

人類紀の環境変動復元と年代測定法

横山祐典*

An overview of Quaternary Geochronology

Yusuke Yokoyama*

* 東京大学 大気海洋研究所および理学系研究科地球惑星科学専攻 Atmosphere and Ocean Research Institute and Department of Earth and Planetary Sciences, University of Tokyo

はじめに

人類紀といわれる第四紀（およそ過去260万年間）の特徴は、氷期と間氷期の繰り返しである。地球の公転軌道要素の変化にともない、太陽から地球表層に到達する熱の分配に、緯度変化や季節性の変化が生じるために引き起こされている。地球の公転軌道周期と地球に到達する日射量（インソレーション）、それに季節性との関連を唱えたのは、ユーゴスラビアの天文学者であったミランコビッチで、このことから氷期—間氷期の気候変動周期はミランコビッチサイクルとよばれる（横山, 2009a）。しかし、このミランコビッチサイクルが、実際のデータによって裏付けられたのは、深海堆積物の中に含まれている有孔虫と呼ばれる生物の殻の酸素同位体比の変動のスペクトル解析結果が行われた1970年代に入ってからであった。深海堆積物の採取と同位体比分析の地球化学分野への適用が進んだ結果である。過去の気候変動を復元し、現在の気候状態を理解するには、プロキシ（代替指標）と呼ばれる化学指標を活用する（横山, 2004）。地球上の水蒸気輸送は、全球規模でみると蒸発の卓越する低緯度から高緯度へと行われている。海水から水蒸気となる際には、水分子中のより軽い酸素同位体（ ^{16}O ）が選択的に海水から取り除かれる一方で、水蒸気から降水がもたらされる際には、より重い酸素同位体（ ^{18}O ）が選択的に水蒸気から取り除かれる。そのため、高緯度での降水（降雪）の酸素同位体比は低緯度のそれより3–4%近く軽くなっている。したがって、大陸氷床には、より軽い酸素同位体比を持つ氷が存在する（Obrochta et al., 2012）。これは同時に輸送される水素の同位体比についても同じことがいえる。したがって、氷床が間氷期に融解して、海洋へ融氷水がもたらされると、海洋全体の水の同位体

比を軽い方向にシフトさせるため、海水の同位体比を保存している有孔虫の炭酸塩中の酸素同位体比も軽くなる。つまり海水の酸素同位体比を復元することにより、過去のグローバルな氷床量を復元すること、つまり氷期—間氷期変動を明らかにすることができるわけである（図1）。また、氷床の酸素同位体比（または水素同位体比）の存在比を比較することにより、同様な熱力学的な分子の挙動変化から、温度計を作ることが可能となる（現地の温度がより寒いと軽い同位体を持つ雪が降雪する）。このほかに、有孔虫やサンゴなどの殻の炭酸カルシウム形成時にカルシウムを置換して骨格に取り込む同じく2価のイオンであるマグネシウムやストロンチウムの分配係数が、温度依存性をもつことを利用した温度計なども存在する（Yokoyama et al., 2011; Seki et al., 2012; Inoue et al., 2010; Sagawa et al., 2011, 2012）。

過去の環境変動復元には、飼育や環境試料に基づくプロキシのキャリブレーションが必須であるが（例: Hirabayashi et al., 2013）、同時に年代決定の高精度化も重要な要素である（横山, 2010）。ミランコビッチサイクルの検証がなされたのも年代決定の高精度化によるところが大きい。特に近年では質量分析装置の急進展により様々な年代測定が微量試料にて行われるようになった。また放射年代のほか、環境中の放射性元素の壊変の“痕跡”を残す年代決定法の進展（ルミネッセンスやフィッシュン・トラック年代測定法など）も特筆に値する。各手法の詳細は、研究会にて講演された方々のレポートを参照していただくとして、本小論では、人類紀といわれる第四紀の年代決定の手法について、我々のグループが取り組んできている内容の一部を中心に簡単に紹介することとする。

