

令和 6 年 6 月 10 日現在

機関番号：11601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2020～2023

課題番号：20H04352

研究課題名(和文) 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

研究課題名(英文) Development of a single-drop mass spectrometry method to support prediction of medium- to long-term subsurface infiltration of Sr-90

研究代表者

高貝 慶隆 (TAKAGAI, YOSHITAKA)

福島大学・共生システム理工学類・教授

研究者番号：70399773

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文)：土壌へ沈着した放射性ストロンチウム(Sr-90)の土壌への吸着脱離の機構は、不明瞭で、中長期な動態予測が難しい。その吸着脱離の機構を明らかにして地下水汚染等を予測するためには、微量試料に含まれる低濃度のSr-90を測定しなければならない。本研究では、表面電離型質量分析装置(TIMMS)に基づく新しいSr-90の一滴計測法を開発し、土壌試料中から微量なSr-90放射能を計測した。また、土壌を構成する土壌粒子を砂、細砂、シルト、泥のミクロスケールに分画し、それぞれのSr-90および天然Sr濃度を決定し、放射能分析法等とクロスチェックし、Sr-90分析に有効であることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

Sr-90分析は、実用的な迅速分析方法が見いだされていないため、その環境動態も単発的な報告が多く、将来予測が難しい核種である。Sr-90は地下水やそこからの人体への影響が深刻であることは事故当時より言われてきた。試料量が少ない試料に対する分析法は未踏領域であったが、本法は他法と比較して濃度・体積領域において測定できる領域に大きな違いがあり、他には到達できない特徴と優位性があることがわかった。この方法は、これまでできなかったSr-90の環境動態を計測できるだけでなく、他の核種にも応用できるために波及効果も大きい。

研究成果の概要(英文)：Understanding the mechanism of adsorption/desorption of radioactive strontium (Sr-90) deposited on soil has been still challenging, and it is especially difficult to predict its dynamics in the mid- to long-term. To clarify the adsorption/desorption mechanism and to predict the contamination in groundwater, etc., it is necessary to measure ultralow concentrations of Sr-90 contained in small volume and amounts of samples. In this study, we developed a new one-drop measurement method for Sr-90 based on thermal ionization mass spectrometry (TIMMS) and aims to measure trace amounts of Sr-90 radioactivity in soil samples. Each component soil-particles constituting whole soil sample were fractionated into micro scales of sand, fine sand, silt, and mud. The concentrations of Sr-90 and natural Sr were determined respectively, and then cross-checked using radiometry to demonstrate the effectivity in Sr-90 analysis.

研究分野：分析化学

キーワード：放射性ストロンチウム ストロンチウム90 環境動態 福島第一原子力発電所事故 表面電離型質量分析 質量分析 土壌分析

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

福島第一原子力発電所(1F)の速やかな廃炉措置は、日本の最優先課題のひとつである。しかし、その実現には学術的な未踏領域が存在し、多く技術開発において斬新な発想が求められている(*CNN world*, Feb.11 (2016))。そのなかでも核分裂生成物であるストロンチウム 90 (^{90}Sr) の分析は、他の核種の分析と比較して群を抜いて難しく課題が多い(*Chem. Eng. News*, 73, 6 (1995))。これは、 ^{90}Sr が β 線のみを放出する核種であり、 β 線スペクトルはブロードな連続スペクトルを示すため分光学的な分離ができず、煩雑な化学分離を行い、かつ、2 週間程度の放射平衡を待つ時間が必要など分析操作が容易ではないことに起因している(*Chem. Anal. Radionuclides*, Wiley-VCH (2011))。この課題を解決するために、1F 事故前より質量分析法(MS)の利用が試みられてきたが、環境中に豊富に存在する同重体(^{90}Zr ; ^{90}Sr との存在比は 10^8 以上)の影響で分析が困難であった(*Inorg. Mass Spec.*, Wiley (2007))。

