

令和 5 年 4 月 12 日

極少量のサンプルから 超微量の放射性ストロンチウムを計測する技術を開発

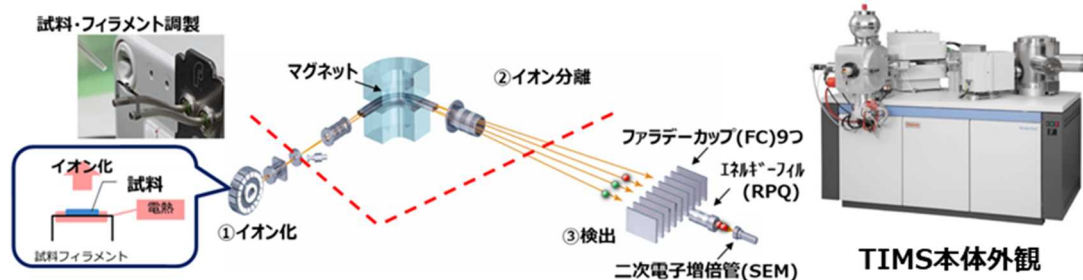
今回、極少量のサンプルから超微量の放射性ストロンチウムを計測する技術を開発しましたので報告いたします。この技術は、放射能分析を新たなステージへと導く革新的なものであり、アメリカ化学会のハイインパクトジャーナルである「Analytical Chemistry」誌オンライン版に掲載されるとともに、「ACS Editors' choice」に選定されました。

【開発の概要】

放射性ストロンチウム 90 (^{90}Sr) は、放射性物質の中でも特に分析することが難しいものの一つです。そのため、サンプル量が現実的に少量しか採取できないもの（例えば、涙、粘膜、歯、貴重な環境試料など）については、これまで超微量な放射性ストロンチウムを測定することができませんでした。今回、福島大学と海洋研究開発機構の合同チームは表面電離型質量分析装置を用いる計測技術でこれを可能にしました。

従来、分析する際はグラムレベル（1~100g）の試料を準備する必要がありました。この技術は画期的な方法で、1 ミリグラム（mg）程度の試料で測定できるだけでなく、世界で誰もなし遂げたことのないレベルの放射性ストロンチウム量（0.98 ag (5.0 μBq)) を正確に測ることができます [ag : アトグラム= 10^{-18}g]。この技術によって、これまで不可能であった小動物や魚類の歯や骨への放射性ストロンチウムの蓄積を正確に測定できるようになります。これからの放射性ストロンチウム 90 を含めた放射能調査の概念を拡張する革新的な技術です。

この成果は、アメリカ化学会『Analytical Chemistry』誌に採択されるとともに、広く一般の人々に影響を与える可能性がある「ACS Editors' choice」に選定されました。



また、7月9～14日にフランス・リヨンで開催される国際会議 Goldschmidt 2023 Conference にて研究成果報告をいたします。

ACS Editors' Choice とは

ACS (アメリカ化学会) が発刊している 64 誌以上の論文の中から、世界的な著名なエディターが 1 日 1 報の優れた論文を選択する制度です。また、選ばれる論文は、広く一般の人々の興味を引く可能性があるものしか選ばれず、非常に栄誉なことです。「ACS Editors' Choice」に選ばれた論文は、期間限定で無料で公開され、ACS 会員や ACS 雑誌の購読者にそのことがメールで連絡されます。

【主たる開発メンバー】

- ・ 高貝慶隆 (福島大学 共生システム理工学類 教授)
- ・ 青木譲 (福島大学大学院 共生システム理工学研究科博士後期課程 3 年)
- ・ 鈴木勝彦 (海洋研究開発機構)
- ・ 若木重行 (海洋研究開発機構)
- ・ 宮崎隆 (海洋研究開発機構)

【論文情報】

Title: "Direct Quantification of Attogram Levels of Strontium-90 in Microscale Biosamples Using Isotope Dilution-Thermal Ionization Mass Spectrometry Assisted by Quadrupole Energy Filtering"

Authors: Aoki, Jo; Wakaki, Shigeyuki; Ishiniwa, Hiroko; Kawakami, Tomohiko; Miyazaki, Takashi; Suzuki, Katsuhiko; Takagai, Yoshitaka

Journal: Analytical Chemistry

Publication Date (Web): March 12, 2023

<https://doi.org/10.1021/acs.analchem.2c04844>

(研究に関するお問い合わせ先)

