

^{14}C 年代測定における誤差の起源とその補正

小元 久仁夫*

1. はじめに

放射性炭素 (^{14}C) 年代測定法は Libby *et al.* (1949), Anderson *et al.* (1951), Libby (1955) らによって考案され, その後多くの研究者によって測定技術の改良が行われてきた. 1970年代後半に Purser *et al.* (1977), Müller (1977), Nelson *et al.* (1977), Bennet *et al.* (1977および1978) らによって考案された加速器を使用する新しい技術が導入され, 今日では「mgサイズ」の純炭素で年代決定が可能になっている. このため ^{14}C 年代は, 考古学や地質学分野にとどまらず, 多岐にわたる学問分野 (小元, 2002) で使用されている.

木越 (1965) は「実際に測定された年代と, 知りたい年代とのくい違いは試料によってはかなり大きいこともある. この点は, その試料が関係している個々の学問分野, 考古学, 地質学, 人類学などの問題で, ^{14}C 年代測定と, それぞれの学問の丁度中間にあるため, 両方であまり重視しない傾向があり, そのために重大な誤りがでるおそれが充分にある. それぞれの学問分野で知りたい年代を測定するためには, どのような試料が最も ^{14}C 法に適しているかを判定するには, それぞれの学問の専門家であると同時に, ^{14}C による年代測定についての基礎的な知識をもっていることが必要であろう」と述べた. 小元はこの文章を, はじめて読んでから40年以上経過した今日でも実に鮮やかに覚えている.

1965年に小元が勤務したばかりの東北大学理

学部には ^{14}C 年代測定装置が納入され, 地理学教室が管理運営することになった. そして自然地理学講座主任の西村嘉助教授から ^{14}C 年代測定装置の稼動とルーチンに向けての準備を命じられた. その後1987年に日本大学に勤務するようになったが, 着任後まもなく日本大学においても ^{14}C 年代測定の業務にたずさわることになった. 以後これまで3年ごとに開催される ^{14}C 年代測定国際会議に出席して研究発表を行い, また欧米の30箇所以上の ^{14}C 年代測定機関を訪問して各国の科学者から最新の ^{14}C 年代年代測定技術を学んできた.

これまでに多くのユーザー (^{14}C 年代測定のユーザー, あるいはデータの使用者) と依頼・受託の研究を通じて接してきたが, 測定者が十分に理解していることであっても, ユーザーには ^{14}C 年代測定はいまだ「Black Box」と感ぜられる所があり, 不可解な点が多いとの感想を持っている. しかしその原因の一つは, 明らかにユーザー側の不勉強にあると言えるかもしれない. そこで今回, 年代測定者であり, かつデータの使用者としての立場から, 標題について考察した結果を報告する.

^{14}C 年代測定によって決定された年代がユーザーの推定年代と大幅にずれている場合, そのデータを解釈する上で検討しなければならない2つの問題点があると思われる. 1つは試料とした堆積物や遺跡の出土品が, 露頭 (発掘現場) でどのような層準にあったかということと考古学的な意義 (位置付け) である. もう1点は, 知りたい

キーワード: 放射性炭素 (^{14}C) 年代測定, 誤差, 暦年較正, IntCal, 日本大学年代測定室

* 日本大学文理学部

年代や出来事が起こって以来の経過時間を、測定試料が1点の場合に正確に示しているかという点である。はじめの問題点に対しては、通常の精度で行った1個の年代で層準を正確に決定することは到底できない。また2番目の問題点については、できるだけ良い精度を得るため複数の試料による測定が必要であるといえる。

年代測定者とユーザーとの間で測定結果について議論することは有意義である。すなわち年代測定のためにユーザーが提供した試料が、本当に十分な試料であったかどうか。ユーザーが知りたい目的とした年代を与えてくれる試料として十分であったかどうかなどが議論の核心部となる。以上の諸点は、当初の推定年代と矛盾する年代が出た時に問題解決を手助けしてくれるであろう。

しかしユーザーが期待した年代が得られなかった場合、その原因をどのように検討すればよいのだろうか。その原因として年代測定の原理 (¹⁴C

の生成率や計算式の定数など) に問題がある場合、測定試料そのものに原因がある場合、そして年代測定室(者)側に問題がある場合などの諸例について順次検討した結果を報告する。

2. ¹⁴C年代測定の原理と測定試料

¹⁴Cは大気圏上部で宇宙線と窒素原子との核反応で生成される(図1)。¹⁴Cは酸素原子と結合し二酸化炭素となり、大気の大循環作用により地球上いたるところで等濃度で分布すると考えられた。また二酸化炭素は、海中にも溶解して存在する。

生物は大気中や海水中から呼吸作用や栄養源として¹⁴Cを含む化合物を体内に取り入れて成長している。生物が死亡後の経過時間は、次式から求めることができる

$$t = \{(T_{1/2})/\ln 2\} \cdot \ln \{(S-B)/(N-B)\} \dots (1)$$

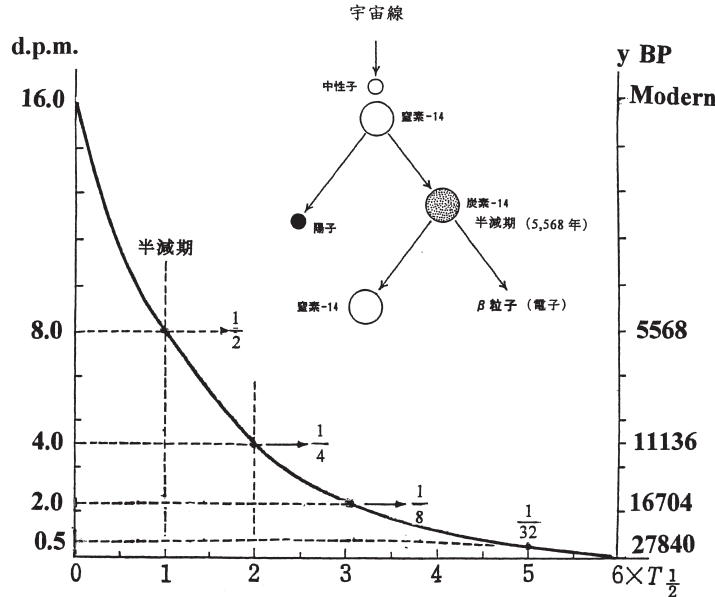


図1 ¹⁴C年代(右)と¹⁴Cの平均壊変率(左:d.p.m.)との関係を示す模式図

横軸は半減期数を示す。試料の平均壊変率が1/2ずつ減少すること、年代が半減期(5,568年)ずつ古くなることを示す。右上の図は、¹⁴Cの誕生から壊変(消滅)までを示す。

上式において t は経過時間, $T_{1/2}$ は ^{14}C の半減期 (5,568 年) で λ を壊変定数とすると $\lambda = \ln 2 / (T_{1/2})$ と表記される. N は年代未知試料, S は標準試料 (N.B.S.), B はバックグラウンドの各 β 線計数率である. 年代測定装置や測定方法にもよるが, 測定可能な年代範囲は, およそ 150 年前から 65,000 年前位までである.