我々は、高周波誘導結合プラズマ四重極型質量分析計(ICP-QMS)を使用して、異なる種類の濃縮分離を装置内で自動的に行う「カスケード型 ICP-QMS」を開発した。これにより、従来、2 週間以上かかっていた環境レベルの ^{90}Sr を 30 分で分析することに成功し【検出下限値 0.3 Bq/L、試料量 50 mL】、1F 廃炉措置の分析現場で採用される等の成果を得た(東京電力ホームページ (2014))。

この成果により、 ^{90}Sr の分析ニーズは急激に増加し、現在、様々な試料の分析が求められるようになった。特に、試料量が十分に確保できる環境試料から試料量が極めて少ない希少試料へと分析ニーズが移行し、その分析の難易度が格段に増した。現在の ^{90}Sr の放射能分析において、希少試料中(数 μL ~ 1 mL)のごく微量な ^{90}Sr 放射能(濃度レベル: 1 Bq/L 以下、絶対量: 1 μBq レベル)を測定できる技術は皆無である。しかし、放射線感受性の高い部分(眼球や鼻口腔内)における組織・体液(涙や粘膜等)の分析は、放射線業務従事者の緊急被ばくの重要な指標となり、また、破碎材料片や微粉末などの材料分析ならびにボーリングコアなど放射能データを含む柱状図の作成は、1F 事故の原因究明・廃炉の指針につながるため、微量の試料のための新しい ^{90}Sr 分析法が急務となっている。

表面電離型質量分析計(TIMMS)は、微量(1 μL)試料の分析に力を発揮できるが、高精度な同位体『比』を求める分析装置であるため物質量の定量ができない。一般的に定量する場合には同位体希釈法を利用する必要があるが、 ^{90}Sr の場合、人工核種の単核種であるため通常同位体希釈法が利用できない。このように TIMMS は微量試料を計測できる大きな特徴を有するにも関わらず、 ^{90}Sr 測定ニーズに応えることができていなかった。

このように本研究の課題は、希少試料や微量試料に含まれる ^{90}Sr の TIMMS による分析手法の確立であり、この課題解決により、1F 廃炉作業者の安全・健康の確保や 1F 原子炉の事故の原因究明、廃炉措置にマイクロ材料科学の観点から大きく貢献できる。

2. 研究の目的

そこで、本研究の目的は、TIMMS を用いて希少試料に含まれる極低濃度(1 Bq/L 程度)の ^{90}Sr の分析方法を開発することである。希少試料に ^{90}Sr 添加回収試験を実施して、本分析法が公定法等の既存法と比較して有効であることを実証する。

3. 研究の方法

TIMMS は Triton™ Plus (サーモフィッシャーサイエンティフィック, ドイツ)を使用し、いずれも 8 個の可動式 FC、1 個の固定された FC および同軸上の SEM を備えたものを使用した。すべての FC には、 $10^{11} \Omega$ の抵抗器をそれぞれ接続した。SEM は、その前段にエネルギーフィルター装置(RPQ レンズ)を装備した。

SEM 検出器のダークノイズは 1 時間の計測で約 0.009 cps であり、この値は BGN として補正した。Re フィラメントは、焼きだしなどの前処理を行い、 m/z 90 のノイズ強度が 0.04 cps 以下のものを厳選して TIMMS 測定に使用した。試料中の天然 Sr 濃度は、高周波誘導結合プラズマ質量分析計(ICP-MS) NexION300S (パーキンエルマー, 米国)でクロスチェックし、この定量値は、本法(TIMMS)によって定量した天然 Sr 量の検証に使用した。試料の粉碎は、粉碎機 IQ MILL-2070 (フロンティア・ラボ株式会社, 福島, 日本)と粉碎用のメノウ球(直径 15 mm)を用いて実施した。また、粉碎した試料は、Titan MPS マイクロ波分解装置(パーキンエルマー, 米国)で酸分解した。 ^{90}Sr の放射能分析は、文部科学省放射能測定マニュアルに従い、シュウ酸塩沈殿-ミルキング法により低バックグランドガスフロー型計数装置(LBC) LBC-4202 (日立アロカメディカル, 東京, 日本)により、 ^{90}Y のベータ線から定量した。この際、Sr の回収率補正は、ICP-AES Optima 7300 DV (パーキンエルマー, 米国)を使用した。