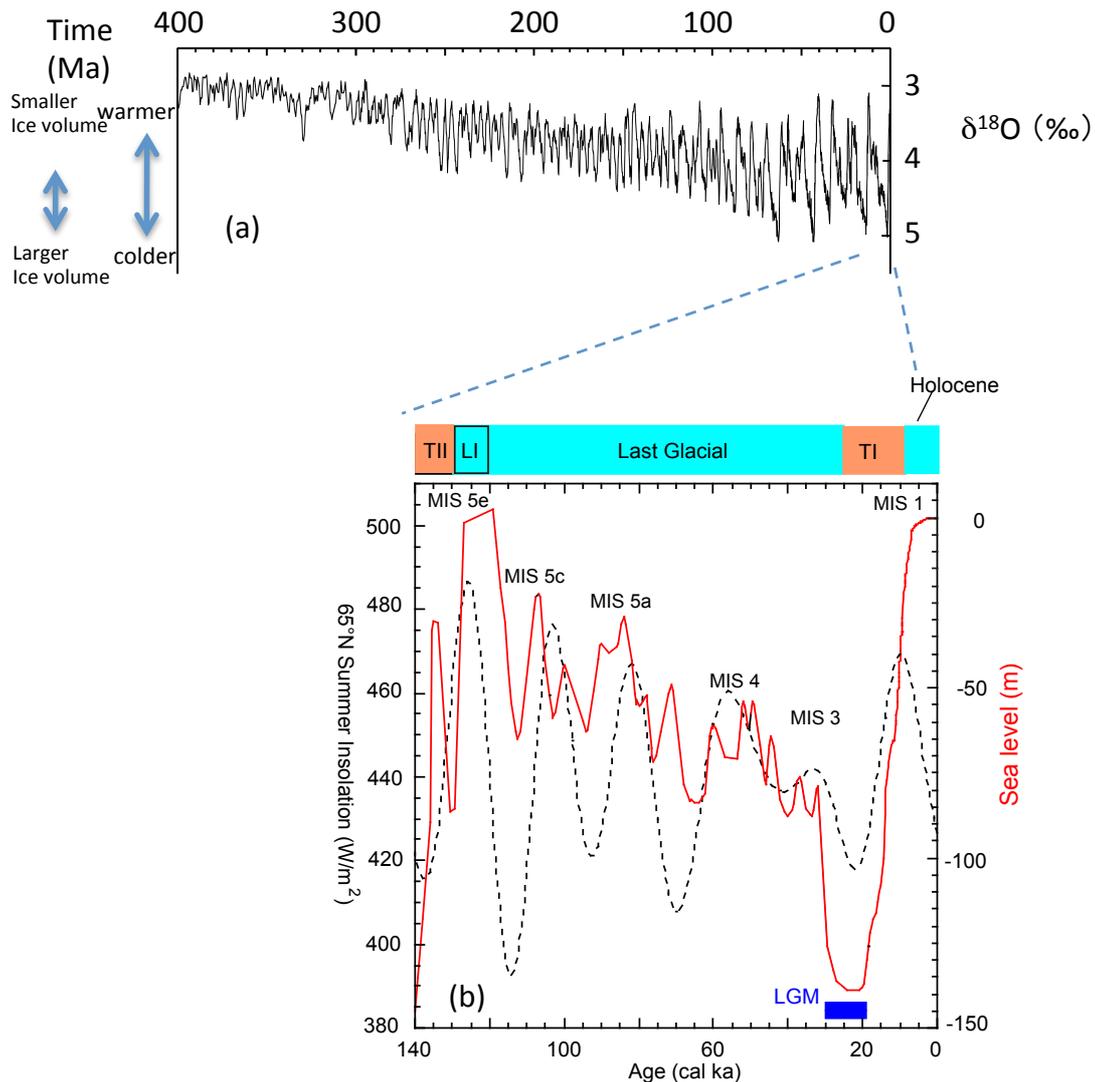


図1 過去の海水準（全球的な氷床量指標）変動の記録 (Yokoyama and Esat, 2013を改変)

放射性炭素年代測定法(^{14}C 法)

宇宙線生成核種は地球上層の大気と宇宙線との相互作用によって生成される核種で、 ^{10}Be 、 ^{14}C 、や ^{36}Cl など、大気の循環や海洋環境の変遷を復元するトレーサーとして極めて重要であり、地球環境研究において広く用いられている(横山, 2005; Yokoyama et al., 2008, 2004). 特に加速器質量分析装置(AMS)の登場により、わずかなサンプル量で直接的に同位体比を決定できるようになったことから、これらの核種の有用性が高まり、高時間分解能での議論が行われるようになってきた。なかでも放射性炭素 (^{14}C) は、考古学における年代決定のみならず、10万年スケールで変動する地球の気候がグローバルにどのようなタイミングで変動していくかを明らかにする重要な役割

を担っている。

^{14}C をつかった年代測定法が“正しい”「時計」としての役割を果たすためには、いくつかの仮定が成立していなければならない。それらは、(1)半減期が正確であること、(2)地球表層での ^{14}C 分布が均質であること、(3)サンプルに固定された ^{14}C が移動しない、つまり閉鎖系を維持していること、そして(4) ^{14}C の生成率が一定であることである。しかし実際には、(1)の仮定以外は、補正が必要であったり、他の方法で閉鎖系の確認を詳しく行う必要がある場合が多い(Yokoyama and Esat, 2004).