共生システム理工学類・教授 高貝 慶隆

電話: 024-548-8202

メール: s015@ipc.fukushima-u.ac.jp

(広報に関するお問い合わせ先)

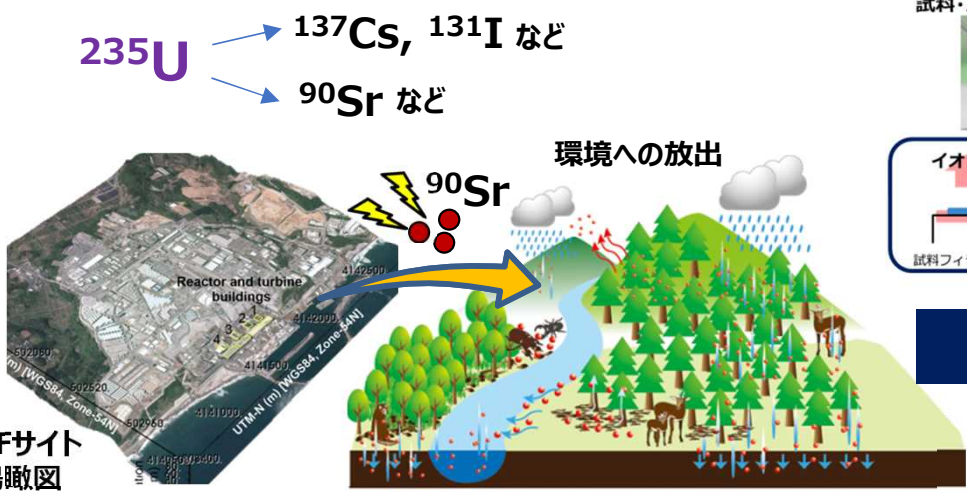
福島大学 総務課広報係

電話: 024-548-5190

メール: kouho@adb.fukushima-u.ac.jp

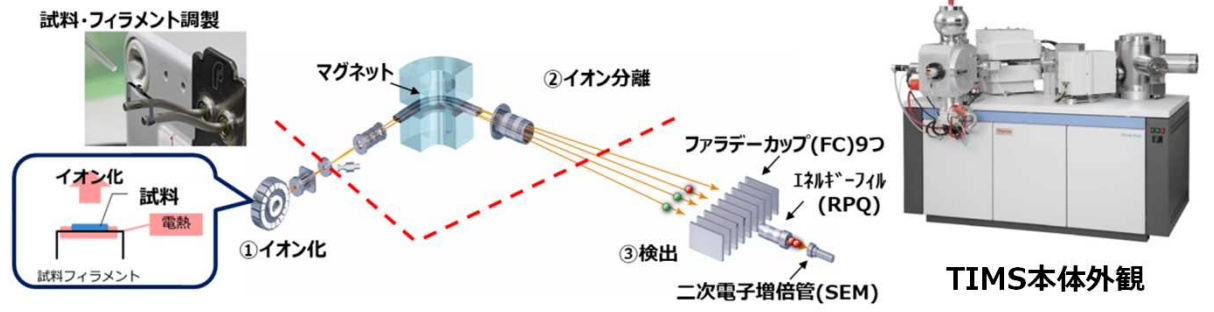
1F事故と⁹⁰Srの環境への放出

- 福島第一原子力発電所(1F)事故によって、大量の放射性物質が環境に放出され、多くの機関がセシウム(Cs)を中心に調査。
- 放射性ストロンチウム(⁹⁰Sr)は、140兆ベクレル(0.14 PBq)が放出されたが、その詳しい調査はほとんど進んでいない。
- その革新的計測法を開発 (2023年福島大)。