実験操作は、以下のとおりである。1.00 μL の ^{90}Sr と ^{86}Sr スパイクを含む混合試料は、800 mA で加熱した Re フィラメントに塗布し、フィラメント温度を維持しながら 1.00 μL のタンタルアクチベータ(Ta-act)をさらに混合試料の上に塗布した。フィラメントに塗布された試料は 1500 mA で 30 秒間加熱し、固着した。試料が固着されたフィラメントは TIMMS 装置にセットした。

TIMS 分析は、 3×10^{-7} mbar 以下の真空条件下で実施した。試料を装填したフィラメントは 1500 mA/min で 1 分間予熱し、その後、 ^{86}Sr の強度が 6 V に達するまで 100 mA/min で加熱した。測定は、 ^{86}Sr の強度が 6 V に達した時点で開始した。この測定データの積算は測定温度 1640°C に達するまで実施した。 ^{86}Sr スパイク 10 ng は、 ^{86}Sr の測定強度 6V で Sr ビームを 1 時間保つことができる。そのため、本研究では、 ^{86}Sr スパイクを 10 ng、測定強度を ^{86}Sr の 6 V に設定した。

その一方で、本研究で使用した土壌試料は、原子力発電所周辺環境放射能等測定基本計画に基づき 2018 年に福島県の大葉町 郡山、広野町 上北迫、飯舘村 長泥、いわき市 久ノ浜、葛尾村 柏原、川俣町 山木屋、南相馬市 浦尻、浪江町 北幾世橋、田村市 古道、富岡町 小浜で採取された土壌試料を使用した。これらの試料は、福島県 環境放射線センターより譲渡されたものであり、すべての試料について ^{90}Sr の公定法試験が実施されたものを使用した。また、これら土壌は、草木を除去した後、ステンレス製ふるいによって 2000 μm 以下の土壌粒子に分級した。砂は、目開き 250 および 2000 μm のふるい（内径 ϕ 150 mm、深さ 45 mm、ステンレス製）を利用して、250 μm のふるい上に収集した。細砂は、目開き 250 μm および 75 μm のふるいを順に使用して、75 μm のふるい上に採取した。さらに、ストークスの法則に従った沈降と遠心分離によって、シルト（5 ~ 75 μm ）ならびに泥（5 μm 以下）を分級して、計 4 種類に分別した。砂、シルト、泥は、それぞれ低温乾燥機で 100°C にて 3 日間乾燥させ、乾燥重量を測定した。

各土壌粒子は、メノウ乳鉢に 10 mg 分取し、粉碎した後、2 mL HCl (30w/w%)、5 mL HNO₃ (68w/w%)、2 mL HF (38w/w%) と共にマイクロ波分解装置で溶解した。溶解液は、ホットプレートで 220°C に加熱し、完全に乾固させた。この乾固物は、8 M HNO₃ 5.0 mL で再溶解して定容した。その試料の 0.5 mL（土壌試料 1 mg 相当）は ICP-MS 用に分取し、Sr Resin によって Sr をその他元素から分離した。Sr 分離後の土壌溶液（土壌試料 1 mg 相当）および ^{86}Sr スパイク（10.00 ng/mL ^{86}Sr 1.00 mL）を PFA 容器内で混合した。この混合溶液はホットプレート上で加熱（120°C、2 時間）し、完全に乾燥させたのち、0.10 M HNO₃ 1.00 μL を加えて溶解した。この試料溶液 1.00 μL を 800 mA で加熱した Re フィラメントに塗布し、フィラメント温度を維持しながら Ta-act を 1.00 μL を塗布した。TIMS によって測定して、 ^{90}Sr 量および天然 Sr 量を前述に従って算出した。

