

大気降下物試料の PIXE 分析

藤原英司¹、世良耕一郎²

¹農研機構・農業環境変動研究センター
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

原子力発電所事故等により放出され土壌や植生等へ沈着した人工放射性核種は、風雨による作用を受け流出あるいは飛散（再浮遊）し水域や大気を経由して拡散する。こうした放射性核種の再移動過程について、流出や水域における動態を取り扱った研究例は多い一方、大気への再浮遊等に着眼した研究例は比較的に少ない。また再浮遊した放射性核種は、水域経由の場合のようにほぼ決まった流路を移動するわけではなく大気中において非常に複雑な挙動を示すため、動態の把握が難しい。こうした背景を踏まえ本研究では、福島第一原子力発電所事故時に放出された放射性核種の環境動態研究の一環として、放射性セシウムを含む大気中の物質に着目し、その由来の解明に取り組む。同事故時に放出された放射性核種の一部は現在も土地に残留しており、その再浮遊による影響のため、福島県等の一部地域においては大気中の放射性セシウムの水準が事故以前より高く推移している。大気中の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、本研究では定点で定期的に回収した大気降下物を試料として、PIXE法による元素分析に供する計画となっている。今回は、これまで継続的に実施した福島県内および茨城県内の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

福島県会津坂下町では2013年から2015年まで、また福島県郡山市および茨城県つくば市では2013年から2017年までの、連続する期間において大気降下物を回収した。降下物の収集は水盤法¹により行い、開口部面積0.5m²のステンレス鋼製水盤（図1）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粉碎後に試料とした。

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、検出条件として無遮蔽、マイラー適用および特殊吸収体適用の3条件を設定した。また、X線ピーク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、乾固粉砕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（ ^{134}Cs 、 ^{137}Cs ）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⁾。



図1 福島県郡山市の大気観測地（左）および水盤底部に沈降した大気降下物（右）

3 結果および考察

大気降下物試料を PIXE 法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による寄与が疑われた。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 2、図 3）、これらは海塩粒子由来とみられた。会津坂下町では、Cl および Na の降下量が冬季に多い傾向となった（図 2）。この傾向は、季節風の影響を受け日本海からの海塩の飛来が増えることによると推察された。また Si および Al も変化が連動していた。これら元素は土壌粒子由来であると考えられ、強風や農業活動による土壌飛散との関係が示唆された。会津坂下町では、Si および Al の降下量が冬季に少なく夏季に多い傾向が示された（図 2）。この傾向は積雪による地表の被覆状態に関係し、積雪のため冬季に土壌飛散が抑制され降下量が低下するものと推察された。主に春季から秋季にかけては P が検出されており、この由来として生物由来成分や観測地周辺の農地で施用された肥料、農薬が考えられた（図 2、図 3）。

一方、観測期間における放射性セシウム（ ^{137}Cs ）の月間降下量は、2013 年から 2015 年までの期間において、会津坂下町で $0.2\sim 771\text{ Bq/m}^2$ の範囲となっていた（表 1）。また 2013 年から 2017 年までにおいて郡山市では $0.5\sim 168\text{ Bq/m}^2$ 、つくば市では $0.2\sim 12\text{ Bq/m}^2$ の範囲となっていた。降下物中の放射性セシウムが海塩や土壌に由来するのであれば、放射性セシウム降下量と指標元素の降下量は関連するはずである。この点について検討したところ、つくば市の場合では ^{137}Cs と土壌指標元素（Si、Al）に正の相関が認められ、 ^{137}Cs の大部分は土壌由来であると判断された（表 2）。しかし会津坂下町および郡山市については関係が不明瞭であり、放射性セシウムの由来について降下物の主要成分である塩類や土壌による寄与は小さいことが示唆された。以上より、放射性セシウム降下量が少なく降下量の変動幅も小さい地域において大気中の放射性セシウムは主に土壌由来であるが、放射性セシウム降下量が比較的多く、その変動幅も大きい地域においては、塩類や土壌に由来しない放射性セシウム含有物による寄与が大きいと結論付けられた。

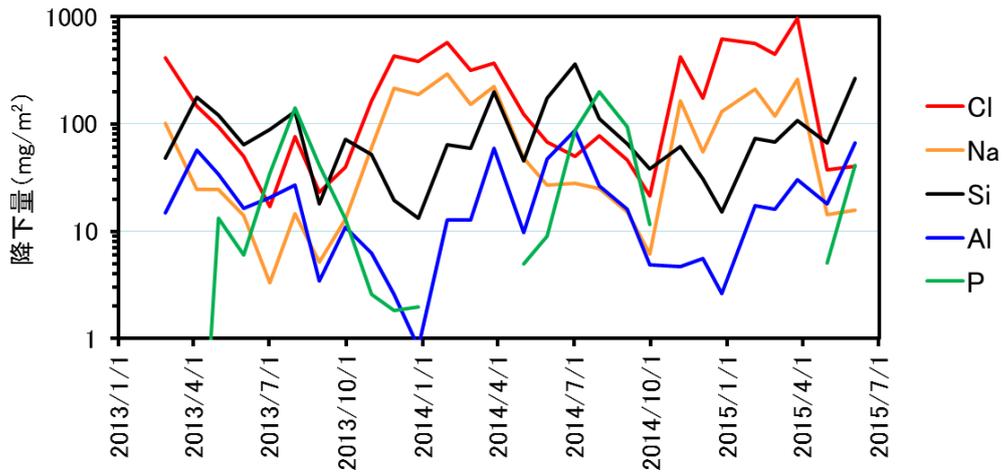


図2 2013年～2015年におけるCl, Na, Si, Al およびPの降下量の推移 (会津坂下町)