大気中に生成される ^{14}C の存在度は宇宙線のフラックスや生成後の炭素循環によって変動を起こす(Matsumoto and Yokoyama, 2013,

Yokoyama et al., 2000). 先に述べた ^{14}C 年代測定を行う上での仮定の一つである、大気中での $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ が現在まで一定であったということは成り立たないことが分かっている(Yokoyama et al., 2008; Esat and Yokoyama, 2008). そこで、放射性炭素年代をいわゆる暦年代に補正することは、過去の気候変動イベントの前後関係を議論する上で極めて重要である。この「補正曲線」は、 ^{14}C 法を使って年代測定を行い、正しい年代を求めるために必須のものである。つまり、過去のある時期、大気中の $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比が現在より高かった場合には、生成と壊変の平衡が崩れていたということであるため、みかけ上「時計」は遅くなっていたことになり、 ^{14}C 法で得た年代をそのまま使用すると、実際より若い年代を出してしまうことになる。より古い年代の補正曲線を作成するために、これまで鍾乳石(eg., Southon et al., 2012)やサンゴ(eg., Yokoyama et al., 2001; Esat and Yokoyama, 2008, 2010; Durand et al., 2013)などを使い、独立にウラン系列年代核種により(後述、横山, 2009b)直接的に暦年代を求め、それに対応した $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比を測定する方法が報告されてきた(Esat and Yokoyama, 2008). しかし、2012年、日本と英国やドイツなどからなる我々のグループは、年縞とよばれる一年一年の地層の縞を持つ福井県の水月湖底から採取した堆積物コアの分析を行うことで、放射性炭素年代測定法の適用限界近くまでの補正曲線を発表した(Bronk Ramsey et al., 2012). これは、およそ50,000年前の試料でも、誤差170年ほどで年代決定ができる極めて高精度の補正曲線となった。

50,000年より古い時期の年代決定法

ウラン系列核種年代測定

ウラン系列核種はその化学的挙動のユニークさから、太陽系の年代の決定といった古い(超長期間)の年代決定の他、地球科学的に近年の数百年から40万年前までの年代決定に利用されてきている(Yokoyama and Esat 2004). ここでは後者の年代決定法について簡単に紹介する。

^{238}U の娘核種である ^{234}U , そして ^{230}Th について、環境中の炭酸塩試料に存在している割合を分析することで、高精度年代決定を行うことができる(Yokoyama and Esat, 2013, 横山 2009b). 岩石鉱物中に存在する ^{238}U が α 壊変することで ^{234}U が生成され、風化作用などに伴い、結晶格子のアルファ線によるダメージサイトに存

在する ^{234}U が選択的に流出する。そのため、河川水中のウランは ^{234}U に富む。土壌中にはトリウムなども存在して河川を通じて海水へもたらされるが、海水ではウランが溶存態として存在するのに対し、トリウムは粒子吸着性が強く、すみやかに海水から取り除かれる。サンゴ等の炭酸塩試料が骨格を形成する際に、周囲の海水からはウランのみが僅かに取り込まれるため、 ^{234}U から生成される ^{230}Th を分析することにより、年代決定が可能となる。ウランの海水中での滞留時間を考慮すると、過去40万年ほどの年代決定に、この方法は使うことが可能である(Esat and Yokoyama, 2008; 2010).

一方、陸上炭酸塩試料(鍾乳石など)の場合、ウランの濃度が1-2オーダー低いことから、これまでの方法(表面電離型質量分析装置(TIMS))での分析は困難が伴っていた。しかし近年、誘導プラズマ質量分析装置(ICP-MS)の発展により、イオン化効率が低かったトリウムなども分析が可能になってきたことから、陸上試料の5万年を超えた年代についての年代決定もなされてきている。ただこの場合、Thの含有量(一般には ^{232}Th の量で検出)が極めて少ない試料に限られる(Yokoyama et al., 2001; 横山, 2004).