4. 研究成果

従来の TIMS 測定では、Sr 同位体の十分な強度を得るために一定量の天然 Sr が必要であり、その Sr は SEM で検出されるレベルにおいて BGN をわずかに上昇させる。 m/z 90 においても同様であり、RPQ レンズを使用しない測定では、天然同位体で最も高い存在率（82.58%）を示す ^{88}Sr のピークテーリングが観測された。一方で、RPQ レンズを使用した測定では、RPQ レンズを使用しない場合に比べて、BGN (m/z 90) を大きく低下させた（BGN 強度は RPQ レンズ使用有および RPQ レンズ使用無で、 0.009 ± 0.001 および 0.641 ± 0.172 cps）、RPQ レンズを使用した測定において、 ^{86}Sr スパイク 10 ng 中のバックグラウンド相当量 (W_{BEW}) は、0.286 ag (1.43 μBq) であった。Zr に由来するノイズは、フィラメント温度が 1640°C を超えると RPQ レンズの使用の有無に関係なく確認されて除去困難であった。そこで、本測定における測定値は RPQ レンズを使用し、フィラメント温度 1640°C 以下で積算した Sr 強度とした。

Zr と天然 Sr の混合試料の測定の結果、サブ ng 以下の Zr は m/z 90 の BGN に影響を与えなかった。一方、5 ng 以上の Zr は BGN を増加し、その BGN の上昇は、Zr の量に比例した。フィラメント上の天然 Sr/Zr 量の比率に応じて温度制御で制限することができるが、今回は Sr Resin による前処理を行うことで Zr を除去した。

BGN と W_{BEW} の値は、天然 ^{88}Sr ($W_{\text{n(Sr-88)}}$) の量に依存し、その測定誤差は天然 Sr 量が異なる別な試料においても同程度であった。 $W_{\text{n(Sr-88)}}$ と W_{BEW} は、直線関係を示し、これは天然 Sr 量から W_{BEW} を算出し、天然 Sr 含有量に応じて $^{90}\text{Sr}/^{88}\text{Sr}$ のアバundance感度を決定することができることに相当する。つまり、TIMS で定量された ^{90}Sr 量をみかけの定量値 ($W_{\text{app.Sr-90}}$) とし、 $W_{\text{app.Sr-90}}$ から W_{BEW} を差し引くことで、正味の ^{90}Sr 量 ($W_{\text{net.Sr-90}}$) を高い精度で定量できることを発案した。添加した 1 ag (5.1 μBq) の ^{90}Sr 定量では、天然 Sr を 0 ~ 300 ng の範囲で共存を許容した。本法は、試料中の天然 Sr の事前測定、ならびに、前処理における天然 Sr 量の調整が必要ないことがわかった。このことは、本法では、天然 Sr と ^{90}Sr の定量に標準溶液を使用した検量線の作成が不要であり、 μL レベルの試料量で ^{90}Sr を直接定量することができることを示唆するものである。

^{90}Sr の添加回収試験を実施したところ、添加値と定量値は一致し、1 μL （または 1 mg）試料中の ag (μBq) レベルの ^{90}Sr の定量が可能であった。

放射能分析法との定量値の一致に関するクロスチェックをイノシシの歯牙を用いて実施した。放射能分析法は、 ^{90}Sr は低バックグラウンドガスフロー計数器 (LBC) ならびに、天然 Sr は ICP-発行分光分析で測定した。本法と放射能分析法の ^{90}Sr ならびに天然 Sr の定量値はよく一致した。これらの結果から、本法は微量試料から ^{90}Sr を測定できると判断し、土壌分析へ応用した。

様々な地点で採取した土壌を粒径毎に分級し、 ^{90}Sr 濃度および Sr 濃度を本法で定量した。同時に、天然 Sr 濃度は、ICP-MS 法でクロスチェック分析した。各土壌成分に含まれる天然 Sr 濃度は、本法と ICP-MS 法でよく一致した。また、 ^{90}Sr は、特定の土壌成分に集積せず、分級した

それぞれの土壌成分に含まれていることがわかった。土壌中の ^{90}Sr 濃度は、1F に近いほど高いが、 ^{90}Sr 濃度は、泥やシルトで高い傾向があるように感じられた。分級した土壌成分に含まれる ^{90}Sr 量を合算した結果、福島県が公表したバルク土壌としての ^{90}Sr 濃度と測定値が 10% の誤差範囲で良く一致することが分かった。また、天然 Sr 濃度は ICP-MS 法で計測され、測定値は 10% の誤差範囲内でよく一致した。