^{14}C 年代測定が可能な試料は, 樹幹, 木片, 木炭, 骨, 貝化石, 化石サンゴおよび泥炭などが一般的である. また, 紙片, 漆, 綿糸, 絹糸, 動物の体毛, 髪または皮膚, 河成および湖成堆積物, 海成堆積物, 鍾乳石, 炭酸塩, 土壌構成物質なども測定できる. 炭素を全く含まない物質の年代測定は不可能であるが, 土器や陶器を焼いた時や使用したときに付着した「煤」は, それが化石燃料によるものでない限り年代測定試料となる.

3. 測定原理に関連する誤差

3.1 ^{14}C の生成率の変動

^{14}C 年代測定法が考案された当時, 宇宙線との核反応により生成される ^{14}C の生成率は一定であり, 大気の大循環により地球上いたるところで一定の ^{14}C 濃度を示すと考えられていた. もしも ^{14}C の生成率が異なれば, ^{14}C 濃度が変化し, その結果試料は正しい ^{14}C 年代を示さなくなる. ^{14}C は宇宙線との核反応で生成されるため, 宇宙線強度や地球磁場の変動があれば ^{14}C の生成率は変動する (Willis *et al.*, 1960; Vogel, 1983). 温帯地方の樹木は 1 年に 1 輪の割合で年輪を累積している. このため宇宙線強度や地球磁場の変動がなければ, 伐採年代の明らかな年輪を 1 枚ずつ剥がして, これを試料として ^{14}C 年代測定を行えば, 伐採年代以前の年輪と, その ^{14}C 年代は一致するはずである. もしも両者が一致しなければ, また疑似年輪や, 欠損部分がないことが明らかであれば, 年輪年代と ^{14}C 年代との食い違いから『 ^{14}C 年代の狂い』を指摘できる.

年輪試料の ^{14}C 濃度変化の研究事例として, 木越 (1966) による屋久杉の年輪を測定した先駆的

な研究がある. この種の研究によって, 過去に起こった ^{14}C の生成率の変動 (図 2) が ^{14}C の時間尺を狂わせていることが明らかにされた.

3.2 人間の活動による ^{14}C 濃度の変動

人間活動が自然界における ^{14}C 濃度を希釈 (低下), または濃縮 (増大) させたことによる ^{14}C 年代の狂いは, 「スース効果 (Suess effect)」 (Suess, 1955, 1970; Stuiver and Quay, 1981) および「Bomb Effect (爆弾効果)」と呼ばれている (De Vries, 1958). 前者は人類が石油や石炭といった ^{14}C を全く含まない化石燃料を大量に使用したためであり, 18 世紀以降にその結果が顕著になり始めた. 一方後者は, 人類が 1955 ~ 1966 年間に大気圏内で活発に行った大規模な核実験の結果である (図 3). 大気圏内で行われた原水爆実験により, 莫大な量の人工放射性物質 (^{14}C を含む) が対流圏や海洋に拡散した.

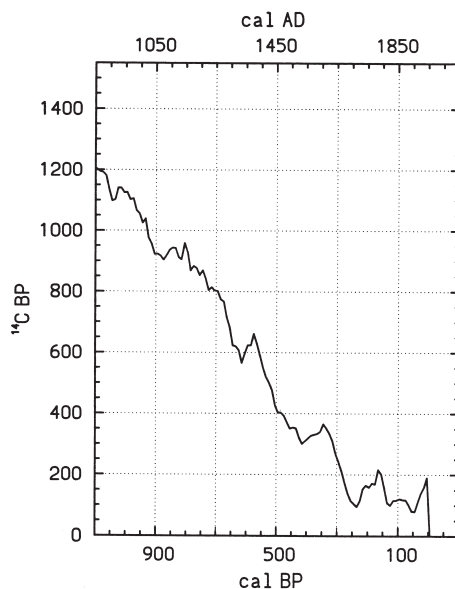


図 2 年輪年代 (Cal BP) と ^{14}C 年代 (^{14}C BP) の比較の例 (Stuiver *et al.*, 1998 による)

^{14}C 年代と年輪年代が 1 : 1 の関係にあれば, グラフは左上がりの直線となる. グラフの凹凸は ^{14}C の生成率の不規則, すなわち宇宙線強度の変化や地球磁場の変動を示唆すると解釈されている.

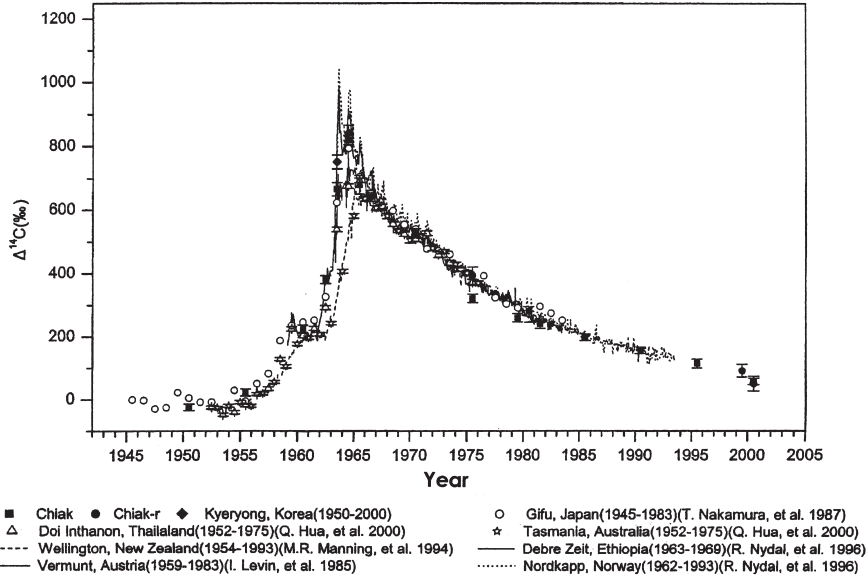


図 3 核実験による¹⁴C濃度 (Δ¹⁴C) の変化 (Park, *et al.*, 2002 による)

