

大気降下物試料の PIXE 分析

藤原英司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

東電福島第一原子力発電所の原子炉から大気への放射性物質の新規放出は、現在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濃度や大気降下量の突発的な上昇が最近でも観測されており、こうした現象は再浮遊に起因するとみられている。そこで放射性物質の環境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。物質の性状や由来に関連する指標として元素組成が重要であることから、本研究では浮遊粒子状物質試料や大気降下物試料を PIXE 法による元素分析に供する。今回は、福島県内で採取した大気降下物の元素分析結果について報告する。

2 方法

2.1 試料および前処理

福島県の会津坂下町および郡山市において 2013 年から 2015 年にかけて収集した大気降下物試料を、測定に用いた。降下物の収集は水盤法¹により行い、開口部面積 0.5 m²のステンレス鋼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、その後粉碎して試料とした。

2.2 PIXE 分析

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て分析に供した。X線スペクトル解析は世良らの方法³に従い、X線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 条件を設定した。また得られた X線ピークの計数値が計数誤差の 3 倍 (3σ) を超えた元素に限り検出と判断し測定値を求めた。

2.3 放射性セシウム分析

ゲルマニウム半導体放射線検出器を用いるガンマスペクトロメトリーにより、試料の放射性セシウム放射能濃度を測定した。手順としては、乾固粉碎後の試料を測定用のプラスチック円筒容器（径 16 mm, 高さ 50 mm）へ移して封入し、これをウェル形検出器により 80000 秒間ガンマ線計測した。ガンマ線計数値を放射能へ変換するための計数効率値は、放射性セシウム (¹³⁴Cs、¹³⁷Cs) を含む標準線源の測定結果から求めた。測定した放射性セシウム濃度、試料回収量および水盤の開口部面積から、放射性セシウム降下量を計算した。なおこの降下量観測結果を含む大気モニタリングデータが、農林水産省 Web にて公開されている⁴。

3 結果および考察

大気降下物試料を PIXE により測定したところ、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鋼が考えられ、他の重元素についてもステンレス鋼からの溶出の寄与が疑われた。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 については降下量の経時変化がほぼ連動しており（図1）、これらは海塩粒子由来とみられた。会津坂下町では冬に Cl および Na の降下量が多くなり、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から夏に降下量が多い傾向となった。Si および Al は土壌粒子由来であると考えられ、春の強風や夏にかけ最盛期となる農業活動による、土壌飛散との関連が示唆された。会津坂下町における Si および Al の降下量は冬に際だつて減少したが、これは積雪により土壌飛散が抑制されたことによると推察された。一方郡山市および会津坂下町とも春から秋にかけて P が検出されており、この由来として観測地周辺の農地で施用された肥料や農薬が考えられた。