分級した土壌粒子の天然 Sr 濃度と ^{90}Sr 濃度は、採取地点に関連性が認められなかった。つまり、天然 Sr 濃度を元に ^{90}Sr 濃度を一律に評価することは難しいことを示すものであった。

泥およびシルトで構成される「75 μm 未満の土壌粒子」と砂および細砂で構成される「75 μm 以上、2000 μm 以下の土壌粒子」の 2 種類に分別して解析した結果、75 μm 未満の土壌粒子では、 ^{90}Sr 濃度が高い傾向を確認した。

75 μm 未満の土壌粒子に対する ^{90}Sr 吸着割合とその粒子の存在割合の関係は、 ^{90}Sr が 75 ~ 2000 μm の土壌粒子に比べて、75 μm 未満の土壌粒子に吸着しやすい傾向を有することを示した。

試料全量の放射能濃度と試料全量における各成分が保持する ^{90}Sr 保持濃度 ($[\text{Sr}]_{\text{portion}} / \text{mBq/g}_{\text{total}}$) は、土壌全体の放射能濃度の上昇に伴って各土壌成分が保持する ^{90}Sr 濃度が増加した。また、その傾向は、土壌成分(泥、シルト、細砂、砂)の種類に関わらず、同様の挙動を示した。また、泥とシルトは、直線の傾きがほぼ 1 を示し、細砂と砂はその傾きが泥やシルトよりはやや緩やかであった。これは、泥やシルトのほうがわずかに高い吸着性を示唆するものであった。また、同様に天然 Sr 濃度について検討した。その結果、細砂や砂では、その傾向が見られず、天然 Sr との相関性は確認できなかった。これは、細砂や砂を構成する天然 Sr 量が、化学吸着する ^{90}Sr よりも非常に多いため、相関を判断することが難しくなっていると考えられる。これらの結果は、過去の文献において Sr は、無機イオン交換体の中でも、陽イオン交換体の方が Sr の保持率が高いことがわかっているが、この結果を支持するものであった。

田村や富岡で採取された土壌は、75 μm 未満の土壌粒子にのみ ^{90}Sr の吸着が確認された。この 2 地点は、バルク土壌における 75 μm 未満の土壌粒子の割合が非常に小さい。そのため、 ^{90}Sr は集中的に 75 μm 未満の土壌粒子へ濃縮されるように吸着していることが考えられる。その一方で、双葉および南相馬は、土壌の ^{90}Sr 総量に占める 75 μm 未満の土壌粒子への ^{90}Sr 量の吸着割合が他の地点に比べて高い。この 2 地点は、バルク土壌に占める 75 μm 未満の土壌粒子の割合が大きい傾向がある。これら地点では、土壌の風化によって 75 μm 未満の土壌粒子の割合がさらに増加した場合、 ^{90}Sr の分布は 75 μm 未満の土壌粒子への吸着が支配的になることが考えられる。

