

大気降下物試料の PIXE 分析

藤原英司¹、須藤重人¹、世良耕一郎²

¹農業環境技術研究所

305-8604 茨城県つくば市観音台 3-1-3

²岩手医科大学サイクロトロンセンター

020-0603 岩手県滝沢市留が森 348-58

1 はじめに

福島第一原子力発電所 1～3 号機は停止状態にあり、大気への放射性物質の新規放出はほとんどないとされる。しかし福島県やその近県において放射性セシウムの大気中濃度や大気降下量の上昇が時折観測されており、こうした現象は放射性セシウムを含む粉塵の飛散に起因するとみられる。本研究では放射性物質の動態研究の一環として放射性セシウムを含む浮遊粒子状物質等に着目し、その由来を解明する。物質の性状や起源に関連する指標として元素組成が重要であることから、福島県等で採取した浮遊粒子状物質試料や大気降下物試料等を PIXE 法による元素分析に供する予定である。今回は福島県内で採取した降下物試料の元素分析結果について報告する。また同試料の分析に先立ち、2 種類の標準物質を分析し測定確かさについて検討した。

2 方法

2.1 試料および前処理

標準物質として、地球化学標準物質 JSd-3 (産業技術総合研究所) および降下物標準試料 (気象庁気象研究所) を用意した。これらは粉碎および均一化が済んだ状態であり特段の前処理を要しなかった。一方降下物試料として、福島県の郡山市および会津坂下町の農地が分布する地域で 2013 年前半に収集した月間降下物試料を用いた (図 1、2)。試料の収集は水盤法¹⁾により行い、開口部面積 0.5m²のステンレス製水盤内に降下した粉塵や雨水を 1 ヶ月毎に回収し、ホットプレートと磁製皿を用い蒸発乾固させ、その後粉碎して分析用試料とした。

2.2 試料調製および PIXE 分析

以上の試料の元素分析を仁科記念サイクロトロンセンターで PIXE 法により行った。試料調製は「粉末内部標準法²⁾」に従った。すなわちメノウ乳鉢を使用して試料と内部標準 (パラジウムカーボン) をよく混合し、分取した混合物をバックリングフィルム上に置きコロジオン液で固定し分析に供した。

世良らの方法³⁾に従い、X線の検出条件としては無遮蔽、マイラー遮蔽および特殊吸収体遮蔽の 3 条件を設定し X 線スペクトル解析を行った。また得られた X 線ピークの計数値が計数誤差の 3 倍 (3 σ) を超えた元素に限り検出と判断し測定値を求めた。



図1 大気観測地（福島県郡山市）



図2 水盤底部に貯まった大気降下物

3 結果および考察

3.1 標準物質の測定

地球科学標準物質 JSd-3 を測定したところ 18 種類の元素が検出された。これらのうち推奨値の情報がある 16 種類について測定値と推奨値を比較した（図 3）。測定値／推奨値は 0.83 から 1.59 の間にあり多くの元素では測定値と推奨値がほぼ一致したが、Na、Al および Pb では両者の差が大きかった。不一致の原因としては X 線の自己吸収補正の問題が考えられた。また Pb については計数誤差が大きかったことから、信頼できる定量値が得られなかったと判断された。

一方降下物標準試料の測定により 19 種類の元素が検出され、ICP-MS または ICP-AES による測定例⁴⁾のある 11 種類について PIXE 法による測定値を報告値と比較した（図 4）。測定値／報告値は 0.21 から 1.66 の間にあり、不一致の程度が JSd-3 の場合より大きく表れた。特に Na、Mg、Al および K の軽元素で報告値との差が大きい傾向が認められ、また Ti でも報告値との差が顕著であった。

