

**先端研究助成基金助成金(最先端・次世代研究開発支援プログラム)
実施状況報告書(平成 23 年度)**

本様式の内容は一般に公表されます

研究課題名	安定同位体異常を用いた地球大気硫黄循環変動の解析
研究機関・ 部局・職名	東京工業大学・大学院理工学研究科・准教授
氏名	上野 雄一郎

1. 当該年度の研究目的

硫黄同位体を用いた大気組成指標の構築と太古代末期に起きた大気組成変動の実体解明のため、H23年度前半は ^{36}S を含めた四種 SO_2 同位体分子種について分光計測を行い、その紫外吸収断面積を決定する。これにより多種同位体分別過程の波長依存性を明らかにする。このスキームはチャンバー内光解離実験によって検証されたのち、大気組成の変化がもたらす大気硫黄の化学反応経路の違いについて示唆があたえられる。H23年度はこれら解析の基礎となる実験・計測法の確立を最優先する。計測法の核となる質量分析計は当年度に導入し、かつ試料導入部を改造することでオンライン計測法を確立する。試料のフッ化/精製と質量分析を一体化させることで分析精度の向上と試料処理の迅速化および微量化を同時に達成することを目的としている。一方古大気情報を地質試料から抽出するため、後期太古代(約30から25億年前)に着目して既に採取済みの物を分析し、同位体異常のシフトがどの時代に起きるかを明らかにする。この結果をふまえて冬期に後期太古代地質体であるDharwar地塊において野外調査を行い試料を採集する。また大気モデルについてはベンチマーク計算を行い、当年度中には関連する分子の同位体を含めた大気化学反応をモデルに導入することを旨とする。

2. 研究の実施状況

四種硫黄同位体を用いた大気組成指標の構築と太古代末期に起きた大気組成変動の実体解明が本研究のゴールである。当年度は存在度の低い ^{36}S を含めた4つの SO_2 同位体分子種について分光計測を二つの吸収帯について行い、それらの紫外吸収断面積を決定することに成功した。このデータを解析した結果、太陽光による ^{33}S , ^{36}S の二つの同位体異常が地層に記録された数値を再現することが明らかになった。これは同手法を大気組成変動の解析に用いるための基礎となる。また計測法の核となる質量分析計は予定通り前年度に導入され、かつ試料導入部の改造の結果、マイクロボリュームインレット法によるオンライン計測法が確立された。これにより分析精度の向上と微量化が想定以上に早く進んだ。一方、二つの同位体異常の関係とその程度については分光実験のみでは不確実性が伴うため、 SO_2 に紫外線を照射し光解離を行い、その反応物を同位体計測することで、分光実験の結果を補完する。このための実験装置が立ち上がり、実験生成物 OCS の分析法が確立された。これにより従来行われていなかった低 SO_2 分圧下での光解離実験を行うことが可能となり、より実大気に近い情報を得ることが可能になった。地質試料については2011年冬期に後期太古代地質体であるDharwar地塊において野外調査が行われ、試料の同位体計測がなされた。従来データとの比較から太古代末に生じた同位体比変動のうち地域的シグナルと全球的シグナルを区別することで、大気変動に由来する成分を抽出することが可能になった。これらを統合するための大気モデルについては関連する分子の同位体を含めた大気化学反応をモデルに組み込んだ。これらはまだ初期段階にあるが、安定同位体分別の挙動を考慮することで、大気硫黄循環の素過程を安定同位体の実測値から追跡・検証するモデルが構築されると期待される。