光ルミネッセンス年代測定

環境中の鉱物において、結晶内の電子が放射線や宇宙線の照射により電離され、親原子から引き離された後、結晶格子内に捕獲蓄積されるプロセスについて、この捕獲電子を加熱および光曝して励起すると、蓄積エネルギーを発光によって放出する。この発光量は捕獲電子の数に比例するため、放射線の被曝量として換算でき、年間被曝線量がわかれば、蓄積線量を年間線量で割ることにより年代が導き出せる。光ルミネッセンス(OSL)年代測定法の適用範囲は数十年前から10万年前程度まで遡れることから、 ^{14}C 法の適用範囲外の年代を導き出す方法として広く使われている(例:塚本・岩田, 2005).

地球表層で生成され蓄積された宇宙線生成核種を用いた方法

地球表層に降り注ぐ宇宙線の核破砕反応により鉱物中に生成蓄積された ^{10}Be , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^3He , ^{21}Ne などの宇宙線生成核種(in-situ CN)による年代決定法も、近年の特に陸域の年代を求める有効な手段である(横山ほか, 2005). 例えば氷河

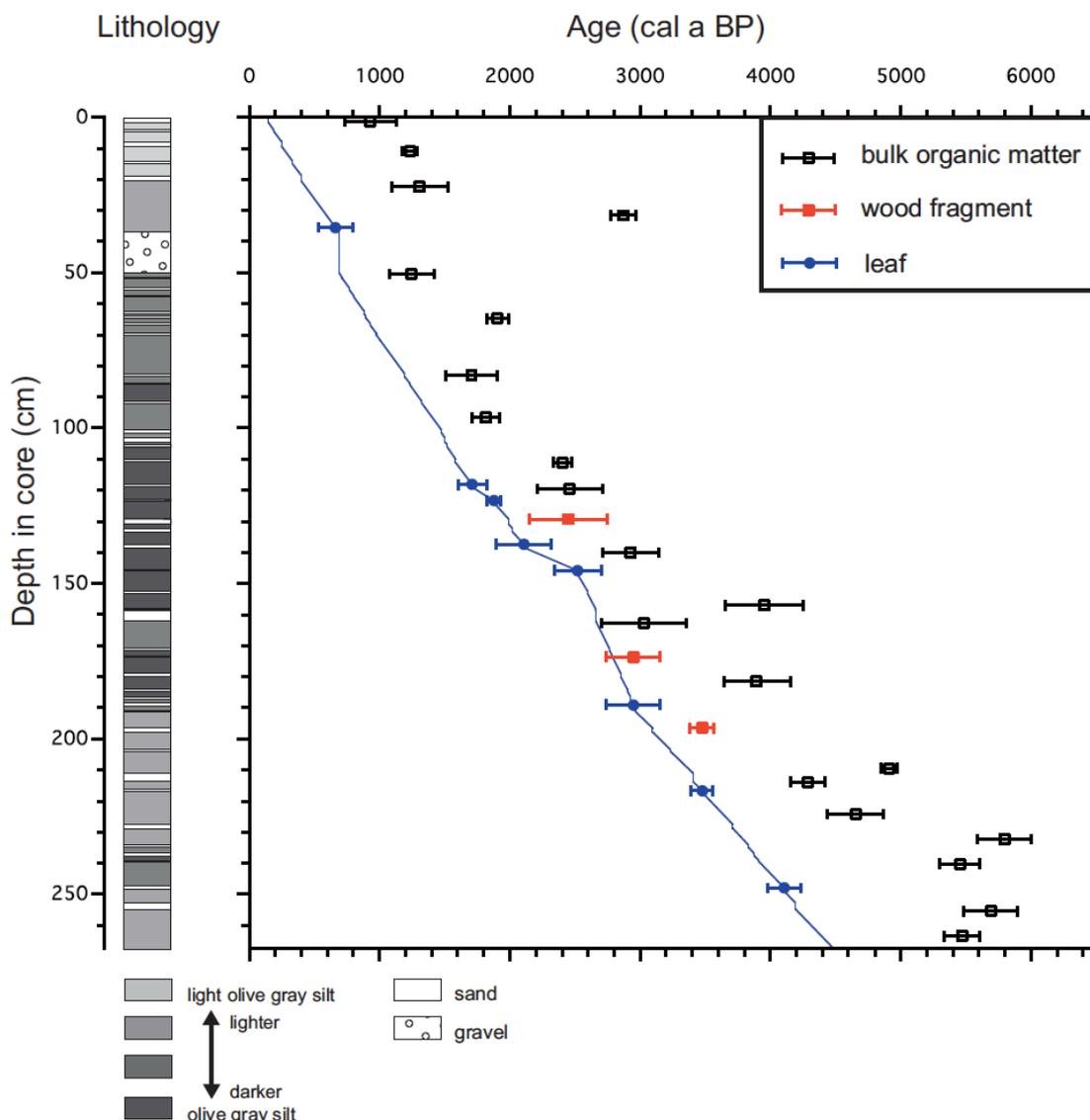


図2：ネパール最大の湖，ララ湖の湖底堆積物コアの放射性炭素年代値 (Nakamura et al., 2012).

地形の年代 (Yamane et al., 2011) や侵食速度の評価 (Shiroya et al., 2010) などを使うことができるが、特に考古学等でユニークに用いられるのが、宇宙線の地中での減衰とin-situ CNの生成率との関係、それに半減期の異なる核種の分析を組み合わせることで得られる埋没年代である (横山, 2005; Nakamura et al., 2013)。数値モデルを併用することで、埋没履歴について年代的な制約を与えることができることから、考古学や人類学での応用も広がっている (eg., Pappu et al., 2011)。

放射性炭素年代測定法(14C法)の適用時の注意点

加速器質量分析装置(AMS)を用いた場合、一般