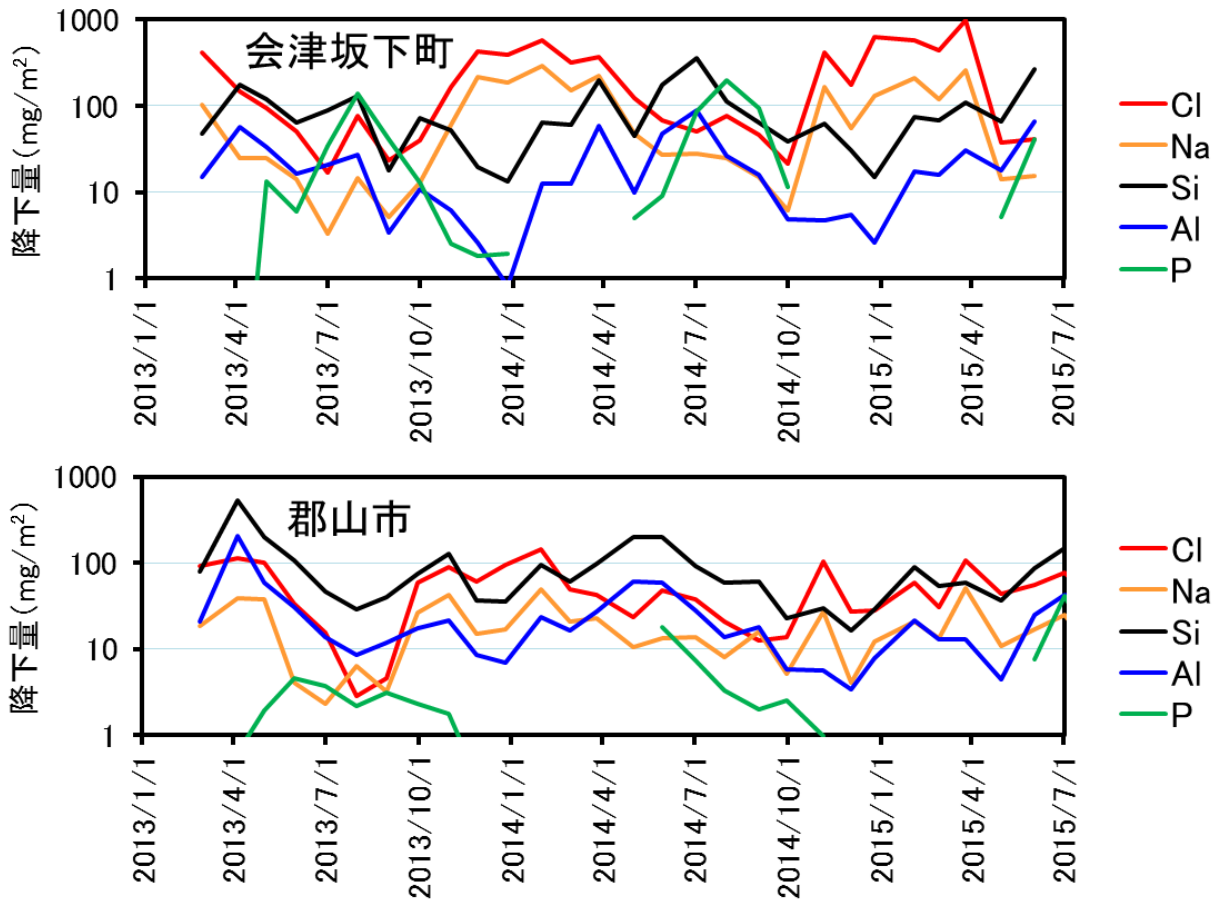


図1 Cl, Na, Si, Al および P の月間降下量の推移

一方 2013～2015 年における放射性セシウム (^{137}Cs) の月間降下量は、会津坂下町で $0.2\sim 771.0 \text{ Bq/m}^2$ 、郡山市で $0.8\sim 168.0 \text{ Bq/m}^2$ の範囲となっていた⁴。降下物中の放射性セシウムが海塩や観測地近傍で飛散した土壌に由来するものであれば、放射性セシウム降下量と Na や Si の降下量との量的関係が認められるはずである。しかし結果は不明瞭であり（図2）、放射性セシウムの由来について、降下物の主要な成分である塩類や近傍土壌による寄与は小さいと示唆された。