以上の結果から、軽元素を測定する場合には X 線自己吸収への注意が必要と考えられた。今後は試料量を変えて反復測定を行い、試料厚みと測定値の関係について検討する。

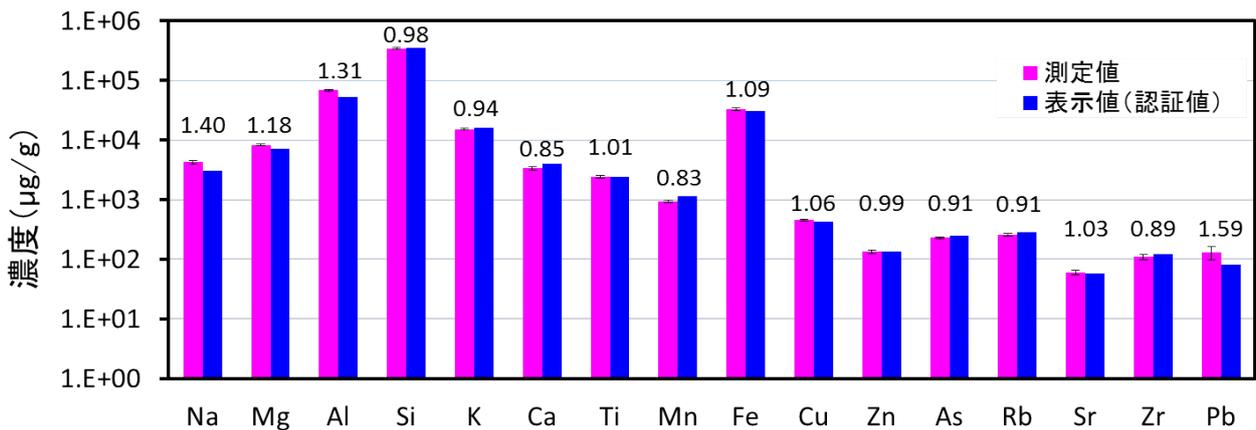


図3 地球化学標準物質 JSd-3 の測定結果（バー上の数字は測定値と認証値の比を表す）

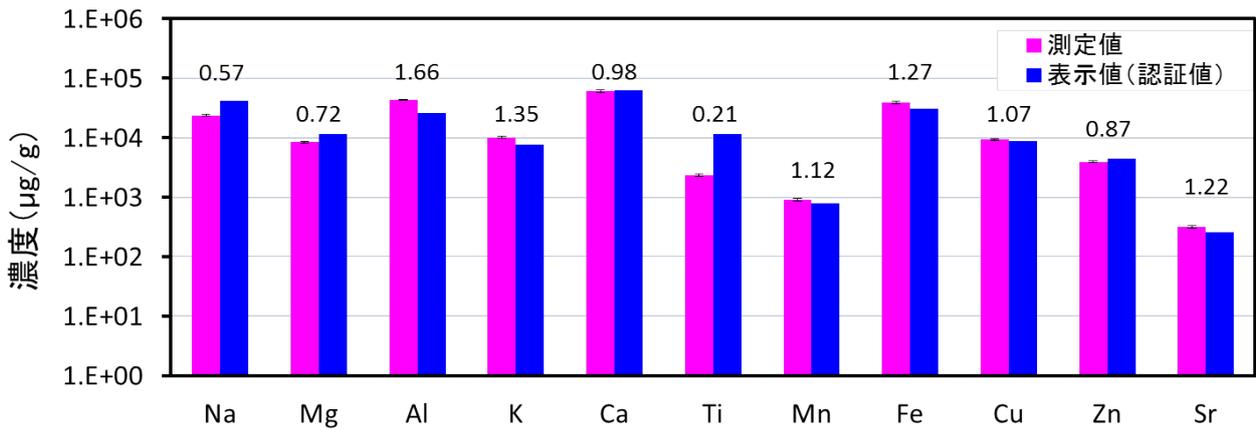


図4 降下物標準試料の測定結果 (バー上の数字は測定値と報告値⁴⁾の比を表す)

3.2 降下物試料の測定

福島県内で採取された降下物試料を測定したところ、Fe、CrおよびNiが比較的高い濃度で検出される場合があり、各々の濃度範囲は1.5~53mg/g、0.069~7.8mg/gおよび0.017~3.9mg/gであった。これらの由来として、試料採取に用いられた水盤のステンレスが考えられ、他の重元素についてもステンレスからの溶出の寄与が示唆された。このため今回は軽元素のみを検討対象とした。