に1mgの炭素試料をルーチンで測定している研究室が多いが (Yokoyama et al., 2000; 2007)，14C測定に特化した加速電圧の低いAMSの登場で、多くの試料を短時間で測定することが可能となってきた (横山, 2013)。環境中の試料の年代決定を行う際、どのサンプルを用いた測定を行うとより真の年代が得られるかについて、吟味を行うことは必須であり、近年のAMSの進展はそれらに大きく貢献している。

例えば、湖の湖底堆積物試料を用いた過去の環境復元では、環境変動のタイミングを正確に決める必要がある。我々はネパールにて湖底堆積物を掘削し、そのコア (柱状試料) の中に含まれている木片、木の葉、そして堆積物の有機炭素を用いた年代決定を行った (図2)。すると、どの層準

でも系統的に堆積物の有機炭素を用いた値が最も古い年代を表し、木材が中間、そして木の葉が最も若い年代を示すことが明らかになった (Nakamura et al., 2012)。このことは、堆積物中の炭素が、しばらく森林土壌中に滞留し、その後湖底にもたらされたことを示す。すなわち、堆積物の有機炭素を用いた年代決定による年代モデルは、真の年代からずれた古い年代を示すことが明らかになった。

これらは海洋堆積物試料についても同様で、例えば南極海の堆積物には炭酸塩の殻を持つ生物が含まれていないことがほとんどであるため、堆積物中の全有機炭素を用いた¹⁴C年代測定が行われてきていた。しかし近年、微量での分析(100 μgC以下)が可能となってきたため (Yokoyama et al., 2010)、特定有機化合物を抽出し、炭素の起源が明らかになっている有機化合物についての年代測定を行うことができるようになってきた。この場合、年代は10,000年ほどずれることがわかってきた (Yokoyama et al., 2013; Yamane et al., 2013)。AMSの特性を生かし、今後の年代決定については、より正確な年代を得るために、複数の試料による多点複数年代決定が重要であることが示唆される。

まとめ

過去の環境復元を行う際に、年代決定は必須の作業であるが、それぞれの年代測定法で求めることのできる結果はあくまでも年代モデルである。それぞれの手法の特徴と限界を知り、放射年代とそのほかの年代測定法を複合的に組み合わせることにより、精度・確度の高い年代決定が可能となる。