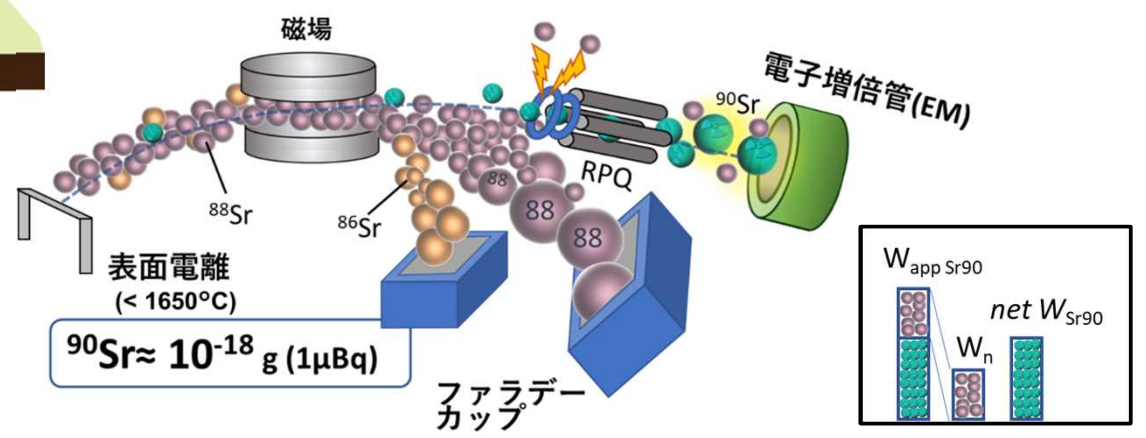


革新的計測技術「表面電離型質量分析 (TIMS)」

- ◎ 表面電離型質量分析(TIMS)を用いる新しい⁹⁰Sr分析方法を開発。
- ◎ 一般的なTIMSは『同位体比』を測定。新技術は⁹⁰Srと安定Srを同時に直接定量。
- ◎ 1 mg程度の試料量から検出下限値0.31~1.95 Bq/kgを達成できる。。
- ◎ 計測時間は 1.5時間 (前処理3h+真空引き12h(~20検体)+TIMS計測1.5h /検体)
- ◎ 微小試料に含まれる⁹⁰Srを高感度に計測できる唯一無二の計測法



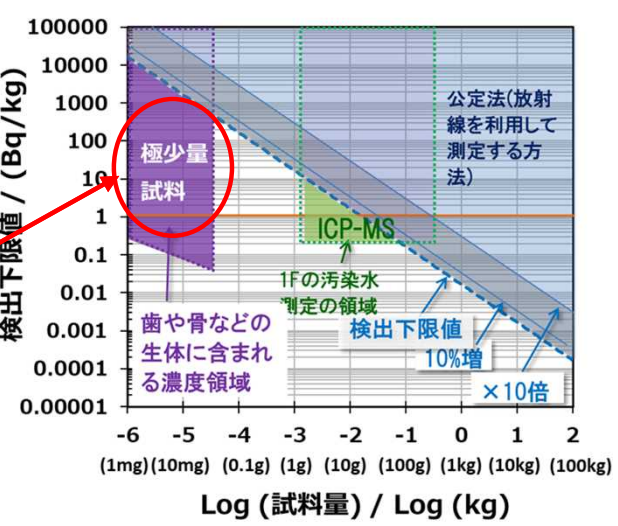
⁹⁰Srを超高感度に計測できる理由・技術



⁹⁰Srの生態蓄積調査が進まない原因

◎ ⁹⁰Srの生態蓄積調査が進まない要因は、少ない試料量(mg単位)で低濃度(0.1~100Bq/kg)の⁹⁰Srを計測できなかった。

◎ ヒト・小動物の歯牙は小さい。高濃度に蓄積しない限り、**公定法では計測できない(アカルの領域)**。



- 同位体希釈法 (=同位体の比率を用いた方法) とエネルギーフィルターを活用し、さらに、バックグラウンドノイズ (BGN) を制御する仕組みを考案した。それにより、⁹⁰Srの量を直接測定できるようになった (従来は、このノイズ (BGN) はランダムなもので制御するようなものではないと思われていた)。
- 放射性同位体の標準線源を使用せず、簡単な四則計算(エクセル)で⁹⁰Sr量を計測できる。

⁹⁰Sr添加回収実験

- 微小(微量)な生体試料に⁹⁰Srと安定Srの同時計測を行った。
- 添加量と定量値が一致し、正確な結果が得られた。
- 様々な作業等における内部被ばく調査にも使用できる。

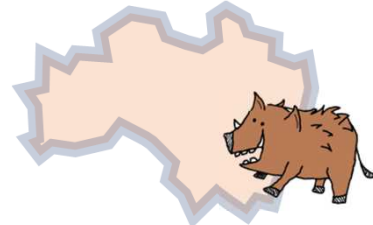
試料	⁹⁰ Sr / μBq		安定Sr / ng
	添加量	定量値	
涙	0.00	ND ¹⁾	0.05 ± 0.02
	5.00	4.90 ± 0.54	0.05 ± 0.02
唾液	0.00	ND ²⁾	0.04 ± 0.02
	5.00	5.29 ± 0.74	0.04 ± 0.04
まつ毛	0.00	ND ³⁾	0.16 ± 0.04
	5.00	5.11 ± 0.64	0.11 ± 0.08