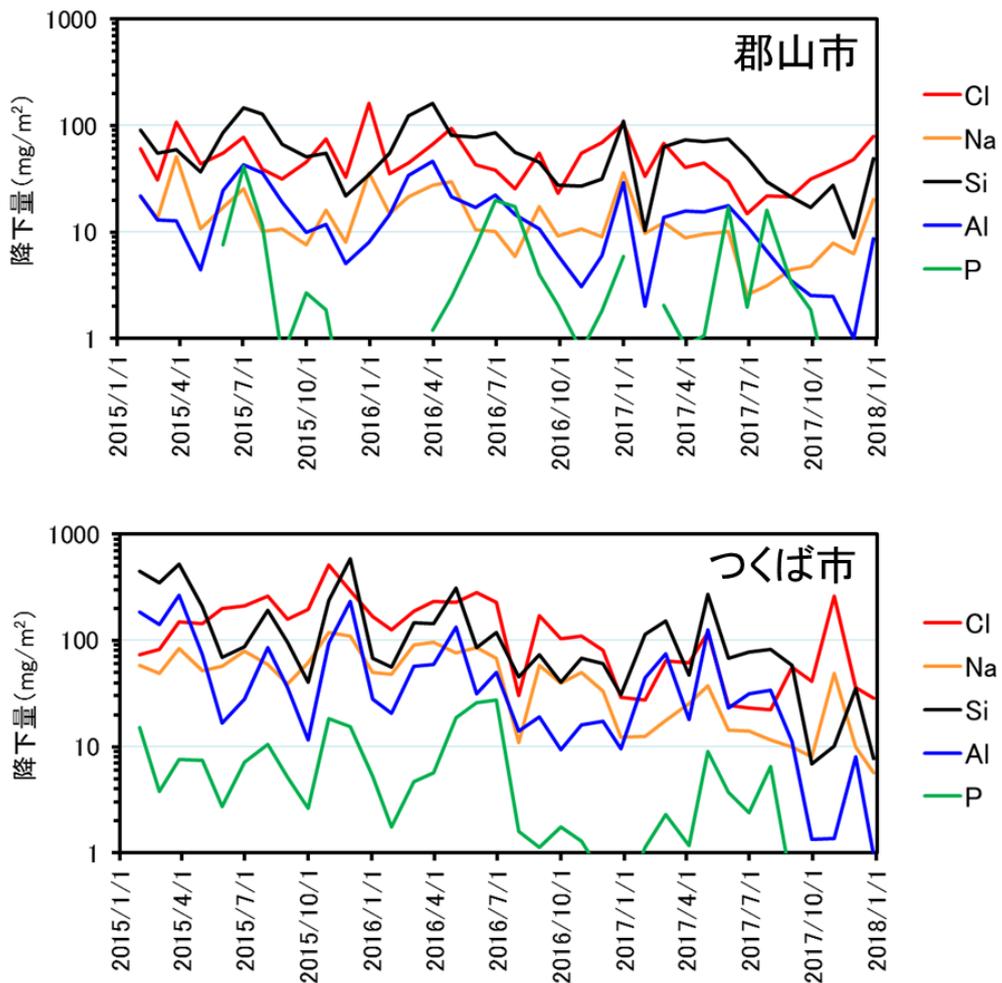


図3 2015年～2017年におけるCl, Na, Si, Al およびPの降下量の推移 (郡山市およびつくば市)

表1 放射性セシウム (^{137}Cs) の降下量 (統計量)

	データ数 (n)	^{137}Cs 月間降下量 (Bq/m ²)		
		変動幅	平均値	中央値
会津坂下	28	0.2 – 771	30.7	1.8
郡山	60	0.5 – 168	11.7	5.1
つくば	59	0.2 – 12	2.5	1.5

表2 放射性セシウム (^{137}Cs) 降下量と指標元素降下量の関係

地点	^{137}Cs 降下量と元素降下量の相関係数					
	Cl	Na	Si	Al	P	S
会津坂下	0.59	0.38	0.04	0.07	-0.11	0.41
郡山	0.30	0.26	0.51	0.52	-0.05	0.04
つくば	0.24	0.37	0.77	0.77	0.40	0.30

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

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

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

Abstract

After the Fukushima nuclear power plant accident, the level of radioactive Cs in the atmosphere became higher than before in certain parts of Japan. In this study, the components of atmospheric particles were investigated to determine the origin of this radioactive Cs. The Particle Induced X-ray Emission (PIXE) method was applied in a multi-element analysis of atmospheric deposition samples collected from fixed locations in the Fukushima and Ibaraki prefectures. The deposition amounts of Cl, Na, Si, and Al showed the contributions of sea-salt aerosols and soil particles. At a location where the deposition amount of radioactive Cs and the variation in its atmospheric levels were small, a positive correlation was found between soil-derived elements (Si, Al) and radioactive Cs in deposits. However, the relationship was unclear at other locations where the deposition amount and the variation in atmospheric levels were relatively large. This suggests that a component other than soil particles, containing radioactive Cs, contributes to the atmospheric radioactive Cs levels at the studied locations.