文献

- Bronk Ramsey, C., Staff, R.A., Bryant, C.L., Brock, F., Kitagawa, H., van der Plicht, J., Schlolaut, G., Marshall, M.H., Brauer, A., Lamb, H.F., Payne, R.L., Tarasov, P.E., Haraguchi, T., Gotanda, K., Yonenobu, H., Yokoyama, Y., Tada, R., and Nakagawa, T., 2012. A complete terrestrial radiocarbon record for 11.2 to 52.8 kyr B.P. *Science*, 338: 370-374.
- Durand, N., Deschamps, P., Bard, E., Hamelin, B., Camoin, G., Thomas, A.L., Henderson, G.M., Yokoyama, Y., and Matsuzaki, H., 2013. Comparison of ¹⁴C and U-Th ages in corals from IODP #310 cores offshore Tahiti. *Radiocarbon*, 55(2): 1-26.
- Esat, T.M., and Y. Yokoyama, 2008. Issues in radiocarbon and U-series dating of corals from the last glacial period. *Quaternary Geochronology*, 3: 244-252.
- Esat, T.M., and Y. Yokoyama, 2010. Coupled uranium isotope and sea-level variations in the oceans. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 74: 7008-7020.
- Hirabayashi, S., Yokoyama, Y., Suzuki, A., Kawakubo, Y., Miyairi, Y., Okai, T., and Nojima, S., 2013. Coral growth-rate insensitive Sr/Ca as a robust temperature recorder at the extreme latitudinal limits of Porites. *Geochemical Journal*, 47: 1-5.
- Inoue, M., Y. Yokoyama, M. Harada, A. Suzuki, H. Kawahata, H. Matsuzaki and Y. Iryu, 2010. Trace element variations in fossil corals from Tahiti collected by IODP Expedition 310: Reconstruction of marine environments during the last deglaciation (15 to 9 ka). *Marine Geology*, 271: 303-306.
- Matsumoto, K., and Yokoyama, Y., 2013. Reduction in atmospheric $\Delta^{14}C$ in simulations of Atlantic overturning circulation shutdown. *Global Biogeochemical Cycles*.
- Nakamura, A., Yokoyama, Y., Maemoku, H., Yagi, H., Okamura, M., Matsuoka, H., Miyake, N., Osada, T., Teramura, H., Adhikari, D.P., Dangol, V., Miyairi, Y., Obrochta, S.P., and Matsuzaki, H., 2012. Late Holocene Asian monsoon variations recorded in Lake Rara sediment, western Nepal. *Journal of Quaternary Science*, 27(2): 125-128.
- Nakamura, A., Yokoyama, Y., Shiroya, K., Miyairi, Y., and Matsuzaki, H., 2013. Direct comparison of site-specific and basin-scale erosion rate estimation by in-situ cosmogenic nuclides. *Quaternary Geochronology*, under review.
- Obrochta, S.P., Miyahara, H., Yokoyama, Y., and Crowley, T.J., 2012. A re-examination of evidence for the North

