

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 26 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2011～2015

課題番号：23224013

研究課題名(和文)アイソトポマーの計測・解析技術開発による物質循環解析

研究課題名(英文)Isotopomer material cycle analysis

研究代表者

吉田 尚弘 (YOSHIDA, Naohiro)

東京工業大学・総合理工学研究科・教授

研究者番号：60174942

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 160,300,000円

研究成果の概要(和文)：水素から硫黄に至る生元素安定同位体の自然存在度は、物質循環追跡に有効である。本研究では単一同位体に限られていた環境分子中の同位体の組み合わせからなる多種同位体置換種、即ち「アイソトープの分子版」であるアイソトポマーの計測・解析法を開発した。

これを地球温暖化関連物質とその前駆物質である生体分子に適用し、起源、生成・消滅過程の情報を読み解いた。未計測分子と観測不可能な短寿命反応中間体などの存在度予測には第一原理に基づく理論計算を行って補完した。また、地球規模3次元化学輸送モデルを窒素・硫黄酸化物に適用し、主要な地球温暖化ガスとエアロゾルの循環を解明した。

研究成果の概要(英文)：The natural stable isotopic abundances of bio elements from hydrogen to sulphur have been used for tracing the material cycles. In this project we have invented the measurement methodology of isotopomers, a molecular species with numerous isotopic molecules composed of various modes of isotopic substitution, and explored the analysis of those enormous data.

They are applied to the global warming related environmental materials and bio molecules, their precursors, as well to describe their origins, production and/or consumption processes quantitatively.

Some isotopomers unknown and short-life intermediates which cannot be observed have been studied by the ab-initio theoretical calculation, checked by the experiments and subject to models described below. The 3 dimensional chemical transfer global circulation model has been applied for the nitrogen oxides and sulphur oxides, and the cycles of a greenhouse gas and aerosols have been well analyzed with their isotopomer data.

研究分野：地球化学、環境化学、生物地球化学

キーワード：物質循環 安定同位体 アイソトポマー 環境計測 理論計算 数値モデリング

1. 研究開始当初の背景

地球化学・環境化学分野において、安定同位体組成は、物質の循環を記述する上で非常に有効な指標として利用されている。特に、水素、炭素、窒素、酸素、硫黄などの生元素の安定同位体組成は、生物圏および大気圏における様々な分子の循環像把握に利用されている。しかしながら、利用されている安定同位体組成情報は、分子中の単一元素の単一同位体比である場合が多い。

アイソトポマーは、分子中の多様な同位体の組み合わせからなる同位体置換種の総称であり、「アイソトープの分子版」と言える基盤的な概念である。多数の異なるアイソトポマーが存在する分子は、単一同位体情報のみでは得ることができない。起源物質、生成環境や反応過程、生成後の変質、消滅環境や反応過程などの豊富な多次元情報を保持している。

これまで、代表者のグループでは、地球環境に大きな影響を及ぼす環境物質に着目してアイソトポマー計測法を開発・適用し、定量的な地球環境物質の循環像の把握を行ってきた。例えば、主要な温室効果ガスの一つである大気中一酸化二窒素(N_2O)については、 $^{14}N^{14}N^{16}O$ 、 $^{14}N^{15}N^{16}O$ など12種類の区別しうるアイソトポマーが存在するが、それらの内、 $^{15}N^{14}NO$ 、 $^{14}N^{15}NO$ を区別して計測する方法を世界で初めて確立し、様々な試料に適用することで生物圏・対流圏・成層圏中に存在する N_2O のソース・シンクの精密化および定量化を行い、アイソトポマー情報の物質循環解析に対する有効性を例証してきた(例: Yoshida and Toyoda, 2000)。しかし一方で、分子構造がより複雑な、地球温暖化関連物質およびその前駆物質である生体分子については計測法が困難であるためにアイソトポマーに関する知見が未だに非常に限られている。

本研究計画では、地球環境物質に着目したアイソトポマー計測法の確立および実試料への適用を行うとともに、アイソトポマー実測データ・理論計算によるアイソトポマー分別係数を用いた数値モデリングを加えて行うことで、従来よりも高精度な地球環境物質の循環解析を行う。