南・北両半球の自然界における¹⁴C濃度の変動を示す。大気圏内で行われた核実験により自然界に放出された大量の人工¹⁴Cは、1964年頃にピークを示した。その後大気圏内の核実験は世界的に禁止されたが、2005年現在でも¹⁴Cレベルは1950年以前の濃度に戻っていない。

3.3 統計誤差・年代計算式の定数

β壊変はランダム現象であるから、¹⁴C年代は統計誤差を併記して信頼できる範囲が表記される。多くの¹⁴C年代測定室では、試料の計数率の標準偏差 (Standard Deviation) に相当する年代を付加誤差として併記しているが、その確率は68.3% (±σ) である。Scott *et al.* (1984) は、実年代と測定値との差が付加誤差の2倍以上大きい場合があることを報告している。

(1) 式中には、S (標準試料の数値) が「定数」となっており、アメリカ合衆国商務省 (U.S.A. National Bureau of Standards) によって調製されたNBS1 (NIST Ox I : 蔞酸) が使用されてきた (Olsson 1970)。この数値は¹⁴C年代測定の計算式に入っている「定数」であり、この数値が正しくなければ¹⁴C年代が狂うことになる。

また (1) 中の¹⁴Cの半減期の値 (Libby *et al.*, 1949; Godwin, 1962; Olsson *et al.*, 1962) も、年代計算式の定数となっているため非常に重要であ

る。Libbyは5,568年という数値を半減期として使用したが、その後の研究により5,730 ± 40年 (Watt *et al.*, 1981) の方がより一層妥当であると言われている。Libby's valueから新しい半減期を使用した年代へ変換したい場合、その年代を1.03倍すればよい。

4. 測定試料に起因する誤差

4.1 生物固有の年代差

¹⁴C年代は、試料に含まれる炭素が大気中または海水中に含まれる二酸化炭素の¹⁴C濃度と平衡状態にあった最後の時 (すなわち生物の死亡) からの経過年代を示している。この場合、ある自然現象 (例えば大地震、大洪水、地滑り、噴火など) が発生した時に死亡した比較的短命な生物を測定試料とした場合には、その現象の発生年代と生物の死亡年代とはほとんど同時期とみなせるであろう。このような試料は、動物の骨・穀物・木の実・貝化石・年輪などである。

厳密に言えばある出来事の発生日代を正確に示す試料が常に存在するとは限らない。その理由の一つは試料とした生物遺骸が生存中にすでに固有の年代を有したことに起因する。この問題は木片や木炭を試料としたときに生ずる。すなわち遺跡で木片や木炭が発見された場合、古代人によって使用中に堆積したとしても、すでにその木片や木炭は数年～数百年に達する生物学的年代(年輪)差を有していた可能性が残るためである。この年代が不明の場合、遺跡の使用年代を正確に決定することは不可能である。

したがってどうしても暦年代に近いより正確な年代を必要とする場合には、試料によって上述のような「年代のズレ」があらかじめ生ずることを承知すべきである。そしてできるだけ正確な年代を得るためには単年性の木の実であるドングリ・クリ・クルミなどを試料として選択しなければならない。

4.2 起源の異なる炭素の混入

河成堆積物や湖成堆積物に含まれる試料(木片・木炭・泥炭・有機質粘土など)は、広く異なる起源と年代を有する炭素含有物質を含んでいるため必ずしも良い試料とは言えない場合がある。また木炭や木片、その他の有機物の細粒物質は、一般に長距離にわたり運搬されて、最後により新しい堆積物と一緒に堆積する。また試料(有機物)自体水や風によって運搬され、土壌中の割れ目、小動物や昆虫の作用により、垂直的にも水平的にも移動する。湖岸や海岸に近い堆積物の中には、はるか上流から運搬された物質が混在している。このため石炭や頁岩のような粉末が入っていると測定不能な古い年代となる場合もある。氷河は石灰岩や炭酸塩などから成る岩盤を侵食している場合があり、その堆積物は古い炭素を含む混合物となっている。また地下水は移動に伴って、遠方の試料を汚染させている場合もある。いずれの場合もユーザーが期待するような正しい年代を得ることはできない。

4.3 貯蔵効果(Reservoir effect)

β 線を測定して計算された生の年代は、その試料の安定同位体($\delta^{13}\text{C}$)を質量分析装置によって測定し、標準化(1950年生育相当樹木の安定同位体比と同じに補正)することにより、同位体分別は除去される(Stuiver and Polach, 1977)。しかし試料が湖成堆積物、北極や南極の試料、魚介類などの場合、元来大気中の $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ が異なる炭素貯蔵システムの混合による影響を受けている。試料がこのような特異な炭素の貯蔵環境にあった場合、安定同位体比による補正を行っても、標準化されない。このような場合、“貯蔵効果(reservoir effect)”の影響を受けたと判断する。

大気中の二酸化炭素が、海水中に溶解し平衡状態に達するのに時間がかかり(Rafter and O'Brien, 1970)、また深海からの湧昇流のある場所や大河川の河口の近くでは、湧昇流や河川水の希釈効果のため、これらの海域から採取した試料は正しい年代を示さない。海棲の貝化石や化石サンゴに対する補正年代(R)は、中緯度では約「400年」とされ(Stuiver *et al.*, 1998b)。高緯度(図4)では「1,000年をこえる補正」が必要とされる(Broecker and Olsson, 1961; Mangerud, 1972; Omoto, 1972, 1982; Mangerud and Gulliksen, 1975; Head *et*

