

堆積物中の $100\ \mu\text{m}$ 以上の大型花粉を含む花粉試料による放射性炭素年代測定

横山 祐典
Yokoyama Yusuke

太田 耕輔
Ota Kosuke

宮入 陽介
Miyairi Yosuke

常岡 廉
Tsuneoka Ren

1. はじめに

地球の気候や環境変動を研究する上で気候変動等の現象が過去のどの時点で生じたかという年代に関する情報は重要である¹⁾。プロキシと呼ばれる生物や化学的な指標によって気候や環境に関する情報は復元されるが、それらに刻まれた現象の前後関係が気候システムのメカニズムの解明の鍵となるからである。年代決定の手法には、質量分析装置を用いた放射性同位体の定量を行うのが一般的であるが、特に過去5万年間の高精度年代決定に使われているのが放射性炭素 (^{14}C) 年代測定法である。存在度が 10^{-12} 以下と極めて低い同位体比を正確に測定するには加速器質量分析装置 (AMS) を用いる必要がある^{2,3)}。AMS は超高感度の装置であり、一般的には $1\ \text{mg}$ の炭素 ($1\ \text{mgC}$) を使った分析が行われている。しかし近年、加速電圧の低い AMS が開発され ^{14}C に特化した分析が行われるようになったことで、多くの試料の高精度分析が行われるようになった。例えば東京大学の大気海洋研究所でも炭素量で $10\sim 300\ \mu\text{g}$ といった微量試料についても高精度分析が可能となってきた^{4,5)}。

2. 試料の選別の重要性

AMS の性能及び前処理システムの改良等に伴い、分析に必要な試料量が低く抑えられるようになった。これにより、これまでは試料量 ($1\ \text{mgC}$) を確保するために、堆積物すべて (バルク) を使って分析に供していたような場合でも、現在では堆積物の

中から特定の物質のみを使って年代測定が行われる例も報告されるようになってきた。その結果、バルク年代と特定の物質との年代差についての比較がなされるようになり、得られる年代値が試料によって異なる意味を持つことが明らかになってきた。

例えば、これまでは後背地が限定的で流入河川が無いような湖であれば、湖底堆積物の有機炭素は湖内生産による有機炭素であると仮定できると考え、バルクの堆積物による ^{14}C 年代は信頼度が高いとされてきた。しかし筆者らがチベット国境にも近いネパール中西部に位置するララ湖で湖底堆積物を掘削し、そのコア (柱状試料) を分析したところ、バルクの年代は同じ層準に含有されている木片や木の葉といったマクロ化石試料 (図1) に比べて、どの層準でも系統的に最も古い年代を示した。更に、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^{6,7)}。すなわち、後背地からの流入