2. 研究の目的

本研究における具体的な研究目標は、以下の4点である。

(1)地球温暖化関連物質の前駆体として重要な生体分子に着目して、同位体比質量分析計(IRMS)や核磁気共鳴装置(NMR)を用いたアイソトポマー計測法の開発および環境試料・微生物試料への適用を行う。

(2)地球温暖化に直接・間接的に関わる気体・エアロゾル成分について、MIF(非質量依存同位体分別)やクランプト(分子内に複数の重同位体を含む分子種)など最先端のアイソトポマー計測法を開発し、高感度化および高精度化を図って大気試料に適用する。

(3)大気化学反応において提案されている N_2O 、 CO_2 、 SO_x 等が関与する化学反応素過程において第一原理に基づく量子反応動力学を適用することにより、様々な同位体分子種に関する光解離断面積および反応定数の理論的決定を行う。

(4)これまでに集積した、および本研究で得るアイソトポマーデータをもとに、 N_2O アイソトポマーモデルと硫黄化学種アイソトポマーモデルを構築し、主要な地球温暖化関連物質である N_2O と硫酸エアロゾルの循環像を定量的に解明する。

3. 研究の方法

研究代表者の吉田は、本研究計画の総括を行った。具体的には、アイソトポマーの諸要素の最先端について国内外で情報共有して、研究計画を考案・改訂し、縦系となる要素項目と横系となる研究法を有機的に連携するように総括した。後述する各分担者の役割とその相互作用を活性化し、研究体制を強固にし、融合を加速して研究目標の達成を推進した。

研究分担者の山田とジルベルトは、分子内同位体分布に関する計測法開発を担当した。具体的には、酢酸、アミノ酸などの生体関連分子アイソトポマーを IRMS または NMR を用いて計測する方法の開発と各種試料への適用、および標準物質の作製を行った。

豊田と服部は、MIF とクランプトアイソトポマーに関する計測法開発と大気観測を担当した。具体的目標として、 CO_2 や硫酸塩の三種酸素・四種硫黄同位体比計測法、 N_2O および硝酸の三種酸素・同位体比およびクランプトアイソトポマー計測法の開発、航空機や大気球、研究船を利用した対流圏・成層圏の大気・エアロゾル観測を掲げた。

南部は、アイソトポマー分別の理論計算を担当した。 N_2O や硫黄化学種などの小数原子分子系の化学反応において、光の波長依存性や温度依存性など様々な条件に対する定量的なデータを供給した。

吉川は、 N_2O アイソトポマーモデリングを担当した。具体的には、 N_2O の循環に特化した地球システム統合モデルにアイソトポマーの循環を導入した地球システム N_2O アイソトポマーモデルの開発および同モデルを用いた N_2O 循環解析を担当した。大気については、既存の Ishijima et al. (2009) の全球三次元大気 N_2O アイソトポマーモデルを用い、本研究では主として陸域と海洋のモデル構築を行い、大気モデルに結合させた。

ダニエラチェと服部は、模擬実験と硫酸エアロゾルアイソトポマーモデリングを担当した。具体的には、硫黄化学種のチャンバーを使った同位体分別模擬実験、成層圏硫黄循環に特化した全球三次元大気大循環モデルに四種硫黄同位体の循環を導入した大気硫黄循環アイソトポマーモデルの開発および同モデルを用いた成層圏硫酸エアロゾル生