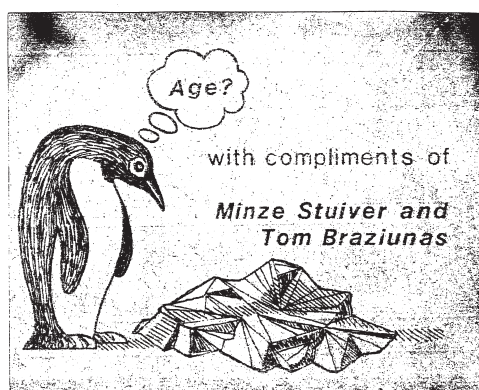


図4 ペンギンのつぶやき

1983年にワシントン大学第四紀研究所を初めて訪問したとき、Prof. M. Stuiverが小元に別刷りと一緒に渡した紙片。南極のペンギンは、“Reservoir effect”のため、生まれた瞬間に何と「400～800歳」になる!

al., 1983). また上述の地域では、さらに局地(地域)的な補正(ΔR)も必要である。

5. 年代測定室側に起因する誤差

5.1 試料の化学処理

年代測定室に起因する誤差には、化学処理法に起因する誤差、実験者が測定機器の値を間違えて読み取った場合やデータの誤入力により生ずる誤差、測定機器の経年変化による誤差、プログラムのバグなどがある。年代測定室側に起因する誤差の有無は、あらかじめ年代の明らかな試料(1950年以前に伐採された木材の年輪など)の年代測定を行えば確認できる。しかし古い年代試料については、付加誤差が大きくなるため実験上の誤りを発見することはなかなか困難である。

試料の化学処理法が、年代測定室によって異なれば、測定値そのものにも差異を生ずる場合がある。事実化学処理法の差異により生ずる年代差は併記される誤差($\pm 1\sigma$)の範囲を大きく超えている(例えば、Goh and Pullar, 1977)。したがってどのような化学処理法を採用しているかによって真の年代よりも新しい年代となったり、逆に古い年代となったりすることがある。どのような化学処理法が良いかどうかは、学会誌を熟読したり、国際会議に出席したり、諸外国の年代測定機関を訪問したりして、そのノウハウを研修する以外具体的な処方箋はないと思われる。小元は上記の方法によりわが国で既存の年代測定機関に先駆けて1980年以降3A法を導入してきた。3A法とは木片・木炭・泥炭・埋没土壌などの試料について、まず弱酸処理を行い、次いでアルカリ処理を行い、最後に強酸処理を行う化学処理法である。この手法は海外の多くの年代測定室で使用されている。

5.2 ¹⁴C年代のクロスチェック

すべての年代測定室が同一の測定機器を使用していれば、測定機器の取り扱い上で生じた誤差の確認は容易かもしれない。しかしすべての、年代

測定室が同一製品を使用しているとは限らない。このため年代計算に入力する測定データは同一値とはならない。

同一試料を複数の年代測定室で測定した場合、年代測定室間でどれくらいの年代差が生じているかについて検討した試み(クロスチェックと呼ぶ)が行われてきた。国際的規模の¹⁴C年代比較実験に参加している年代測定室は、データのとりまとめをする年代測定室(主催者)から送られてきた一連の試料をそれぞれの年代測定室側の技術にもとづき前処理、化学処理、計測、データ処理などを行っている。この実験が開始された時、この研究に参加した、年代測定室は20であったが、その後もずっと同じ研究室がこのプロジェクトを継続している。これらの実験結果は、参加した年代測定機関名を明らかにして*Radiocarbon*誌上に公表されている。

これまでに行われた研究成果は、Currie and Polach (1980); Otlet *et al.* (1980), International Study Group (1982), Scott *et al.* (1984), Mann (1983) などにより報告されてきた。その後の報告は3年ごとに開催されてきた¹⁴C年代測定国際会議の*Proceedings*に一連の成果が報告されている。第3回(TIRI)および第4回目(FIRI)の国際間実験に関する比較研究の成果は、*Radiocarbon*, Vol.45, No. 2 (Scott *et al.*, 2003) に特集号としてその詳細が公表されている。第5回目は2004年に行われ、その成果はまもなく公表されるであろう。これまでに行われた実験により得られた測定値は各年代測定室間でかなり良く一致している。しかしいくつかの年代測定室のデータは、そのすべてが平均値より±いずれかに偏位している。その結果がそれらの年代測定室における¹⁴C年代測定実験そのものを制限するものではないが、偏位した結果を生じている年代測定室ではその結果について十分な検討が必要であろう。

5.3 信頼できる¹⁴C年代測定室

多くの年代測定室で通常行われている確認事項

は、ルーチンで行われている各種の実験準備とその確認作業である。例えば年輪のように年代の明らかな試料や歴史的に年代が明らかな試料を使って年代測定を行い、測定値の精度や確(実)度を確認している。またバックグラウンド試料や標準試料についても定常的に計測し、バックグラウンドの変動の有無や、計測装置の動作が安定であることを確認している。このような情報の詳細は滅多に公表されないため、個々の年代測定室でどのような日常的なチェックが行われているかは一般には不明である。

しかしユーザーには年代測定室側の品質管理をチェックする道が開かれている。すなわち同一年代とみなせる試料を複数の年代測定機関に送付し、その結果を比較検討する方法である。この方法の欠点は、費用と時間がかかることである。しかしながらわれわれは知人が難病にかかったときに手分けして名医を捜すように、 ^{14}C 年代を使用するユーザーは信頼できる年代測定室を選び出すことが、良い研究成果を上げることに繋がることを肝に銘じておくべきである。

6. 知りたい真の年代を得るために

以上記述した複雑な要因によって、たった1個の試料では、到底その知りたい出来事(イベント)が起こった年代を正確に決定することはできないことが理解できたであろう。このためユーザーは、試料を採取する前にその地点(環境)に関わる問題点について、あらかじめ十分に検討しておくべきである。このような事前の検討によって、ユーザーは知りたい年代にもっとも近い年代を示す最適な試料を採取できるであろう。経験不足と自覚しているユーザーは、野外調査に出かける前にあらかじめ年代測定室側と年代測定の意義と必要性について議論しておくべきである。そしてその結果得られた年代については、同じ研究分野の仲間とその解釈について議論した方がよい。

もしも同一地点に異なる試料がある場合、それらを併せて採取し年代測定を依頼することは賢明

であり、かつ有意義である。このようにすれば年代測定室側では推定年代の誤りを実証できる実験が可能である。年代測定室側は「 ^{14}C 年代測定の精度や測定結果の計算」に対して責任がある。一方ユーザーは、「知りたい年代を得るのにもっとも適した試料を採取したかどうか、またその試料が汚染されていない完全なものであったかどうか」について責任を有する。