様式19 別紙1
3. 研究発表等

雑誌論文	(掲載済み一査読有り) 計7件
計11件	<p>Hattori, S., Danielache, S. O., Johnson, M. S., Schmidt, J. A., Kjaergaard, H. G., Toyoda, S., Ueno, Y., and Yoshida, N. (2011) Ultraviolet absorption cross sections of carbonyl sulfide isotopologues OC(32)S, OC(33)S, OC(34)S and O(13)CS: isotopic fractionation in photolysis and atmospheric implications: <i>Atmospheric Chemistry and Physics</i>, v. 11, p. 10293-10303.</p> <p>Sasaki, Y., Koba, K., Yamamoto, M., Makabe, A., Ueno, Y., Nakagawa, M., Toyoda, S., Yoshida, N., and Yoh, M. (2011) Biogeochemistry of nitrous oxide in Lake Kizaki, Japan, elucidated by nitrous oxide isotopomer analysis: <i>Journal of Geophysical Research</i>, v. 116, p. G04030, doi:10.1029/2010JG001589.</p> <p>Ueno (2011) When did life begin? It is older than 3.8 Ga: Evidence from Greenland. <i>Journal of Geography</i> 125. 877-885.</p> <p>Enghoff, M.B., Bork, N., Hattori, S., Meusinger C., Nakagawa, S., Pedersen J.O., Danielache, S., Ueno Y., Johnson, M., Yoshida, N. and Svensmark, H. (2012) An isotope view on ionising radiation as a source of sulphuric acid, <i>Atmospheric Chemistry and Physics Discussion</i>, 12, 5039-5064, 2012</p> <p>Igisu, M., Takai, K., Ueno, Y., Nishizawa, M., Nunoura, T., Hirai, M., Kaneko, M., Naraoka, H., Shimojima, M., Hori, K., Nakashima, S., Ohta, H., Maruyama, S., and Isozaki, Y. (2012) Domain-level identification and quantification of relative prokaryotic cell abundance in microbial communities by Micro-FTIR spectroscopy: <i>Environmental Microbiology Reports</i>, v. 4, p. 42-49. DOI: 10.1111/j.1758-2229.2011.00277.x.</p> <p>Shibuya, T., Tahata, M., Kitajima, K., Ueno, Y., Komiyama, T., Yamamoto, S., Igisu, M., Terabayashi, M., Sawaki, Y., Takai, K., Yoshida, N., and Maruyama, S. (2012) Depth variation of carbon and oxygen isotopes of calcites in an Archean altered upper oceanic crust: Implications for CO₂ flux from ocean to oceanic crust in the Archean era: <i>Earth and Planetary Science Letters</i>. 321, 64-73</p> <p>Yoshida, T. Y., Nunoura, T., Kazama, H., Noguchi, T., Inoue, K., Akashi, H., Yamanaka, T., Toki, T., Yamamoto, M., Furushima, Y., Ueno, Y., Yamamoto, H., and Takai, K., (2012) Spatial distribution of viruses associated with planktonic and attached microbial communities in hydrothermal environments: Spatial distribution of viruses associated with planktonic and attached microbial communities in hydrothermal environments: <i>Applied and Environmental Microbiology</i>, 78, 1311-1320.</p>
	(掲載済み一査読無し) 計0件
	(未掲載) 計4件
	Saito, M., Isozaki, Y., Yao, J., Ji, Z., Ueno, Y., and Yoshida, N. The appearance of an

	<p>oxygen-depleted condition on the Capitanian disphotic slope/basin in South China: Middle-Upper Permian stratigraphy at Chaotian in northern Sichuan: Global and Planetary Change, v. in press.</p> <p>Ishikawa T., Ueno Y., Shu D., Li Y., Han J., Guo J., Yoshida N., and Komiya T. Irreversible change of the oceanic carbon cycle in the earliest Cambrian: High-resolution organic and inorganic carbon chemostratigraphy in the Tree Gorges area, South China. Precambrian Research, in press</p> <p>Hokada T., Horie K., Satish-Kumar M., Ueno Y., Nasheeth A., Mishima K., and Shiraishi K. An appraisal of Archaean supracrustal sequences in Chitradurga Schist Belt, Western Dharwar Craton, Southern India. Precambrian Research, in press.</p> <p>Kawagucci S., Ueno Y., Takai K., Toki T., Ito M., Inoue K., Makabe A., Yoshida N., Muramatsu Y., Takahata N., Sano Y., Narita T., Teranishi G., Obata H., Nakagawa S., Nunoura T., and Gamo T. Geochemical origin of hydrothermal fluid methane in sediment-associated fields and its relevance to the geographical distribution of whole hydrothermal circulation. Geochemical Journal. in press.</p>
<p>会議発表 計 20 件</p>	<p>専門家向け 計 19 件</p> <p>Sebastian Danielache, Shohei Hattori, Matthew Johnson, Yuichiro Ueno, and Naohiro Yoshida , Ultraviolet Spectroscopy of 32S, 33S, 34S and 36S Sulfur Dioxide: Absorption Cross Sections at 190-220 nm and the isotopic fractionations in the photodissociation reaction. (oral) European Geophysical Union, Vienna, 2011/4/5.</p> <p>Sebastian Danielache, Shohei Hattori, Matthew Johnson, Yuichiro Ueno, and Naohiro Yoshida, Ultraviolet Spectroscopy of 32S, 33S, 34S and 36S Sulphur Dioxide: Absorption Cross Sections in the 250-330 nm and the isotopic fractionations of the SO2* reaction (poster), European Geophysical Union, Vienna, 2011/4/5.</p> <p>Denise Mahler, Carl Meusinger, Sebastian Danielache, Yuichiro Ueno, Remy Jost, and Matthew S. Johnson, Absorption Cross Sections of Sulfur Dioxide Isotopologues and the Dual Beam Spectrometer (poster), European Geophysical Union, Vienna, 2011/4/5.</p> <p>Jun Kawai, Yumiko Obayashi, Yoshitaka Yoshimura, Kazuhiro Inoue, Yuichiro Ueno, Yoshinori Takano, Toshiro Yamanaka, and Kensei Kobayashi (poster) Phosphatase activity as a biomarker for extant life in extreme environments, Origins 2011 ISSOL & Bioastronomy Joint International Conference, Montpellier (France) July 2011.</p> <p>Shohei Hattori, Sebastian Danielache, Matthew S. Johnson, Henrik G. Kjaergaard, Yuichiro Ueno, Naohiro Yoshida (poster) Sulfur isotope fractionations in carbonyl sulfide sink reactions in atmosphere 地球惑星科学連合大会、幕張、東京 2011/5/23</p> <p>Kazumi Yoshiya, Manabu Nishizawa, Yuichiro Ueno, Tsuyoshi Komiya, Shigenori Maruyama, Naohiro Yoshida, Takafumi Hirata (oral) The Late Archean diversity of organisms: evidence from morphology and in situ iron isotope analyses of pyrites地球惑星科学連合大会、幕張、東京 2011/5/24</p> <p>Miyuki Tahata, Ryouhei Kikumoto, Yusuke Sawaki, Yoshihiro Okada, Yuichiro Ueno, Tsuyoshi</p>