成メカニズムの解析を担当した。

4. 研究成果

(1) 研究目標 1. 生体分子のアイソトポマー計測法開発および適用について

環境分子として重要であり、かつ生化学的にも重要な代謝物である炭素数 2 の有機分子（ここでは C2 分子と呼ぶ）、エタノール、酢酸、および C3 分子であるプロパン、アラニン、ピルビン酸に着目し、その分子内炭素同位体分布を高精度（SD：0.5‰）に計測する方法を開発した。エタノールについては、オンライン熱分解法と IRMS を組み合わせた方法および定量 ^{13}C 核磁気共鳴（ ^{13}C -NMR）を用いる方法で計測を実現し、それぞれ独立した方法で得られる結果が一致することを確認した。エタノールと酢酸については標準物質を整備することができ、異なる方法（例えば、IRMS 法、 ^{13}C -NMR 法、赤外レーザー分光法）間あるいは研究室間での校正が可能となった。プロパンについては、実際試料に適用したところ、試料ごとにアイソトポマー組成に大きな違いがあることを見出した。室内有機物分解実験等で得られるプロパンの計測を基に、アイソトポマー組成の違いから、生物起源プロパンと非生物起源プロパンを明瞭に区別できることが分かった。今後、実試料データおよび室内模擬実験データによりアーカイブが蓄積し、環境中炭化水素の物質循環研究が進展すると期待される。

C3 分子であるアラニンの分子内炭素同位体分布について、オフラインの化学分解およびオンライン熱分解と IRMS 法を組み合わせた計測方法を構築した。さらに長鎖 n-アルカンの分子内炭素同位体分布について、 ^{13}C -NMR 法による計測方法を構築した。今後はさらに計測可能な分子種を増やすことが可能となる。1 つの例証として、ここで構築したオンライン熱分解-IRMS 法を、植物、バイオマス燃焼および降水試料中の酢酸に適用した。バイオマス燃焼試料中酢酸の分子内炭素同位体分布を決定したのはこれが世界で初めてである。植物由来の酢酸と比較して、バイオマス燃焼由来の酢酸は分子内分布に差がないことが特徴として見出され、分子レベルでは困難であった両者の区別が分子内同位体分布計測を利用して可能であることが示唆された。

(2) 研究目標 2. 温暖化関連物質のアイソトポマー計測法の大気試料への適用について

地球温暖化に関わる N_2O について、三種酸素同位体比を測定する新たな方法の開発に成功した。この方法は、マイクロ波放電を利用して微量の N_2O を分解し、得られる O_2 の同位体比測定を行う。5-40 nmol の N_2O を含む試料であれば、 N_2O の分離・精製、分解反応、 O_2 の分離・精製と安定同位体質量分析計への導入をオンラインで行うことができ、 ^{17}O 値が約 0.3‰の精度で得られる。従来の N_2O の熱分解を利用する方法と比べ、少ない試料

量でほぼ同等の精度で分析が可能となり、妨害成分の除去などの煩雑な分析操作も省略できるようになった。この方法を都市大気中のエアロゾルや雨水中の硝酸の酸素同位体比測定に適用し、これまでに海外の観測で報告されている値と比較した。また、さらに改良・自動化を行い、微量硝酸塩（100 nmol）試料を脱窒細菌により N_2O に変換した上で三種酸素同位体比および窒素同位体比を簡便かつ高精度に測定するシステムを構築した。

N_2O の窒素同位体の分子内分布測定法を微生物から抽出した酵素を用いた模擬実験試料、水田土壌、茶園土壌のガス試料、下水処理施設における水試料および沖縄・波照間島で毎月採取されたバックグラウンド大気試料に適用した。硝化細菌のヒドロキシルアミン酸化還元酵素、脱窒細菌の一酸化窒素還元酵素により生成する N_2O の窒素同位体の分子内分布を世界で初めて明らかにするとともに、水田の湛水開始期間に増加する N_2O 放出や茶園土壌中の高濃度 N_2O が主に脱窒細菌起源であること、下水処理工程では曝気率に応じて N_2O 生成経路が変化すること、北半球亜熱帯域では平均窒素同位体比は年々減少していること、分子内窒素同位体分布（SP 値）には経年変化が認められないことを明らかにした。

また、スイス連邦材料試験研究所（EMPA）、米国地質調査所（USGS）などとの国際共同研究により N_2O の酸素同位体および窒素同位体の分子内分布測定用標準試料の校正および配布を行った。