7. 測定値とその補正

7.1 測定精度の確認

化学実験が正しく行われているかどうかや、 β 線測定装置が正常に動作しているかどうかは、標準試料やバックグラウンド試料を複数回同一方法で化学処理し、 β 線測定を行って得た平均計数率によって確認している。

β 線測定によって得られた ^{14}C 年代が正しいかどうか判断するため、年代測定室では伐採年が既知の年輪や、死亡年代や収穫年代が明らかな短命な生物を試料として測定し、両者の年代を比較している。勿論この時安定同位体比を測定し同位体分別補正を行うとは不可欠である(Craig, 1957; Olsson, 1970; Stuiver and Polach, 1977; Mann, 1983; Stuiver, 1983)。

このような目的で、 ^{14}C 年代の正確さ(狂い)を確認するため、過去数千年を超える年輪試料の $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ の測定がいくつかの年代測定機関で高精度の ^{14}C 年代測定装置(付加誤差20年以下)を用いて行われ、その結果は校正曲線や図表として公表されてきた(例えばFergusson *et al.*, 1966; Suess, 1970; Stuiver, 1982; Stuiver and Kra, 1986; Stuiver and Reimer, 1993; Stuiver *et al.*, 1998a; Stuiver *et al.*, 1998bなど)。

7.2 ウィグル・マッチング

高精度年代測定法(Stuiver *et al.*, 1979)が確立され、その精緻な年代測定データにもとづき作成された樹木(暦)年代校正プログラム(Stuiver, 1982)が考案された。このプログラムを応用した

もっとも興味深い、正確に年代決定を行う方法として、“ウィグル・マッチング” (Wiggle matching) がある。ウィグル・マッチングは、Ferguson *et al.* (1966), Beer *et al.* (1979), Pearson (1986) などにより確立された手法である。一連の年輪試料の年代測定結果を、基本となる年輪曲線と対比させて、信頼性の高い年代を決定している。すなわち ¹⁴C の生成率の変動による ¹⁴C 年代の非直線性 (凹凸部分) を利用して試料の正確な年代を決定しようという試みである。この方法は、きわめて重要な編年問題を解決するために使用される。しかし測定データ数が複数必要なため費用が余分にかかることと、β線測定法では測定に必要な試料が大量に採取できるかどうかがこの手法を使用する上での条件となる。

図5は青森県三内丸山遺跡から採取されたクリ材木柱の年輪を試料として、AMS¹⁴C年代測定法により測定し、ウィグル・マッチング法にもとづき伐採年代を推定した例である。河村・賀佐 (2006) によれば、左図は第27次および第19次調査時に採取した木柱の樹皮に近い年輪の年代を示し、また右図は較正年代と IntCal98 との関係を示している。なお左図のY軸 (SS) は、各年輪の

¹⁴C年代測定値と、暦年較正した年代値との差の2乗の和で、この値の最小値が求める暦年代である。またその誤差は、SS値がχ (カイ) 2乗分布を示す (Pearson, 1986) という前提で信頼性は (確率) は95%である。以上の結果から河村・賀佐 (2006) は、第27次木柱の最外年輪は紀元前2,705 \pm 150年。また第19次の木柱は紀元前2,700 \pm 50年と推定した。

7.3 年輪年代より古い年代の較正

年輪年代による¹⁴C年代の補正は、およそ8,000年前から徐々に古い年代まで拡大されて約12,400年前まで到達した。これより古い¹⁴C年代を何にもとづき、どのように較正するかは、かつて問題となった。Stuiver (1978) や Vogel (1983) は地磁気の経年変化を示すデータや海底堆積物である有孔虫の年代や化石サンゴ試料のウランシリーズ年代を使用することを提案した。当初はなかなか適当なデータが得られなかったが、INTCAL04では26,000年前までの¹⁴C年代の較正に成功した (Reimer *et al.*, 2004)。Kitagawa and Plicht (1998) は、水月湖から採取した年縞堆積物 (varve) 中に含まれる有機物についてAMSを用いて¹⁴C年代測定を行い、その結果と1枚ずつ数えた varve の年数に

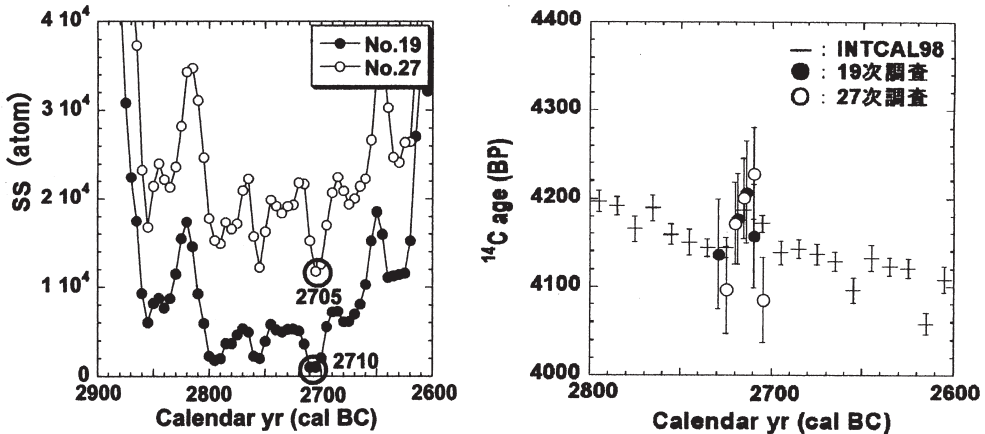


図5 “Wiggle matching” で年代を決定した「三内丸山遺跡」の例 (河村・賀佐, 2006 に加筆)

左図のY軸は¹⁴C量、X軸は年代を示す。No.19は第19次調査 (No.19-46) を、No.27は第27次調査 (No.27-2) で採取した木柱の樹皮に近い年輪についての測定結果を示している。上下のグラフの相似性に注意。右図は各年輪年代の標準データベース年代 (Y軸) と較正暦年代 (X軸: IntCal98 による) を示す。

もとづき calibration curve を発表した。最近ではおよそ5万年前までの較正曲線が得られ *Radio-carbon* の第46巻第3号(2003)に特集号として掲載されている。