結論として、本研究では、微量試料に含まれる低濃度の ^{90}Sr を直接計測する TIMS 法を開発した。また、福島県の協力のもと、福島県内の土壌について 4 つの粒度区分(砂、細砂、シルト、泥)に分級して TIMS 測定した土壌の ^{90}Sr は、おおむね天然 Sr と同様の挙動を示しており、細砂や砂よりも、泥やシルトにわずかに高い吸着性を示した。その一方で、土壌成分の分布割合と放射性濃度の分布割合に相関性はなかった。このことは、粒度で分級する各土壌成分で ^{90}Sr の蓄積を評価するよりも、試料の密度などに依存している可能性があることを示唆するものであった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 7件 / うち国際共著 5件 / うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Wakaki Shigeyuki, Aoki Jo, Shimode Ryoya, Suzuki Katsuhiko, Miyazaki Takashi, Roberts Jenny, Vollstaedt Hauke, Sasaki Satoshi, Takagai Yoshitaka	4. 巻 12
2. 論文標題 A part per trillion isotope ratio analysis of 90Sr/88Sr using energy-filtered thermal ionization mass spectrometry	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 1151 ~ 1151
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-022-05048-7	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Aoki Jo, Onuma Chisa, Sudowe Ralf, Takagai Yoshitaka	4. 巻 37
2. 論文標題 Adsorption Behavior of Pu(IV), Am(III), Cm(III), and U(VI) on Desferrioxamine B-immobilized Micropolymer and Its Applications in the Separation of Pu(IV)	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Analytical Sciences	6. 最初と最後の頁 1641 ~ 1644
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2116/analsci.21N028	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Aoki Jo, Onuma Chisa, Sudowe Ralf, Takagai Yoshitaka	4. 巻 38
2. 論文標題 Correction to: Adsorption behavior of Pu(IV), Am(III), Cm(III), and U(VI) on desferrioxamine B-immobilized micropolymer and its applications in the separation of Pu(IV)	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Analytical Sciences	6. 最初と最後の頁 231 ~ 231
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s44211-022-00053-2	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 S. Wakaki, J. Aoki, R. Shimode, K. Suzuki, T. Miyazaki, S. Sasaki, Y. Takagai, J. Roberts, H. Vollstaedt	4. 巻 974
2. 論文標題 Measuring 90Sr abundances in environmental samples by Thermal Ionization Mass Spectrometry	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ThermoFisher Scientific Application Note	6. 最初と最後の頁 1 ~ 5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 高貝慶隆	4. 巻 77
2. 論文標題 福島第一原子力発電所事故を発端に進化する放射性物質の分析技術	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 JACIニュースレター（研究最前線）	6. 最初と最後の頁 7~7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 松枝誠, 高貝慶隆	4. 巻 4
2. 論文標題 ミニファイル：地域発の分析化学 福島第一原子力発電所事故を契機に進展する分析化学	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ぶんせき	6. 最初と最後の頁 160 ~ 161
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ito Chihiro, Shimode Ryoya, Miyazaki Takashi, Wakaki Shigeyuki, Suzuki Katsuhiko, Takagai Yoshitaka	4. 巻 92
2. 論文標題 Isotope Dilution?Total Evaporation?Thermal Ionization Mass Spectrometric Direct Determination of Radioactive Strontium-90 in Microdrop Samples	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Analytical Chemistry	6. 最初と最後の頁 16058 ~ 16065
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.analchem.0c03673	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Zok Dorian, Blenke Tobias, Reinhard Sandra, Sprott Sascha, Kegler Felix, Syrbe Luisa, Querfeld Rebecca, Takagai Yoshitaka, Drozdov Vladyslav, Chyzhevskiy Ihor, Kirieiev Serhii, Schmidt Brigitte, Adlassnig Wolfram, Wallner Gabriele, Dubchak Sergiy, Steinhauser Georg	4. 巻 55
2. 論文標題 Determination of Characteristic vs Anomalous ¹³⁵ Cs/ ¹³⁷ Cs Isotopic Ratios in Radioactively Contaminated Environmental Samples	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Environmental Science & Technology	6. 最初と最後の頁 4984 ~ 4991
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.est.1c00180	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Aoki Jo, Wakaki Shigeyuki, Ishiniwa Hiroko, Kawakami Tomohiko, Miyazaki Takashi, Suzuki Katsuhiko, Takagai Yoshitaka	4. 巻 95
2. 論文標題 Direct Quantification of Attogram Levels of Strontium-90 in Microscale Biosamples Using Isotope Dilution-Thermal Ionization Mass Spectrometry Assisted by Quadrupole Energy Filtering	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Analytical Chemistry	6. 最初と最後の頁 4932 ~ 4939
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.analchem.2c04844	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Aoki Jo, Takagai Yoshitaka	4. 巻 39
2. 論文標題 Direct quantification of femtogram per liter (fg $\times 10^{-15}$) level ^{90}Sr in rainwater using thermal ionization mass spectrometry	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Journal of Analytical Atomic Spectrometry	6. 最初と最後の頁 408 ~ 413
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3JA00294B	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 高貝慶隆, 青木謙	4. 巻 792
2. 論文標題 表面電離型質量分析法による超微量 ^{90}Sr の定量技術と今後の展望	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Isotope News	6. 最初と最後の頁 7-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 J. Aoki, S. Wakaki, T. Miyazaki, K. Suzuki, Y. Takagai
2. 発表標題 Direct Determination of Atogram Levels of Radioactive ^{90}Sr in Micro-droplet Samples Using Isotope Dilution - Total Evaporation - Thermal Ionization Mass-Spectrometry Assisted by Retarding Potential Quadrupole Energy Filters
3. 学会等名 RSC Tokyo International Conference 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1 . 発表者名 S. Wakaki, J. Aoki, K. Suzuki, T. Miyazaki, J. Roberts, H. Vollstaedt, Y. Takagai, D. Tollstrup, S. Sasaki
2 . 発表標題 Detecting low levels of radioactive Sr in environmental samples using RPQ-TIMS
3 . 学会等名 Goldschmidt 2022 (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 Yoshitaka Takagai
2 . 発表標題 Quantification and Evaluation of the Strontium-90 Concentrations in soil of Fukushima Prefecture before and after the Fukushima Daiichi Nuclear Accident
3 . 学会等名 Fukushima Dai-ichi and the Ocean: 10 years of study and insight (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2021年