硫黄化学種については、硫化カルボニル（COS もしくは OCS）の硫黄同位体比測定法の開発に取り組んだ。質量分析計のイオン源におけるフラグメンテーションで生じる S^+ を利用する方法と、COS をフッ化して SF_6 に変換する方法とを比較検討した。前処理が比較的簡便であることから前者の方法を採用し、国際標準試料で校正した 2 次標準 COS を調整してデュアルインレットから導入することにより、連続フロー方式による微量オンライン分析における硫黄同位体比の校正を可能とした。大気中の低濃度 COS を低濃濃縮する前処理装置を作成し、濃縮・分離・精製方法の最適化を行った。その結果、ボンベに圧縮封入された都市大気試料の分析により、大気中 COS の硫黄同位体比の測定に成功し、研究目標 3 の結果と合わせ COS が成層圏硫酸エアロゾルの起源として矛盾がないことを示した。また、開発した新規測定法を微生物による COS 分解に応用し、微生物分解に伴う硫黄同位体分別係数を決定した。

硫酸銀（ Ag_2SO_4 ）の熱分解法による硫酸塩の三種酸素同位体組成分析法を立ち上げた。元素分析計（EA）の炉内を 1050 °C に加熱し、試料を導入することで Ag_2SO_4 を SO_2 と O_2 に分解し、自作した精製ラインを用い、中空の液体窒素トラップによって SO_2 を、モレキュラーシーブを充填した液体窒素トラップで O_2 を回収

した。トラップに分離した O_2 及び不純ガスをガスクロマトグラフに導入し、 O_2 を他の不純物(SO_3 等)から分離・精製した後、オンラインで IRMS に導入し酸素同位体比($m/z = 32, 33, 34$)を測定した。この手法を南極のアイスコア試料に応用し、大規模火山噴火時に特徴的に現れる大気酸化過程を発見した。また、エアロゾル試料として能登半島、南極のエアロゾル等に応用を開始し、三酸素同位体組成に基づく大気酸化力の復元を行った。

CO_2 のクランプト・アイソトポマー計測については、これまで不可能と考えられていた加速電圧 3kV の同位体比質量分析計を用いた計測法の確立に成功した。計測における内部精度は 0.02% (1) であり、これまでの加速電圧 10kV の同位体比質量分析計での精度に匹敵する結果を得た。これをインドの古土壌炭酸塩に応用して、地球史を通じたインドのパンゲア大陸からユーラシア大陸への移動経路を明らかにした。また、レーザー分光法により、メタンのクランプトアイソトポマーである $^{13}CDH_3$ の計測を可能とした。

(3) 研究目標 3 . 理論計算・模擬実験に基づく大気化学反応過程の分別係数の決定

硫黄含有化合物である 5 つの分子 ($SO, SO_2, H_2S, SO_3, H_2SO_4$) の内、 SO, SO_3, H_2SO_4 分子を取り上げ、光化学反応メカニズムの解明および同位体効果に関する理論的研究を遂行して来た。 SO 分子の光解離反応では量子化学動力学計算を行い、実験により観測された光吸収断面積の再現に成功し、スペクトルの特徴である振動のプロGRESSION、共鳴状態、連続状態のそれぞれにおいて期待される同位体効果の特徴を予測した。特に、プロGRESSIONと共鳴状態が MIF を与え、連続状態は MDF (質量依存同位体分別) を与えることが判明した。その結果と非断熱 *ab initio* 分子動力学 (Nonadiabatic AI-MD) 法を組み合わせることにより、 SO_3 および H_2SO_4 の光解離過程における MIF および MDF の可能性を電子励起状態および光の波長領域を指定し、予測しつつあること示した。硫酸の S_1, S_2 電子状態への励起により、脱水素原子反応が起きることが判明し、公表した。特に、硫酸には SO 二重結合が二つおよび単一結合が二つあるため、脱水素原子を起こす際、結合交代が観測された。これは、硫黄原子が激しく振動しながら、水素原子が脱離することを意味し、MIF を起こす要因になると思われる。溶液内反応においては、(Z)-penta-2,4-dieniminium cation 分子の光化学反応にて、実時間で実験を再現することに成功した。

硫化カルボニル(OCS)の消失反応である光解離、酸素ラジカル、OH ラジカルによる同位体分別をそれぞれ実験及び理論計算により決定し、それぞれを学術誌に公表した。また、OCS の光解離における波長依存同位体分別に関しては実験だけでなく、第一原理計算を用いて実験結果を再現することに成功した。理論計算からも、OCS 光解離は MIF を引き起こ