- Atlantic “1500-year cycle” at Site 609. *Quaternary Science Reviews*, 55: 23-33.
- Pappu, S., Gunnell, Y., Akhilesh, K., Braucher, R., Taieb, M., Demory, F., and Thouveny, N., 2011. Early Pleistocene presence of Acheulian Hominins in South India. *Science*, 331: 1596-1599.
- Sagawa, T., Yokoyama, Y., Ikehara, M., and Kuwae, M., 2011. Vertical thermal structure history in the western subtropical Pacific since the Last Glacial Maximum. *Geophysical Research Letters*, 38(L00F02): doi:10.1029/2010GL045827.
- Sagawa, T., Yokoyama, Y., Ikehara, M., and Kuwae, M., 2012. Shoaling of the western equatorial Pacific thermocline during the last glacial maximum inferred from multispecies temperature reconstruction of planktonic foraminifera. *Palaeogeography Palaeoclimatology Palaeoecology*, 346-347: 120-129.
- Seki, A., Yokoyama, Y., Suzuki, A., Kawakubo, Y., Okai, T., Miyairi, Y., Matsuzaki, H., Namizaki, N., and Kan, H., 2012. Mid-Holocene sea-surface temperature reconstruction using fossil corals from Kume Island, Ryukyu, Japan. *Geochemical Journal*, 46: 27-32.
- Shiroya, K., Yokoyama, Y., and Matsuzaki, H., 2010. Quantitative determination of long-term erosion rates of weathered granitic soil surfaces in western Abukuma, Japan using cosmogenic ^{10}Be and ^{26}Al depth profile. *Geochemical Journal*, 44(6): 23-27.
- Southon, J.R., Noronha, A.L., Cheng, H., Edwards, R.L., and Wang, Y., 2012. A high-resolution record of atmospheric ^{14}C based on Hulu Cave speleothem H82. *Quaternary Science Reviews*, 33: 32-42.
- 塚本すみ子・岩田修二, 2005. ルミネッセンス年代測. 定法の最近の進歩 - 適用年代の拡大と石英の OSL 成分について -. *地質学雑誌*, 111: 643-653.
- Yamane, M., Yokoyama, Y., Miura, H., Maemoku, H., Iwasaki, S., and Matsuzaki, H., 2011. The last deglacial history of Lutzow-Holm Bay, East Antarctica. *Journal of Quaternary Science*, 26(1): 3-6.
- Yamane, M., Yokoyama, Y., Miyairi, Y., Suga, H., Matsuzaki, H., Dunbar, R.B., and Ohkouchi, N., 2013. Compound-specific ^{14}C dating of IODP Exp. 318 U1357A core obtained from off the Wilkes Land. Radiocarbon, under review.
- Yokoyama, Y., Esat, T.M., Lambeck, K., and Fifield, L.K., 2000. Last ice age millennial scale climate changes recorded in Huon Peninsula corals. *Radiocarbon*, 42: 383-401.
- Yokoyama, Y., T.M. Esat, and K. Lambeck, 2001. Coupled climate and sea-level changes deduced from Huon Peninsula coral terraces of the last ice age. *Earth and Planetary Science Letters*, 193: 579-587.
- 横山祐典, 2004. 氷期—間氷期スケールおよび Millennialスケールの気候変動の研究: 同位体地球化学的・地球物理学的手法によるアプローチ. *地球化学*, 38: 127-150.
- Yokoyama, Y., and T.M. Esat, 2004. Long term variations of uranium isotopes and radiocarbon in surface seawater as recorded in corals. *Global environmental change in the ocean and on land*, 1: 279-309.
- Yokoyama, Y., M.W. Caffee, J.R. Southon, and K. Nishiizumi, 2004. Measurements of In-situ produced ^{14}C in terrestrial rocks. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, 223-224: 253-258.
- 横山祐典, 阿瀬貴博, 村澤晃, 松崎浩之, 2005. 宇宙線照射生成核種を用いた地球表層プロセスの研究. *地質学雑誌*, 111(11): 693-700.
- Yokoyama, Y., Y. Miyairi, H. Matsuzaki and F. Tsunomori 2007. Relation between acid dissolution time in the vacuum test tube and time required for graphitization for AMS target preparation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, 259: 330-334.
- Yokoyama, Y., H. Matsuzaki, and T.M. Esat, 2008. Prospects for the New Frontiers of Earth and Environmental Sciences.

- Quaternary Geochronology, 3: 206-207.
- 横山祐典, 2009a. 海水準変動とグローバルな氷床量. In: 日本第四紀学会 (Editor), デジタルブック最新第四紀学. 日本第四紀学会, 東京.
- 横山祐典, 2009b. TIMSによるサンゴサンプルのウラン系列核種年代測定法. In: 日本第四紀学会 (Editor), デジタルブック最新第四紀学. 日本第四紀学会, 東京.
- 横山祐典, 2010. ターミネーションの気候変動. 第四紀研究, 49(6): 37-356.
- Yokoyama, Y., M. Koizumi, H. Matsuzaki, Y. Miyairi and N. Ohkouchi, 2010. Developing ultra small-scale radiocarbon sample measurement at the University of Tokyo Radiocarbon, 52: 310-318.
- Yokoyama, Y., Suzuki, A., Siringan, F., Maeda, Y., Abe-Ouchi, A., Ohgaito, R., Kawahata, H. and Matsuzaki, H., 2011. Mid-Holocene palaeoceanography of the northern South China Sea using coupled fossil-modern coral and Atmosphere-Ocean GCM model. Geophysical Research Letters, 38(L00F03): doi: 10.1029/2010GL044231.
- 横山祐典, 2013. 地球表層の環境／生物動態を追跡する放射性炭素～「生物履歴学」の創成をめざして. Ocean Breeze, 12: 2-4.
- Yokoyama, Y., and T.M. Esat, 2013. Coral Reefs. In: I. Shennan, Long, A., and Horton, B. (Editor), Handbook of Sea-Level Research. John Wiley, Oxford.
- Yokoyama, Y., Yamazaki, T., Miyairi, Y., Anderson, J.B., Koizumi, M., Suga, H., Kusahara, K., Hasumi, H., Southon, J.R., and Ohkouchi, N., 2013. Ross Ice Shelf retreat history during the last deglaciation. Nature Communications, under review.