検出された元素のうちClおよびNaは濃度の経時的変化がほぼ連動しており、これらは海塩粒子由来とみられた(図5)。会津坂下町の結果では冬季の試料でClおよびNaの濃度が高くなっており、この時期に卓越する北西風による日本海からの海塩粒子輸送の寄与が、この理由として考えられた。またSiおよびAlも変化が連動しており、郡山市および会津坂下町ともに春季の試料で濃度が高く表れた。SiおよびAlについては土壌粒子由来であることが考えられ、春季の強風による土壌粒子飛散との関連性が示唆された。一方夏季に検出されたPは、周辺の農地で施用された肥料や農薬に由来すると考えられた。

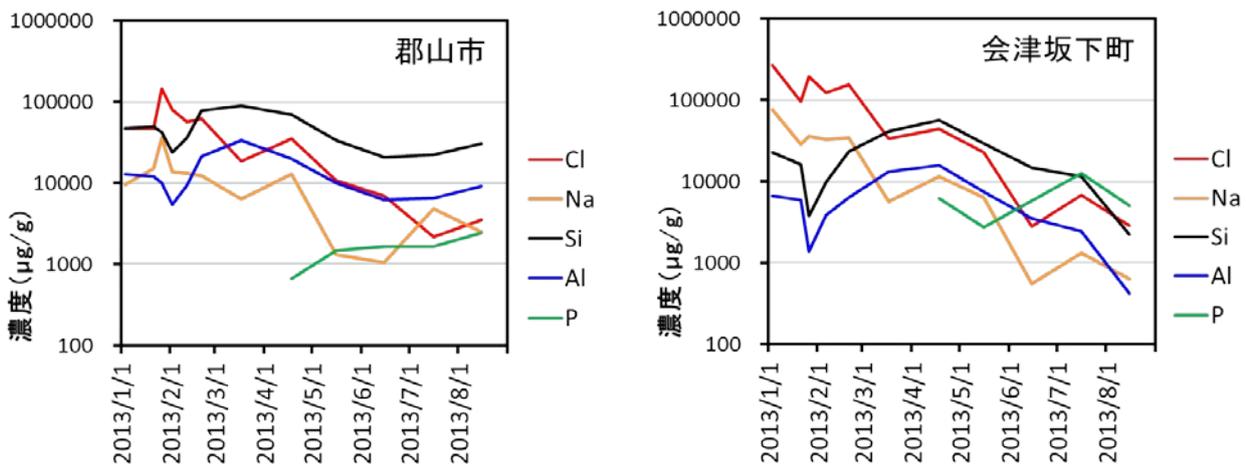


図5 福島県内で採取された大気降下物試料の測定結果

参考文献

- 1) 文部科学省科学技術・学術政策局, 1983, 環境試料採取法, 13-16.
- 2) K. Sera and S. Futatsugawa, 1998, *Intern. J. PIXE*, 8, 185-202.
- 3) K. Sera et al., 1992, *Intern. J. PIXE*, 2, 325-330.
- 4) M. Otsuji-Hatori et al., 1996, *J. Environ. Radioactivity*, 31, 143-155.

PIXE analysis of atmospheric deposition samples

H. Fujiwara¹, S. Sudo¹ and K. Sera²

¹National Institute for Agro-Environmental Sciences
3-1-3 Kannondai, Tsukuba, Ibaraki 305-8604, Japan

²Cyclotron Research Center, Iwate Medical University
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

Abstract

PIXE was applied for multi-element analysis of geochemical reference materials and atmospheric deposition samples collected at fixed points in Fukushima prefecture. In the present study, palladium-carbon powder was used as an internal standard and well-mixed with each sample. The mixture was fixed on backing material for the target exposed to an ion beam. The measured concentrations of major and trace elements in the reference materials agreed with the certified values of elements with the exception of Ti and the low-Z elements such as Na, Mg, Al and K. The measurement results of deposition samples suggest the contributions of sea-salt aerosol and soil particles.