さないことも明らかとなり、現世の酸化的大気観測される硫黄の MIF には OCS 由来の硫黄化合物は関与していないことが示唆された。

半古典凍結ガウス波束発展法 (SC-FGP) に基づく非断熱遷移 (NT) を考慮した SC-FGP-NT 法を用いて大気光化学に関連する紫外線吸収スペクトルを解析した。コード開発を行い、2 原子分子用のコードでドブラー幅を考慮し、紫外線吸収スペクトルの温度依存性の解析を可能とした。このコードを用い、 SO, CO 及び O_2 分子の計算を行い、結果を発表した。また、ZN-TSH 方法による H_2SO_4 と紫外線における光解離反応の計算によって、未確認の生成物を見出し、論文として発表した。また ^{32,33,34,36} SO_2 、中でも世界で初めて ³⁶ SO_2 の吸収スペクトルの測定に成功し公表したことで大気循環の新たな手がかりを開発した。イオン誘発メカニズムにおける硫酸生成における同位体特徴付けを行った。得られたこれらの結果を目標 4 のモデルのパラメータ改訂に反映した。

(4) 研究目標 4 . アイソトポマーモデルの構築について

N_2O のアイソトポマーモデルについては、海洋 N_2O アイソトポマーモデルの構築と、海洋研究開発機構の時系列観測定点 (亜寒帯定点 K2: 北緯 47 度/東経 160 度、亜熱帯定点 S1: 北緯 30 度/東経 145 度) への適用、同定点における N_2O 循環の解析を行った。モデル構築に必要なアイソトポマーデータを得るため、海洋研究開発機構の海洋地球研究船「みらい」による調査航海 MR12-02、MR13-04、MR14-04 に参加し、西部北太平洋の亜熱帯と亜寒帯の上記の 2 つの定点 K2、S1 において、硝酸・クロロフィル・ N_2O 同位体比・同位体分子種比測定用試水の採取を行い、硝酸の窒素・酸素同位体比、クロロフィルの炭素・窒素同位体比、 N_2O の窒素・酸素同位体比とアイソトポマー比を測定し、硝化・硝化脱窒速度測定のための船上培養実験を行った。

これまでに得られた窒素同位体比を含む観測データをもとに、Yoshikawa et al. (2005) の海洋窒素循環 窒素同位体モデルに、新たに N_2O を導入し、K2 と S1 に適用した。同モデルにより、観測されたクロロフィルと硝酸の濃度と窒素同位体比の季節変化を概ね再現することができた。K2 は鉄律速の海域であるため、表層の硝酸濃度は夏でも $5\mu M$ 以下にはならない。生物生産が活発な春から秋にかけて、表層の硝酸濃度の低下とともに、硝酸の窒素同位体比とクロロフィルの窒素同位体比は上昇した。これは、植物プランクトンが ^{14}N からなる硝酸を選択的に取り込むためである。一方、S1 は貧栄養海域であるため、年間を通して表層の硝酸濃度は $0.5\mu M$ 以下であった。クロロフィルの窒素同位体比が K2 よりも S1 の方が高かった要因は、S1 は K2 よりも硝酸利用効率が高かったためであると推測された。

また同モデルは、 N_2O の濃度とアイソトポマー比の季節変化を概ね再現することができた。K2 は S1 よりも高い N_2O 濃度を示した。これは、K2 の方が生物生産や硝化活性が高いことと、水塊年齢が古く、硝化が進んだ海水が深層から表層へ供給されていることが、その要因として考えられる。同モデルによる N_2O 放出量は、K2 が $32.3\text{mgN/m}^2/\text{yr}$ 、S1 が $2.7\text{mgN/m}^2/\text{yr}$ と見積もられた。本研究の結果は、Yoshikawa et al., inpress へまとめた。

大規模火山噴煙を模擬したプルームモデルを用いることで、成層圏での大気化学反応により硫酸の硫黄安定同位体比が変化するメカニズムの解明に成功した。この結果、 SO_2 の光励起反応によって引き起こされる質量非依存分別によって極域の雪やアイスコアの記録を初めて再現した。今後、硫黄同位体記録を用いた火山噴火の規模や気候への影響の定量的な復元への展開が期待される。以上の結果を公表し、プレスリリースを行った。

