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2024.165353	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 Saitoh Hisako, Takeyama Mirei, Moriya Toru, Yusa Kazuyuki, Minegishi Saki, Torimitsu Suguru, Chiba Fumiko, Hoshioka Yumi, Nagasawa Sayaka, Iino Mitsuyoshi, Sakurada Koichi, Iwase Hiroto, Tokanai Fuyuki	4. 巻 100
2. 論文標題 Usefulness of powdered crown of mandibular first premolars in birth year estimation by radiocarbon dating	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Forensic and Legal Medicine	6. 最初と最後の頁 102607 ~ 102607
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jflm.2023.102607	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 Takeyama Mirei, Moriya Toru, Saitoh Hisako, Miyahara Hiroko, Miyake Fusa, Ohyama Motonari, Sato Rimi, Shitara Rie, Sakurai Hirohisa, Tokanai Fuyuki	4. 巻 538
2. 論文標題 Present status of the YU-AMS system and its operation over the past 10 years	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms	6. 最初と最後の頁 30 ~ 35
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2023.01.021	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7件（うち招待講演 0件/うち国際学会 3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、三宅 美沙、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 VII
3. 学会等名 2024年 第71回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Mirei Takeyama, Toru Moriya, Hisako Saitoh, Hiroko Miyahara, Fusa Miyake, Motonari Ohyama, Hirohisa Sakurai, Fuyuki Tokanai
2. 発表標題 Present status of the YU-AMS system in 2023
3. 学会等名 The 9th East Asia Accelerator Mass Spectrometry Symposium (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Fuyuki Tokanai, Toru Moriya, Mirei Takeyama, Kosaku Kuramoto, Kouji Morimoto, Daiya Kaji, Kentaro Nakamura, Shigeru Itoh, Kazumasa Kosugi
2. 発表標題 Development of Pixelated Silicon Detector for AMS Study
3. 学会等名 IBA&PIXE2023 (国際学会)
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, 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 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, 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 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) (国際学会)
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, 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
---------------------------	-----------------------	----

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