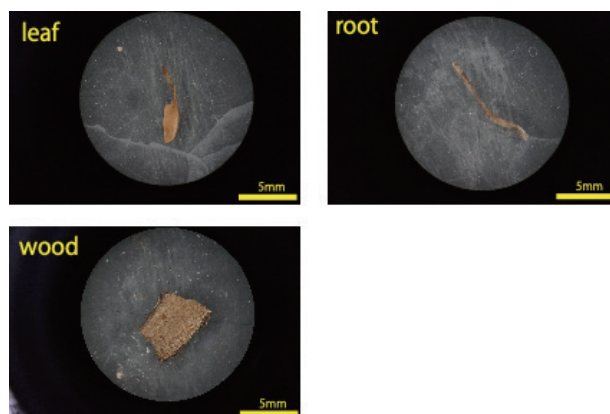


図1 マクロ化石の例
スケールバーは5 mm

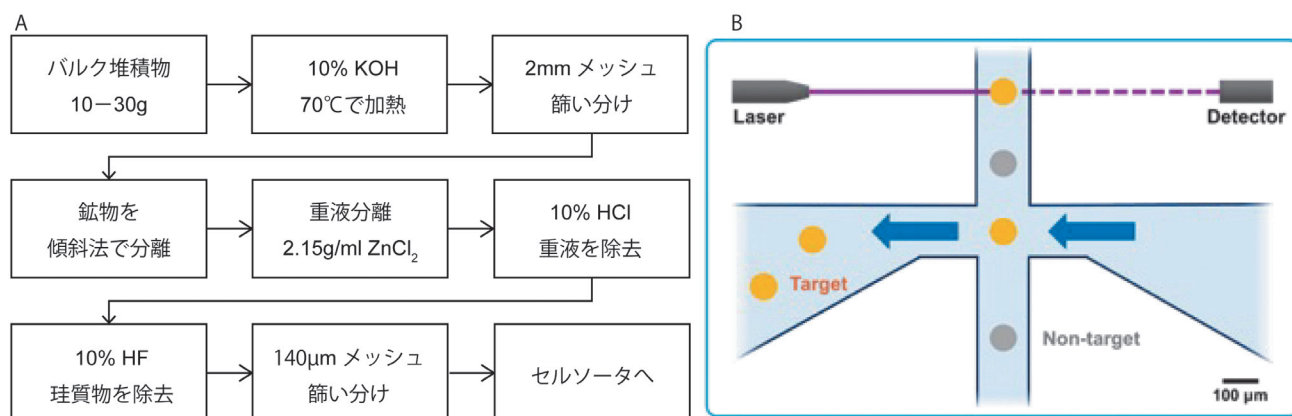


図2 セルソータによる花粉分取の概要図

A. 改良した化学処理手法のフローチャート。従来と比較して、バルク堆積物から大型の花粉をロスなく純化する。B. Flow Shift 法によるセルソータの原理。レーザーによって懸濁物を検出し、目的の粒子（花粉）のみを高速で選択的に取り出すことが可能

が限定的な湖においても、有機物の分解速度の違いによる影響により真の堆積年代からずれた古い年代を示すことが明らかになった。また、このズレ（年代オフセット）が時代によって変わり、それらが過去 5000 年間の試料に対して 200～1200 年と大きな幅を持つことも分かってきた。

同様の比較を気候や地質学的なセッティングが異なる富士五湖の試料にも適用した⁸⁻¹⁰⁾。富士五湖の堆積物ではマクロ化石試料のほかに、火山噴火により広域に堆積した火山灰（広域テフラ）や富士山から飛来したテフラ等年代既知のテフラ層との比較も含めた年代オフセットの変化について検討を行った。富士五湖のうち最も西に位置する本栖湖の堆積物試料では、バルク試料の年代とテフラとの年代オフセットは 630～730 年となり、マクロ化石との年代差も同様に確認された。つまり、バルクの堆積物が示す年代は一般に古く、堆積物試料の真の年代を得るためにはマクロ化石試料を用いるかテフラを用いる必要があることが分かる。しかしこれらの物質は一般に堆積物から連続的に得られることはなく、またマクロ化石が採取された層からもその採取数は限定的であるため、果たして年代値が妥当であるかの疑問が残るといった問題があった。

3. 花粉を用いた堆積物の年代測定

そこで毎年多量に生成され、多くが周囲の環境中に飛散する花粉を用いた ^{14}C 年代分析が注目されてきた。しかし、花粉のサイズは小さく、多くが直径

表1 セルソータのタイプと特徴

分取システム	(A) Jet-in-Air	(B) Microjet flow	(C) Flow Shift (本研究)
流路幅 (μm)	70	520	350 (A の 5 倍)
サンプル径 (μm)	0-63	0-160	0-140 (A の 2.5 倍)
ソート速度 (event/sec)	1200	700 (A の 1/2 倍)	1000 (A と同等)
メリット	速いソート	大きな花粉に対応	大きな花粉に対応 交差汚染がない
デメリット	大きな花粉不可 交差汚染の可能性	ソート速度が律速 交差汚染の可能性	