地球温暖化に逆効果を持つエアロゾルの起源を見積るため硫黄循環を理解する必要があり、より詳しい理解を得るために定常状態を導入した全球大気モデルを開発した。本研究で用いたモデルは CCSR/NIES/FRCGC AGCM(v5.7b) で、水平分解能は T42(約 $2.8^\circ \times 2.8^\circ$)、鉛直分解能は 67 層(約 0~80km)であり、OCS の光分解・酸化反応、 SO_2 酸化反応、硫酸エアロゾルの生成過程のおよび O_3 に関する反応が考慮されている。ナッチングには NCEP2 再解析データを用いた。硫黄化学種の同位体は、 ^{32}S と ^{34}S の循環を組み込み、 ^{34}S を予報した。地表放出シナリオは、 SO_2 は EDGAR、GEIA を基に、OCS は地表面で 500ppbv になるように作成し、それぞれの同位体比と同位体分別定数をそれぞれ研究目標 2 と 3 で得たデータを用いた。

<引用文献>

N. Yoshida and S. Toyoda, Constraining the atmospheric N_2O budget from intramolecular site preference in N_2O isotopomers, *Nature*, 405, 330-334, 2000.

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 9 1 件)

Tarin Nimmanwudipong, Zhang Naizhong, Alexis Gilbert, Keita Yamada and Naohiro Yoshida, Determination of intramolecular ^{13}C isotope distribution of pyruvate by headspace solid phase microextraction-gas chromatography/pyrolysis-gas chromatography/combustion-isotope ratio mass spectrometry (HSSPME-GC/Py-GC/C-IRMS) method, *Journal of Analytical & Bioanalytical*

Techniques, 7: 293.

doi:10.4172/2155-9872.1000293, 2015. (査読有)

Koki Maeda, Ayme Spor, Veronique Edel-Hermann, Cecile Heraud, Marie-Christine Breuil, Florian Bizouard, Sakae Toyoda, Naohiro Yoshida, Christian Steinberg & Laurent Philippot, N_2O production, a widespread trait in fungi, *Scientific Reports*, 5, DOI: 10.1038/srep09697, 2015. (査読有)

Kobayashi O., Nanbu S., Application of particle-mesh Ewald summation to ONIOM theory, *Chem. Phys.*, 461, 47-57, 2015. (査読有)

Yoshikawa, C., Abe, H., Aita, M.N., Breider, F., Kuzunuki, K., Toyoda, S., Ogawa, N.O., Suga, H., Ohkouchi, N., Danielache, S.O., Wakita, M., Honda, M.C., and Yoshida, N., Insight into nitrous oxide production processes in the western North Pacific based on a marine ecosystem isotopomer model. *Journal of Oceanography*. pp1-18, doi:10.1007/s10872-015-0308-2. 2015. (査読有)

Konomi Suda, Yuichiro Ueno, Motoko Yoshizaki, Hitomi Nakamura, Ken Kurokawa, Eri Nishiyama, Koji Yoshino, Yuichi Hongoh, Kenichi Kawachi, Soichi Omori, Keita Yamada, Naohiro Yoshida, Shigenori Maruyama, Origin of methane in serpentinite-hosted hydrothermal systems: The $\text{CH}_4\text{-H}_2\text{-H}_2\text{O}$ hydrogen isotope systematics of the Hakuba Happo hot spring, *Earth and Planetary Science Letters*, 386, 112-125, 2014.