1 . 発表者名 J. Aoki, M. Goto, S. Wakaki, T. Miyazaki, K. Suzuki, Y. Takagai
2 . 発表標題 Direct Quantification of ^{90}Sr in Biosamples Using Isotope Dilution-Thermal Ionization Mass Spectrometry Assisted by Quadrupole Energy Filtering
3 . 学会等名 Goldschmidt 2023 (国際学会)
4 . 発表年 2023年

1 . 発表者名 J. Aoki, S. Wakaki, K. Suzuki, T. Miyazaki, Y. Takagai
2 . 発表標題 Quantification of trace amount of ^{90}Sr in small size biosamples using isotope dilution-energy filtered thermal ionization mass-spectrometry: controlling the background noise from natural Sr in samples
3 . 学会等名 The 8th International Symposium on Metallomics (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1. 発表者名 高貝慶隆, 柳澤華代, 青木謙, 古川真
2. 発表標題 Sr-90の質量分析のフロンティア ~微小・微量・イメージング~
3. 学会等名 日本放射化学会第66回討論会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 若木重行, 青木謙, 下出凌也, 鈴木勝彦, 宮崎隆, R. Jenny, V. Hauke, 佐々木聡, 高貝慶隆
2. 発表標題 表面電離型質量分析法を利用した90Srの極低ノイズ分析法
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合 (JpGU) 2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 後藤真宙, 青木謙, 石庭寛子, 高貝慶隆
2. 発表標題 表面電離型質量分析計による野生動物の歯牙・骨片中の放射性ストロンチウム-90の直接定量とネズミ頭骨中の放射能分布
3. 学会等名 第84回分析化学討論会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 石庭寛子, 青木謙, 後藤真宙, 水澤玲子, 高貝慶隆
2. 発表標題 アカネズミに蓄積する放射性ストロンチウム90の計測
3. 学会等名 日本哺乳類学会2023年度大会 100周年記念大会
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 放射性同位体の定量方法	発明者 高貝慶隆、青木謙	権利者 国立大学法人 福島大学
産業財産権の種類、番号 特許、特願2023-62937	出願年 2023年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

高貝研究室HP https://takagai-lab.com/
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	若木 重行 (WAKAKI Shigeyuki) (50548188)	国立歴史民俗博物館・大学共同利用機関等の部局等・准教授 (62501)	TIMS条件の検討
研究分担者	鈴木 勝彦 (Suzuki Katsuhiko) (70251329)	国立研究開発法人海洋研究開発機構・海洋機能利用部門(海底資源センター)・センター長 (82706)	同位体比計算に関する検討
研究分担者	松枝 誠 (Matsueda Makoto) (90865700)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・福島研究開発部門 福島研究開発拠点 福島環境安全センター・研究職 (82110)	放射性物質に関する取扱いと検討

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------