公定法(文科省法)との比較

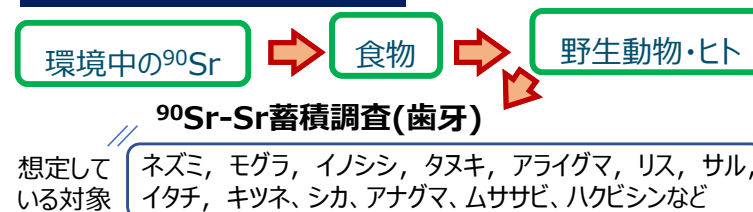
* 検出下限値は安定Srの量に依存する。

- ◎ 本法と文科省法の定量値は非常に良く一致する。
- ◎ 文科省法は数十グラムの試料が必要⇒ (歯牙)大型動物しか適応できない。



イノシシ	本法		文科省法	ICP-AES
	⁹⁰ Sr/ag(μBq)	安定Sr/ng	⁹⁰ Sr/ag (μBq)	安定Sr/ng
葛尾村	6.74 ± 0.66 (34.4 ± 3.4)	187 ± 2	6.45 ± 0.46 (32.9 ± 2.4)	183
富岡町	13.45 ± 1.96 (68.6 ± 10.0)	229 ± 4	14.35 ± 0.78 (73.2 ± 1.0)	228

研究成果の将来像



福島大IER, 東北大歯, 富山大理, 弘前大,
福島県・野生生物共生センター

疑問

- 現状把握が重要。
- 人への影響・蓄積は？
- 食物連鎖が関係か？
- 生息環境が関係か？
- どのような生物に？
- どのくらい蓄積(定量性)？
- 未来はどうなっていくのか？

↓
未来の安心と安全

実際の歯の分析

- 歯牙に含まれる⁹⁰Srと安定Srの同時計測を行った。
- 安定Srの量はクロスチェック値と一致。
- 歯に含まれるわずかな量の⁹⁰Srを計測できるようになった。

試料	(放射性) ⁹⁰ Sr / μBq		(天然) 安定Sr / ng	
	添加量	定量値(本法)	定量値(本法)	クロスチェック (ICP-MS)
猪 (犬歯)	0.00	108.41 ± 4.12	239.81 ± 4.70	238.77
	5.00	113.96 ± 5.74	238.37 ± 0.58	—
ねずみ (前歯)	0.00	41.52 ± 8.38	88.67 ± 0.58	88.64
	5.00	47.82 ± 5.96	88.69 ± 0.12	—
人間 (親知らず)	0.00	4.30 ± 1.74	50.25 ± 0.10	51.55
	5.00	10.16 ± 2.22	52.09 ± 1.96	—
リファレンス (人工歯)	0.00	ND*	4.95 ± 0.36	5.01
	5.00	4.99 ± 0.10	4.80 ± 0.58	—

研究チーム

- **代表** 高貝慶隆 福島大・理工/教授
青木謙 (福島大学大学院 共生システム理工学研究科 博士後期課程3年)
鈴木勝彦, 若木重行, 宮崎隆 (海洋研究開発機構)

本研究の成果は、英知を結集した原子力科学技術・人材育成事業 廃止措置研究・人材育成等強化プログラム (第一期: H27~H31)「マルチフェーズ型研究教育による分析技術者人材育成と廃炉措置を支援加速する難分析核種の即応的計測法の実用化に関する研究開発」ならびに科学研究費補助金 基盤研究B「Sr-90の中長期の地下浸透を予測支援する一滴質量分析法の開発」の支援を受けて実現したものです。



アメリカ化学会『Analytical Chemistry』誌に採択されるとともに、広く一般の人々に影響を与える可能性がある「ACS Editor's choice」に選定されました。

* ND: 検出下限値以下 0.17 Bq/L
[実験条件] 分析試料: 0.1 ng/μL ⁸⁶Srスパイク 100 μL、TIMS分析用に前処理した歯 1 mg、TaO-act 1 μL