Doi:10.1016/j.epsl.2013.11.001 (査読有)

Kevin Bayle, Alexis Gilbert, Maxime Julien, Keita Yamada, Virginie Silvestre, Richard J. Robins, Serge Akoka, Naohiro Yoshida, Gerald S. Remaud, Conditions to obtain precise and true measurements of the intramolecular ^{13}C distribution in organic molecules by isotopic ^{13}C nuclear magnetic resonance spectrometry, *Analytica Chimica Acta*, 846, 1-7, doi:10.1016/j.aca.2014.07.018, 2014. (査読有)

Shohei Hattori, Johan A. Schmidt, Matthew S Johnson, Sebastian Danielache, Akinori Yamada, Yuichiro Ueno, Naohiro Yoshida, SO_2 photoexcitation mechanism links mass-independent sulfur isotopic

fractionation in cryospheric sulfate to climate impacting volcanism, Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 110, 17656-17661, doi: 10.1073/pnas.1213153110, 2013. (査読有)

Gilbert, Alexis; Yamada, Keita; Yoshida, Naohiro, Accurate method for the determination of intramolecular C-13 isotope composition of ethanol from aqueous solutions, Analytical Chemistry, 85, 14, 6566-6570, DOI: 10.1021/ac401021p, 2013. (査読有)
Toyoda, S., N. Kuroki, N. Yoshida, K. Ishijima, Y. Tohjima, and T. Machida, Decadal time series of tropospheric abundance of N₂O isotopomers and isotopologues in the northern hemisphere obtained by the long-term observation at Hateruma Island, Japan, J. Geophys. Res., 118, 3369-3381, doi: 10.1002/jgrd.50221, 2013. (査読有)
Naohiro Yoshida, Jota Kanda, Tracking the Fukushima radionuclides, Science, 336, 1115-1116, doi:10.1126/science.1219493, 2012 (査読有).

[学会発表](計198件)

Naohiro Yoshida, Position specific analysis of nitrogen and carbon isotopes in molecules of biogeochemical interests, Goldschmidt Conference, 16-22, Aug., 2015, Prague, Czech. (Keynote)
Naohiro Yoshida, Specific mode analyses of isotopically substituted molecules to better constrain their cycles in the environment, 9th International IsoEcol Conference, 3-8, August, The University of Western Australia, Perth, 2014. (Keynote)
Naohiro Yoshida, Tarin Nimmanwudipong, Alexis Gilbert and Keita Yamada, Online methods for the position specific analysis of ¹³C in some light organic compounds, Arbeitsgemeinschaft Stabile Isotopen (ASI), 15-17, Oct., Helmholtz Center, Munich, Germany, 2014. (Keynote)
Naohiro Yoshida, Isotopomer analysis of molecules of geochemical interest in the interface among the atmosphere, the oceans, land surface, and the biosphere., 2013 Annual Meeting of Chinese Society for Mineralogy, Petrology, and Geochemistry, 23-Apr, Nanjin, China, 2013. (Plenary)
Naohiro Yoshida, Isotopomeric

signatures of nitrous oxide emitted from eutrophic urban rivers and wastewater treatment systems, 2012 ASLO Aquatic Sciences Meeting, July 8-13, Biwako Hall, Japan, 2012. (Keynote)

[図書](計1件)

高橋嘉夫、吉田尚弘、東京大学出版会、原発事故環境汚染：福島第一原発事故の地球科学的側面、79-81、2014.

[その他]

ホームページ等

<http://nylab.chemenv.titech.ac.jp/>

yoshida.n.aa@m.titech.ac.jp

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉田 尚弘 (YOSHIDA, Naohiro)
東京工業大学・総合理工学研究科・教授
研究者番号：60174942

(2) 研究分担者

南部 伸孝 (NANBU, Shinkoh)
上智大学・理工学部・教授
研究者番号：00249955

山田 桂太 (YAMADA, Keita)
東京工業大学・総合理工学研究科・准教授
研究者番号：70323780

豊田 栄 (TOYODA, Sakae)
東京工業大学・総合理工学研究科・准教授
研究者番号：30313357

吉川 知里 (YOSHIKAWA, Chisato)
国立研究開発法人海洋研究開発機構・研究員
研究者番号：40435839

ダニエラチェ セバスティアン
(Danielache, O. Sebastian)
上智大学・理工学部・助教
研究者番号：00595754

服部 祥平 (HATTORI, Shohei)
東京工業大学・総合理工学研究科・助教
研究者番号：70700152

ジルベルト アレキシー (GILBERT, Alexis)
東京工業大学・地球生命研究所・特任助教
研究者番号：20726955