^{14}C 年代測定のために試料を収集する場合に他の年代測定法、例えば熱ルミネッセンス法 (Thermo luminescence), 古地磁気学やウランシリーズ法で使用可能な試料も同時に収集する事が奨励される (Stuiver, 1978)。その理由は、これらの年代測定法を併用することにより ^{14}C 年代の意義がさらに高められるからである。年縞堆積物や南極およびグリーンランドの氷床コアなどは、数万年間にわたる堆積物であるため AMS ^{14}C 年代測定法により較正範囲を拡大できる可能性を有する。

8. まとめ

^{14}C 年代について、年代測定法の原理に関連して生ずる誤差、人間活動が原因となった ^{14}C 年代の狂い、試料採取地点や測定試料に関連して発生する誤差、年代測定室(者)に起因する誤差、試料採取者の錯誤、などの諸要因について検討した。

^{14}C 年代測定による年代の狂い、すなわち誤差は、大別すればどうしても避けられない原因によるものがある。例えば、宇宙線強度や地球磁場の変動による ^{14}C の生成率の変動によって生ずる誤差である。しかしながらその誤差も、年輪年代と ^{14}C 年代を比較することにより補正できるようになった。年輪を1枚ずつ測定して正確に年代決定を行う高精度の ^{14}C 年代測定によって得た ^{14}C 年代を年輪年代(実年代)に較正するコンピュータプログラムが開発され、誰でも容易に暦年代を求めることが可能になったことは喜ばしい。しかしながら測定試料そのものが、すでに新しい炭素や古い炭素の混入によって汚染されている場合には、どのような方法でも真に正しい年代を得ることはできないことを試料採取者、あるいはユーザーは熟知すべきである。

一方、人為的なミスによって生ずる誤差は、注

意すれば避けられるものもある。かつては、年代測定者による試料の取り違い、数値の読み違い、データ入力ミスなどもあったかもしれない。しかし今日ではチェックシートによる確認やコンピュータ・システムによる実験の自動化によって、人為的なミスが起こる確率は低下している。しかしすべての、年代測定室がこのような手法を採用している訳ではない。

したがってユーザーは、あらかじめ自分がこれから年代測定を依頼する年代測定機関で、「どのようなオペレーターが、どのような実験装置や機器を使用し、どのような実験を行うのか」について知るべきである。年代測定室で行われる化学実験一つをとっても測定結果が大幅に異なる (Goh and Pullar, 1977; 小元, 1980) ことを理解してほしい。

一方、年代測定を委託したユーザーは、依頼した試料の年代よりも知りたいイベントの発生時期しか考えていないことがある。この場合、年代測定を引き受けた年代測定室側では、送付されてきた試料が唯一の試料であるとみなして実験を行うのが通常である。このような場合年代測定者がユーザーの知りたいイベントの発生時期と、その年代を決めるのにもっともふさわしい試料を知っていたならば、ユーザーに最適試料の有無を尋ねたり、あるいは最良の化学処理法を選択したりすることが出来よう。このような方法により、さらに一層研究目的や知りたい年代に近い年代が得られるであろう。

ただし試料の ^{14}C 年代がユーザーの知りたいイベントの発生年代と密接な関係を有せず時間差が生じている場合や、ユーザーの推定年代そのものが誤っている場合には測定された ^{14}C 年代とイベントの発生年代は決して同時にならない。

この点は、本文のはじめに述べた木越(1965)の内容の通りである。ユーザーが自分の研究内容や、本当に知りたい年代について理解してくれる年代測定室に年代測定を委託するしか最良の方法は存在しない。試料採取者の錯誤により、 ^{14}C 年

代測定結果が誤っている、年代が狂っていると判断される例もかなり多いのも実情である。この点は、むしろユーザーである試料採取者や研究者側が慎重な判断を求められる。

¹⁴C年代測定に要する費用は1件あたりおよそ3万円～10万円位までである。測定費用が安いから測定精度が悪く、測定費用が高いから測定精度も高く信頼できる年代が得られるかと言えば、必ずしもそうではない。営利目的で企業が行っている¹⁴C年代測定と、純粋な研究目的で¹⁴C年代測定を行っている大学や研究機関とでは、根本的に主義・思想が異なる。また最新の年代測定装置で測定したから年代の狂いが無いかと言えば、必ずしもそのようには言えない。例えばAMSを使用して年代測定を行う場合、確かにβ線計測法に比較すれば、1回の測定に要する試料重量は1/1,000以下の炭素量で充分である。しかし試料重量が少なく済むと言うことは、万一汚染されていた部分を測定したとしたら、決して良い結果を得ることはできない。ユーザー側は、「高額＝高精度」あるいは「高額＝高信頼性」という関係が、常に成り立つとは限らない事を知るべきであろう。

できるだけイベントの発生した年代、真の年代に近い知りたい年代を得たいと思うならば、試料採取時から知りたい年代を代表してくれる試料をできるだけ複数種類採取すること、研究者や委託者側の研究内容を理解してくれる年代測定機関に測定を依頼することが肝要である。

¹⁴C年代測定法は、気体計数法、液体計数法および固体計数法に区分できる。それぞれの測定法の原理や発展過程、具体的な実験方法、本論で一部取り上げた誤差と補正方法については、近々日本第四紀学会が学会創設50周年を記念して発行する『デジタルブック最新第四紀学』の『第四紀研究を推進する最先端の年代測定法(β線計測による)』を参照されることをお勧めする。本稿の一部はその内容に準拠している。

謝辞

本論を平成19年8月に日本大学を定年退職された野上道男先生に献呈したい。野上先生とは大学院時代から今日に至るまで、公私ともにお世話になった。先生が1999年4月に日本大学に着任されて以来、8号館で研究室が隣り合わせということもあって、気候地形学やサンゴ礁地形、海水準変動の研究などについて、いろいろと議論して頂いた。1987～1988年に野上先生・福田先生・小泉先生と一緒に南極マランビオ島で行った海外学術調査の研究や、テンシャン(天山)山脈まで先生とご一緒に大学院生や学部学生と出かけた海外実地研究は、忘れ得ない思い出となっている。野上先生のご健勝と益々のご活躍をお祈り申し上げ、永年にわたりお世話になった御礼の言葉としたい。