10～160 μm であるため、 ^{14}C 年代のために 1mgC を集めようとする 100 万粒子ほどの花粉を集める必要があり、 ^{14}C 年代分析に花粉を適用する際の高い壁となっていた。そんな中、特に過去 10 年間、セルソータ（レーザー光粒子分取装置）を用いた手法開発が行われてきた。セルソータはレーザーと層流を利用することで、試料を含む懸濁液から微小な細胞を分取するために開発された装置であり、生命科学分野で広く使われている¹¹⁾ 装置であるが、堆積物に適用するには多くの障壁が存在していた。つまり、装置が粒度の大きな夾雑物（きょうざつぶつ）を多く含む堆積物を対象として開発されたものではないため、地球科学の試料に適用することが難しかったのである。

しかし 2013 年にイギリスのグループが、セルソータに試料を供する前に化学処理によって多くの夾雑物を取り除く方法を考案し、更にフィルターを通して強制的に大型の花粉を装置に導入しないことで、装置に投入可能な 60 μm 以下の堆積物中の花粉を使った年代測定に成功した（Jet-in-Air 法¹²⁾）。

Jet-in-Air 法は、通常のセルソータより高圧かつ小さい流路（約 70 μm ）を用いて、層流を高速で大気には噴射することによって分取速度（試料数 / 秒）を上げる手法である。生命科学分野では現在主流で利用されている。同様の報告もその後に別グループによって行われているがやはり粒径の小さな花粉に限っての報告¹³⁾となっている。

一方、別の手法（Microjet flow 法¹⁴⁾）が近年報告され、大きな花粉にも対応する手法として注目されていた。Microjet flow 法は、マイクロジェット流によって層流中に渦を発生させ、より大きな粒子（約 160 μm ）を選別可能な手法である。しかし Jet-in-Air 法に比べると処理時間が 2 倍以上かかってしまうという難点があった。そこで、筆者らは化学処理法を工夫し、夾雑物のみを選択的に取り除く方法を開発すると共に、流路自体を試料ごとに取り替える Flow Shift 法を用いた花粉の分析手法の開発を行った（図 2、表 1）。

その結果、最適な抽出パラメータの開発に成功し、今回の手法では 350 μm 近くの径を持つ粒子も取り扱うことが可能となった（図 3）。これはマツ等大きな花粉（約 100 μm ）の直径より十分に大きいため、花粉をセルソータにかける前の作業で、人為的にサイズの大きな花粉を除去するというステップを要しない。また、大型の花粉は個体ごとの炭素量が多いため、少ない個数での測定が可能である。更に、今回の手法はソートを行う流路が取り外し可能であり、毎回の分析ごとに交換して分取を行うため、前後の試料との交差汚染が起こらないことも特筆に値する。加えて AMS 分析の技術開発も並行して行ったことにより、前処理の段階での試料量の減少を大幅に抑えることができたことに加え、分析に必要な

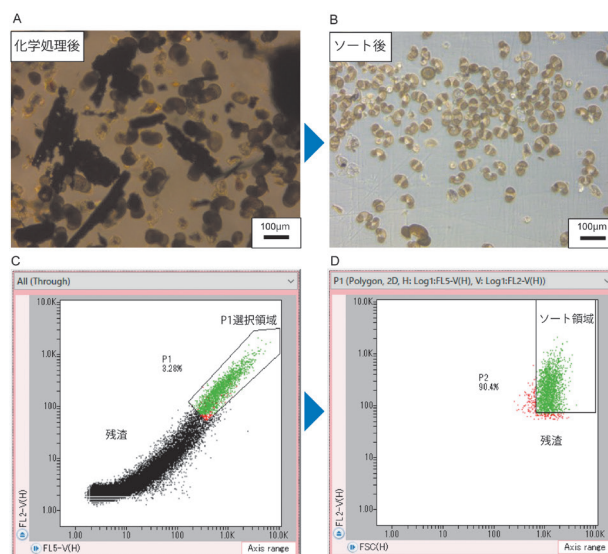


図 3 セルソータによる花粉の抽出（A・B）と光学パラメータ（C・D）

A. 化学処理後の顕微鏡写真。腐植質の夾雑物を多く含む。B. ソート後の顕微鏡写真。マツ等大きな花粉（約 100 μm 以上）の抽出に成功した。C. A から検出された懸濁物のプロット。横軸に FL5（赤色レーザー）・縦軸に FL2（緑色レーザー）からの蛍光強度、五角形で囲んだ領域 P1 を緑色・赤色で表示。黒色・赤色は残渣として回収。D. 領域 P1 の粒子に対し、横軸 FSC（散乱光による粒子径）、縦軸 FL2 のプロット。花粉粒子は P2 と定義された緑色の領域に集中している