	<p>Komiya, Naohiro Yoshida, Shigenori Maruyama (oral) The analysis of D47 and oxygen isotope ratio of the Ediacaran Doushantuo Formation South China 地球惑星科学連合大会、幕張、東京 2011/5/24</p> <p>Motoko Igisu, Tsuyoshi Komiya, Satoru Nakashima, Yuichiro Ueno, Shigenori Maruyama (poster) Infrared microspectroscopic characterization of Ediacaran microfossils from Doushantuo Formation, Weng'an area地球惑星科学連合大会、幕張、東京 2011/5/24</p> <p>Kentaro Yamada, Yuichiro Ueno, Keita Yamada, Tsuyoshi Komiya, Naohiro Yoshida, Shigenori Maruyama (oral) Stable carbon isotope ratio of n-alkanes and isoprenoids from the Cambrian section in the Three Gorge area, South China地球惑星科学連合大会、幕張、東京 2011/5/24</p> <p>Takuya Saitou, Takazo Shibuya, Tsuyoshi Komiya, Kouki Kitajima, Shinji Yamamoto, Manabu Nishizawa, Yuichiro Ueno, Shigenori Maruyama, Masanori Kurosawa (oral) Geochemical analyses of the 2.2 Ga fluid inclusions: Impact of Snowball Earth on eukaryote diversification 地球惑星科学連合大会、幕張、東京 2011/5/24</p> <p>Hisatoshi Sato, Yuichiro Ueno, Tsuyoshi Komiya, Naohiro Yoshida, Shigenori Maruyama (poster) Extraction methane from sedimentary carbonates and measurement stable carbon isotope地球惑星科学連合大会、幕張、東京 2011/5/25</p> <p>YUICHIRO UENO, SEBASTIAN DANIELACHE, SHOHEI HATTORI MATTHEW JOHNSON, NAOHIRO YOSHIDA (oral) Ultraviolet Spectra of 32/33/34/36SO₂; implications for the archean atmosphere Prague Congress Centre, Prague, Czech Republic, August 14-19, 2011</p> <p>山崎里英・エム サティシュクマール・亀井淳志・中川麻悠子・上野雄一郎・外田智千・アブドゥッラ ナシース・吉田尚弘 (poster) インド、始生代ダールワール岩体、チトラドゥルガ片岩帯における変成堆積岩の炭素・硫黄・酸素・ストロンチウム同位体研究 地球化学会年会、北海道大学、札幌、2011/9/14-16.</p> <p>小林真理子、川口慎介、服部祥平、山田桂大、上野雄一郎、高井研、吉田尚弘 (ポスター) H₂-H₂O-CH₄ の水素同位体システムティクスから考える微生物由来メタンの水素同位体比決定機構の解明。地球化学会年会、北海道大学、札幌、2011/9/14-16.</p> <p>上野雄一郎・ダニエラチェ セバスチアン (口頭発表) 太古代大気と四種硫黄同位体分別 地球化学会年会、北海道大学、札幌、2011/9/14-16.</p> <p>ダニエラチェ・セバスチアン・朋部祥平・上野雄一郎・吉田尚弘・ジョンソン マシュー(口頭発表) SO₂の光解離における波長依存同位体分別。地球化学会年会、北海道大学、札幌、2011/9/14-16.</p> <p>朋部祥平・ダニエラチェ セバスチアン・ジョンソン マシュー・シュミット ヨハン₂・キャラガード ヘンリック・豊田栄・上野雄一郎・吉田尚弘 (口頭発表) 硫化カルボニルの光解離反応における波長依存同位体分別、その理論的な理解と大気への応用 地球化学会年会、北海道大学、札幌、2011/9/14-16.</p> <p>Yuichiro Ueno, Sulfur isotope anomaly witnessed paleoatmosphere and solar evolution? (oral)</p> <p>6th Symposium on the Science by Astronomical Earth Observatory (Chimondai) & International Workshop of Interactive Research Center of Science, Kuramae Hall, Tokyo. 2011/10/31.</p>
--	---