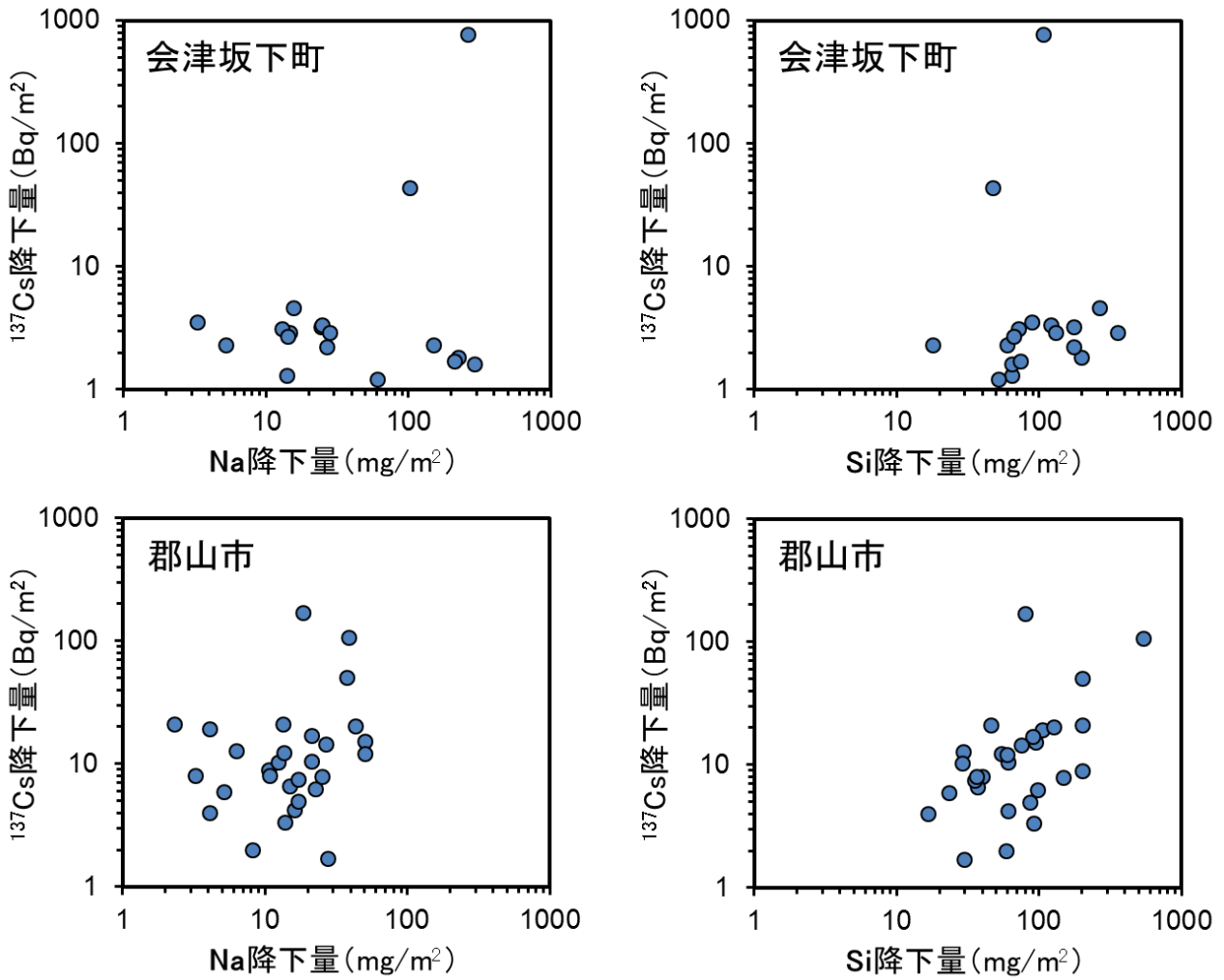


図2 Na および Si の降下量と ^{137}Cs 降下量の関係

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) 農林水産省, http://www.maff.go.jp/j/kanbo/joho/saigai/fukusima/taiki/h26_8.html

PIXE analysis of atmospheric deposition samples

H. Fujiwara¹ 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 this multi-element analysis of atmospheric deposition samples collected at fixed points in Fukushima Prefecture. In this study, palladium-carbon powder was used as the internal standard and well mixed with each sample. The mixture was fixed on backing material as the target exposed to an ion beam. Moreover, atmospheric deposition of radioactive cesium was determined by gamma spectrometry using a HPGe detector. The deposition amounts of Cl, Na, Si and Al presented the contributions of sea-salt aerosols and soil particles. However, the deposition amount of radioactive cesium was unrelated to that of the above elements. This result has suggested that the origin of radioactive cesium is likely to be different from the sea and the soil in the vicinity of the observation site.