最後に本稿を校閲された2名の匿名の校閲者のコメントは大変有意義であった。匿名の校閲者に謝意を表す。

(2007年8月19日受付)

(2008年1月30日受理)

参考文献

- 河村日佐男・賀佐真一 (2006) 木柱のC-14測定による年代の推定. 三内丸山遺跡年報, **9**, 74-78.
- 木越邦彦 (1965) 『年代測定法—放射能による』紀伊國屋書店.
- 木越邦彦 (1966) 大気中における¹⁴C濃度の経年変化. 日本化学雑誌, **87** (3), 209-220.
- 小元久仁夫 (1980) 放射性炭素年代測資料の取り扱い方. 地理, **25** (5), 25-37.
- 小元久仁夫 (2002) 高精度AMS年代測定と, その応用. 地理誌叢, **43** (2), 22-41.
- Anderson, E.C., Arnpld, J.R. and Libby, W.F. (1951) Measurement of low level radiocarbon. *Review of Scientific Instruments*, **22**, 225-230.
- Beer, J., Giertz, V., Moll, M., Oeschger, H., Riessen, T. and Strahm, C. (1979) The contribution of the Swiss lake-dwellings to the calibration of radiocarbon dates. In *Berger R, Suess, H.E. (eds.) Radiocarbon Dating*. University California Press, Los Angels. 566-584.
- Bennet, C.L., Beukins, R.P., Clover, M.R., Gove, H.L., Liebert, R.B., Litherlaird, A.E., Purser, K.H. and Sondheim, W.E. (1977) Radiocarbon dating with electrostatic accelerators: negative ions provide the key. *Science*, **198**, 508-510.
- Bennet, C.L., Beukins, R.P., Clover, M.R., Gove, H.L., Liebert, R.B., Litherlaird, A.E. and Purser, K.H. (1978) Radiocarbon dating with electrostatic accelerators: dating of milligram samples. *Science*, **201**, 345-347.
- Broecker, W.S. and Olson, I.A. (1961) Lamont radiocarbon measurements VIII. *Radiocarbon*, **3**, 176-204.
- Craig, H. (1957) Isotopic standards for carbon and oxygen and correction factors for mass spectrometric analysis of carbon dioxide. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **12**, 133-140.
- Currie, L.A. and Polach, H. A. (1980) Explanatory analysis of the International radiocarbon cross-calibration data consensus values and interlaboratory error. Preliminary note. *Radiocarbon*, **22**, 933-935.
- Fergusson, C.W., Huber, B. and Suess, H.E. (1966) Determination of the age of Swiss lake dwellings as an example of dendrochronologically calibrated radiocarbon dating. *Z. Naturforsch*, **21a**, 1173-1177.
- Gillespie, R. (1984) Radiocarbon user's handbook. Oxford University, Committee for Archaeology. Monograph Number Three, 36p.
- Godwin, H. (1962) Half-life of Radiocarbon. *Nature*, **195**, 943-945.
- Goh, K.M. and Pullar, W.A. (1977) Radiocarbon dating techniques for tephras in central North Island, New Zealand. *Geoderma*, **18**, 265-278.
- Head, M.J., Jones, R. and Allen, J. (1983) Calculation of the 'Marine Reservoir Effect' from dating of shell-charcoal paired samples from an Aboriginal midden on Great Glennie Island, Bass Strait. *Australian Archaeology*, **17**, 99-112.
- International Study Group (1982) An inter-laboratory comparison of radiocarbon measurements in tree-ring. *Nature*, **298**, 619-623.
- Kitagawa, H. and van der Plicht, J. (1998) Atmospheric radiocarbon calibration to 45,000 yr B.P. : Late Glacial fluctuation and cosmic isotope production. *Science*, **279**, 1187-1190.
- Libby, W.F., Arnold, E.C. and Arnold, JR. (1949) Age determination by radiocarbon content: world-wide assay. *Science*, **109**, 227-228.
- Libby, W.F. (1955) *Radiocarbon dating*. University of Chicago Press, 175p.
- Mangerud, J. (1972) Radiocarbon dating of marine shells, including a discussion of apparent age of recent shells from Norway. *Boreas*, **1**, 143-172.
- Mangerud, J. and Gulliksen, S. (1975) Apparent