様式19 別紙1

	<p>Mariko Kobayashi, Shinsuke Kawagucci, Shohei Hattori, Keita Yamada, Yuichiro Ueno, Ken Takai, Naohiro Yoshida (poster) Hydrogen isotope systematics of H₂-H₂O-CH₄ during hydrogenotrophic methanogenesis. American Geophysical Union Fall meeting, San Francisco, USA, December 2011.</p> <p>一般向け 計1件</p> <p>上野雄一郎 同位体で追跡する地球大気のなりたち 東工大が誇る若手研究者たち、東京工業大学、2011/11/12</p>
<p>図書 計0件</p>	
<p>産業財産権 出願・取得状 況 計0件</p>	<p>(取得済み) 計0件 (出願中) 計0件</p>
<p>Webページ (URL)</p>	
<p>国民との科学・技術対話 の実施状況</p>	<p>高校生・一般向け公開講演会「同位体で追跡する地球大気のなりたち」上野雄一郎 (2011.11.12) 東京工業大学大岡山キャンパス・デジタル多目的ホール (東工大主催、56名参加)</p> <p>[内容] 最新の成果を紹介しつつ同位体という手法で地球大気の何がわかるのか一般向けに解説した。</p>
<p>新聞・一般雑誌等掲載 計0件</p>	
<p>その他</p>	

4. その他特記事項

実施状況報告書(平成23年度) 助成金の執行状況

本様式の内容は一般に公表されます

1. 助成金の受領状況(累計)

(単位:円)

	①交付決定額	②既受領額 (前年度迄の 累計)	③当該年度受 領額	④(=①-②- ③)未受領額	既返還額(前 年度迄の累 計)
直接経費	110,000,000	82,680,000	0	27,320,000	0
間接経費	33,000,000	24,804,000	0	8,196,000	0
合計	143,000,000	107,484,000	0	35,516,000	0

2. 当該年度の収支状況

(単位:円)

	①前年度未執 行額	②当該年度受 領額	③当該年度受 取利息等額 (未収利息を除 く)	④(=①+②+ ③)当該年度 合計収入	⑤当該年度執 行額	⑥(=④-⑤) 当該年度未執 行額	当該年度返還 額
直接経費	82,570,000	0	7,141	82,577,141	80,847,957	1,729,184	0
間接経費	24,771,000	0	0	24,771,000	24,771,000	0	0
合計	107,341,000	0	7,141	107,348,141	105,618,957	1,729,184	0

3. 当該年度の執行額内訳

(単位:円)

	金額	備考
物品費	79,763,882	質量分析装置、検出器、実験関連消耗品等
旅費	1,084,075	野外調査旅費、研究成果発表旅費
謝金・人件費等	0	
その他	0	
直接経費計	80,847,957	
間接経費計	24,771,000	
合計	105,618,957	

4. 当該年度の主な購入物品(1品又は1組若しくは1式の価格が50万円以上のもの)

物品名	仕様・型・性能 等	数量	単価 (単位:円)	金額 (単位:円)	納入 年月日	設置研究機関 名
ガスクロマトグラフ 装置及びデータ処 理ソフト	GC-4000DDT	1	1,983,187	1,983,187	2011/7/21	東京工業大学
高精度安定同位体 比質量分析システ ム	MAT253質量分 析計	1	72,817,500	72,817,500	2011/9/29	東京工業大学
MAT253用ファラ デーコレクタ	サーモフィッ シャー社製	1	1,260,000	1,260,000	2011/9/29	東京工業大学