

論文題名：『罰則項付き非対称最小二乗法によるオンライン同位体希釈-レーザーアブレーション-誘導結合プラズマ質量分析のフローピーク検出』

「分析化学」第 73 巻 第 9 号 515-522 ページ

著者名：柳澤 華代^{1,2}，横田 裕海¹，藤本 勝成¹，高貝 慶隆^{2,3}

(¹日本原子力研究開発機構原子力基礎工学研究センター，²福島大学共生システム理工学類，³福島大学環境放射能研究所)

2024 年「分析化学」論文賞として、上記の論文が選定されましたので、お知らせいたします。

【選定理由】ならびに「論文概要」

近年は機器分析の自動化やハイスループット化が進んでおり、膨大な量の測定データを高速に処理する必要性が高まっている。例えば、材料科学、生命科学、地球惑星科学などの分野では、固体試料に含まれる元素の分布や濃度をマイクロスケールで把握する必要がある。そのなかでも、レーザーアブレーション-誘導結合プラズマ質量分析法 (LA-ICP-MS) は、半導体の不純物解析、生体組織の重金属元素の局在解析、薬物や有害金属の動態解明、鉱物の化学的特徴付けなど幅広い用途で利用されている。しかしながら、元素マッピング分析を実施するうえでは、試料表面に沿ってレーザーを走査しながら連続的にデータを取得するため、測定する m/z 、走査時間、分析範囲などの因子に対して相乗的に増えるため、1 検体あたりの測定データ量は膨大となり、その処理に多くの時間と労力を要するという課題があった。

この課題を解決するため、本論文では、罰則項付き非対称最小二乗法を応用し、LA-ICP-MS で得られる元素マッピングデータを自動処理するプログラムを開発した。そして、著者らの研究グループが独自に開発したオンライン同位体希釈 (ID)-LA-ICP-MS で取得した測定データを使用して、本法の有効性を評価した。プログラムは Python で作成され、分析作業者が直感的に操作可能なグラフィカルユーザーインターフェース (GUI) を備えるシステムを構築した。開発されたプログラムでは、指定したフォルダ内の ICP-MS 測定データを自動で

読み込み、罰則項付き非対称最小二乗法により求めたピーク検出閾値を上回るデータポイントをピークトップとして認識できる。さらに、ピーク始点から任意の範囲でピーク面積を計算し、得られた積算強度は、LA 装置から出力される照射位置情報データと自動的に突合することで、最終的に統合されたデータを Excel ワークシート及びカラーマップとして出力できる仕様となっている。本論文の方法を用いて、アカネズミ菌の測定データ (68400 測定点 $\times$ 8 同位体 = 547200 個) のデータを処理した結果、手動処理では約 20 時間を要したのに対し、この方法では、約 30 秒 (処理開始から結果出力までの時間) で完了し、大幅な作業時間の短縮を実現している。また、ガラス認証標準物質 SRM612 の分析において、手動処理と本法の処理結果を比較したところ、両者の定量値は良好に一致しており、本法の処理結果が妥当であることが確認された。

以上の通り、本論文では、罰則項付き非対称最小二乗法を用いたデータ処理プログラムが、ピーク状のシグナルを含む膨大な測定データを高速で処理するために有用であることが示されている。提案された方法は、LA-ICP-MS のみならず、フローインジェクション分析 (FIA) やマイクロ流体チップ (μ TAS) 分析など、さまざまな機器分析で得られるデータの処理法としてさらなる発展が期待できる。

委員会で慎重に審議・検討し、上記の理由により、本論文を 2024 年「分析化学」論文賞受賞論文に値すると認め、選定した。

〔「分析化学」論文賞選考委員会〕