- radiocarbon ages of recent marine shells from Norway, Spitzbergen and Arctic Canada. *Quaternary Research*, **5**, 263-273.
- Mann, W.B. (1983) An international reference material for radiocarbon dating. *Radiocarbon*, **25**, 519-527.
- Müller, R.A. (1977) Radiocarbon dating with a cyclotron. *Science*, **196**, 489-494.
- Nelson, D.E., Korteling, R.G. and Scott, W.R. (1977) Carbon-14: direct detection at natural concentrations. *Science*, **198**, 507-508.
- Olsson, I.U., Karlen, I., Turnbull, A.H. and Prosser, N.J.D. (1962) A determination of the half-life of C-14 with a proportional counter. *Arkiv Fysik*, **22**, 237.
- Olsson, I.U. (1970) The use of oxalic acid as a standard. In *Radiocarbon Variations and Absolute Chronology*, ed. Olsson, I.U. Almquist and Wiksell, Stockholm, 17.
- Omoto, K. (1972) A Preliminary Report on Modern Carbon Datings at Syowa Station and its Neighborhood, East Antarctica. *Ant. Rec.*, **43**, 20-24.
- Omoto, K. (1983) The Problem and Significance of Radiocarbon Geochronology in Antarctica. In *Antarctic Earth Science (Eds. Oliver, R.L., James, P.R., and Jago, J.B.)* Aust. Acad. Sci., Canberra. 450-452.
- Otlet, R.L., Walker, A.J., Hewson, A.D. and Burleigh, R. (1980) ¹⁴C interlaboratory Comparison in the UK; Experimental Design, Preparation and Preliminary Results. *Radiocarbon*, **22**, 936-946.
- Park, J.H., Kim, J.C., Cheoum, M.K., Kim, I.C., Youn, M., Liu, Y.H. and Kim, E.S. (2002) ¹⁴C level at Mt. Chiak and Mt. Kyeryong in Korea. *Radiocarbon*, **44** (2), 559-566.
- Pearlson, G.W. (1986) Precise calendrical dating of known growth-period samples using a 'curve fitting' technique. *Radiocarbon*, **28** (2A), 292-299.
- Purser, K.H. (1977) Ultra-sensitive spectrometer for aking mass and elemental analyses. *US Patent 40371001* files L Morolo 1976.
- Rafter, T.A. and O'Brien, B.J. (1970) Exchange rates between the atmosphere and the ocean as shown by recent ¹⁴C measurements in south Pacific. In *Radiocarbon Variations and Absolute Chronology* (ed. Olsson, I.U.), Almquist and Wiksell, Stockholm, 355-377.
- Reimer, P., Baillie, M.G.L., Bard, E., Bayliss, A., Beck, J.W., Bertrand, C.J.H., Blackwell, P., Buck, C.E., Burr, G.S., Cutler, K.B., Damon, P., Edwards, R.L., Fairbanks, R.G., Friedrich, M., Guiderson, T.P., Hogg, A.G., Hughen, K.A., Kromer, B., KcCormac, G., Manning, S., Ramsey, C.B., Reimer, R.W., Remmele, S., Southon, J.R., Stuiver, M., Talamo, S., Taylor, F.W., J. van der Plicht and Weyhenmeyer, C.E. (2004) INTCAL04 terrestrial radiocarbon age calibration, 0-26 cal kyr BP. *Radiocarbon*, **46** (3), 1029-1058.
- Scott, E.M., Baxter, M.S. and Aitchison, T.C. (1984) ¹⁴C dating reproducibility, evidence from a combined experimental and statistical programme. *Proceedings of 1st International Symposium on ¹⁴C and Archaeology*. Groningen, 1981.
- Scott, E.M. *et al.* (2003) The Third International Radiocarbon Intercomparison (TIRI) and The Fourth International Radiocarbon Intercomparison (FIRI) 1990-2002. *Radiocarbon*, **45** (2), 135-408.
- Stuiver, M. and Polach, H.A. (1977) Discussion, reporting of ¹⁴C data. *Radiocarbon*, **19** (3), 355-363.
- Stuiver, M. (1978) Radiocarbon timescale tested against magnetic and other dating methods. *Nature*, **273**, 271-274.
- Stuiver, M. Robinson, S.W. and Yang, I.C. (1979) ¹⁴C Dating to 60,000 Years B.P. with Proportional

- Counters. In Radiocarbon Dating — *Proceedings Ninth International Radiocarbon Conference. La Jolla/Los Angeles*. University of California Press, 202-215.
- Stuiver, M. and Quay, P.D. (1981) Atmospheric ^{14}C changes resulting from fossil fuel CO_2 release and cosmic ray flux variability. *Earth and Planetary Science Letters*, **53**, 349-362.
- Stuiver, M. (1982) A High-precision calibration of the AD radiocarbon timescale. *Radiocarbon*, **24** (1), 1-26.
- Stuiver, M. (1983) International agreements and the use of the new oxalic acid standard. *Radiocarbon*, **25**, 793-795.
- Stuiver, M. and Kra, R. (1986) Calibration Issue. *Radiocarbon*, **28** (2B), 805-1030.
- Stuiver, M. and Reimer, P.J. (1993) Extended ^{14}C data base and revised CALIB 3.0 ^{14}C Age Calibration Programme. *Radiocarbon*, **35**, 215-230.
- Stuiver, M., Reimer, P.J., Bard, E., Beck, J.W., Burr, G. S., Hughen, K.A., Kromer, B., McCormac, G., Jo. Van der Plicht and Spurk, M. (1998a) INTCAL Radiocarbon Age Calibration, 24,000-0 cal BP. *Radiocarbon*, **40** (3), 1041-1084.
- Stuiver, M., Reimer, P.J. and Braziunas, T.F. (1998b) High-Precision Radiocarbon Age Calibration for Terrestrial and Marine Samples. *Radiocarbon*, **40** (3), 1127-1152.
- Suess, H.E. (1955) Radiocarbon concentration in modern wood. *Science*, **122**, 415-417.
- Suess, H.E. (1970) Bristlecone-pine calibration of the radiocarbon time scale 5200 B.C. to the present. In *Radiocarbon Variations and Absolute Chronology* (ed. Olsson, I.U.), Almquist and Wicksell, Stockholm, 303-312.
- Vogel, J.C. (1983) ^{14}C Variations during the Upper Pleistocene. *Radiocarbon*, **25** (2), 213-218.
- De Vries, H. (1958) Atom Bomb Effect: Variations of radiocarbon in plants, shells, snails in the past 4 years. *Science*, **128**, 250-251.
- Watt, D.E., Ramsden, D. and Wilson, H.W. (1981) The half-life of carbon-14. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, **11**, 68.
- Willis, E.H., Tauber, H. and Münnich, K.O. (1960) Variations in the atmospheric radiocarbon concentration over past 1300 years. *American Journal of Science, Radiocarbon Supplement*, **2**, 1-4.

The Origin of Error Sources in Radiocarbon Dating and its Correction

Kunio OMOTO*2

Radiocarbon (¹⁴C) dating has contributed to the development of natural sciences especially in the field of archaeology, geomorphology and geology since W.F. Libby and his coworkers established the principle of ¹⁴C dating method (β ray counting) in 1949. Nowadays an advanced new dating technique (atom counting method) using an accelerator mass spectrometry (AMS) has been developed by Purser *et al.* (1977), Müller (1977), Nelson *et al.* (1977), Bennet *et al.* (1977, 1978). It enabled to determine ¹⁴C age using a small amount of carbon sample (milligram size).

In the early stage ¹⁴C production rate by the cosmic rays was believed to be constant, however we know at present it is changeable by cosmic ray flux and magnetic field of the earth. Change of the cosmic ray flux and magnetic force that control the production rate of ¹⁴C is one of the main error sources in ¹⁴C age determination. Radioactive decays of ¹⁴C occur probabilistically; therefore we need to analyze the countable numbers of data by statistical method. This process defines the range of error.

In this paper the author discussed on the origin of error sources occurring in ¹⁴C dating which were originated by not only genetic principle but also incorrect chemical assays in the laboratory and inadequate sampling materials collected by collectors and submitters.

Key words : radiocarbon (¹⁴C) dating, error, calibration, IntCal, ¹⁴C laboratory of Nihon University

*2 Department of Geography, College of Humanities and Sciences, Nihon University