試料量を炭素量で 100 分の 1 以下にすることができた¹⁵⁾。

今回の手法を前述の本栖湖の堆積物に適用した¹⁶⁾。その際、セルソータで分取した花粉のみならず、花粉として分取しなかった残渣についても分析を行った。その結果、花粉の年代測定結果は同層準の木の葉の結果と同様の値を示すのに対し、セルソータで分取しなかった残渣の年代は顕著に古い年代を示した（表 2）^{16, 17)}。バルク堆積物の年代はその間の年代を示し、花粉に代表される、堆積ときに形成された炭素と湖の後背地に存在する難分解性の炭素との混合であることが定量的に示された。

表 2 花粉と葉やバルク堆積物の年代比較

深度 (m)	試料	^{14}C 年代 (yr BP)	誤差 ($\pm$)	Lab ID	引用元
1.695-1.72	葉	2770	73	YAUT-027212	18
	花粉	2674	43	YAUT-056328	17
2.235-2.28	花粉	3708	74	YAUT-065117	17
	バルク堆積物	4222	31	YAUT-033232	18
	残渣	5331	138	YAUT-065119	17
3.405-3.465	花粉	6018	233	YAUT-065127	17
	バルク堆積物	6993	58	YAUT-027439	18
	残渣	9714	108	YAUT-065129	17

本手法は花粉の粒径幅をカバーし、粒径の大きな木本類の花粉の収集も可能にしたため、環境研究への応用が拡大した。これを用いて堆積物の研究を進めることにより、過去の気候や環境変動の時系列についてより正確な知見を得ることが可能となり、気候変動のメカニズムや将来の変動についての知見を深められると考えられる。

参考文献

- 1) De Laeter R. J., *Mass Spectrometry Reviews*, **17**(2)97-125 (1998)
- 2) Yokoyama, Y., *et al.*, *Terra Scientific Publishers, Toyko*, 279-309 (2004)
- 3) Yokoyama, Y., *et al.*, *Quaternary Geochronology*, **3**, 206-207 (2008)
- 4) Yokoyama, Y., *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, **455**, 311-316 (2019)
- 5) Yokoyama, Y., *et al.*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, **532**, 62-67 (2022)
- 6) Nakamura, A., *et al.*, *Journal of Quaternary Science*, **27**, 125-128 (2012)
- 7) Nakamura, A., *et al.*, *Quaternary International*, **397**, 349-359 (2016)
- 8) Lamair, L., *et al.*, *Sedimentary Geology*, **363**, 200-220 (2018)
- 9) Obrochta, S.P., *et al.*, *Quaternary Science Reviews*, **200**, 395-405 (2018)
- 10) Yamamoto, S., *et al.*, *Organic Geochemistry*, **119**, 50-58 (2018)
- 11) Fulwyler, M.J., *Science*, **150**, 910-911 (1965)
- 12) Tennant, R.K., *et al.*, *Journal of Quaternary Science*, **28**, 229-236 (2013)
- 13) Yamada, K., *et al.*, *Quaternary Science Reviews*, **272**, 107236 (2021)
- 14) Kasai, Y., *et al.*, *Science Advances*, **7**, eabe7327 (2021)
- 15) Yokoyama, *et al.*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B* (2025)
- 16) Ota, K., *et al.*, *Quaternary Science Advances*, **15**, 100207 (2024)
- 17) Obrochta, S.P., *et al.*, *Quaternary Science Reviews*, **200**, 395-405 (2018)

(東京大学大気海洋研究所)