

## 大気降下物試料の PIXE 分析

藤原英司<sup>1</sup>、世良耕一郎<sup>2</sup>

<sup>1</sup>農業環境技術研究所  
305-8604 茨城県つくば市観音台 3-1-3

<sup>2</sup>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

東京電力福島第一原子力発電所の原子炉 1～3 号機は停止状態にあり、大気中への放射性物質の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る。そこで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注目し、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って、地球化学標準物質を用い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) を用意した。これ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。一方大気降下物試料として、福島県の郡山市および会津坂下町で 2013 年および 2014 年に収集した月間降下物試料を用いた (図 1、2)。大気降下物の収集は水盤法<sup>1)</sup>により行い、開口部面積 0.5m<sup>2</sup> 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 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<sup>2)</sup>」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キ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。標準物質 JSd-3 は 3 回の反復測定として、フィルム上に固定した状態の混合物を 3 点用意した。一方大気降下物試料については 1 回のみの測定とした。X 線スペクトル解析は世良らの方法<sup>3)</sup>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 (3 $\sigma$ ) を超えた元素に限り検出と判断し測定値を求めた。標準物質 JSd-3 については、反復測定にもとづく測定値/認証値比の平均値および標準偏差を計算した。



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水物

### 3 結果および考察

#### 3.1 標準物質の測定

地球化学標準物質 JSd-3 を測定したところ 18 種類の元素が検出された。これらのうち認証値の情報がある 16 種類について、測定値と認証値を比較した（図3）。測定値／認証値比は 0.53 から 1.27 の間にあり、測定値と認証値の差は 13 種類の元素において 20%以内であったが、Na、Mg および Pb では違いが大きかった。この不一致の原因として X線の自己吸収補正の問題が考えられた。Pb については計数誤差が大きかったことから、信頼できる定量値を得られなかったと判断された。以上の結果から、軽元素を測定する際には X線自己吸収への注意が必要と考えられた。また標準物質の測定値は多くの元素でばらつきが小さく安定しており、環境試料測定時に標準物質をあわせて測定することにより、標準物質の測定値にもとづいて試料測定値の補正が可能と示唆された。

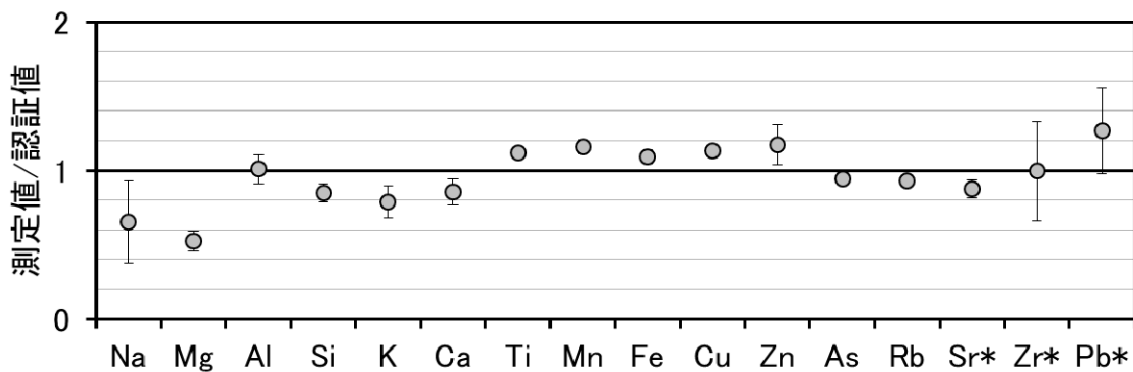


図3 地球化学標準物質 JSd-3 の測定結果（測定値／認証値比）

誤差表示は3回の反復測定にもとづく標準偏差を意味する。アスタリスク(\*)を付した元素について、1回毎の測定値は測定誤差の3倍から10倍の範囲内にあり(3σ < 測定値 < 10σ)、他の元素では誤差の10倍を超えた(10σ < 測定値)

#### 3.2 大気降水物試料の測定

福島県内で採取された大気降水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 1.47～53.3mg/g、0.022～7.75mg/g および 0.015～3.90mg/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4）、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って減少したが、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。

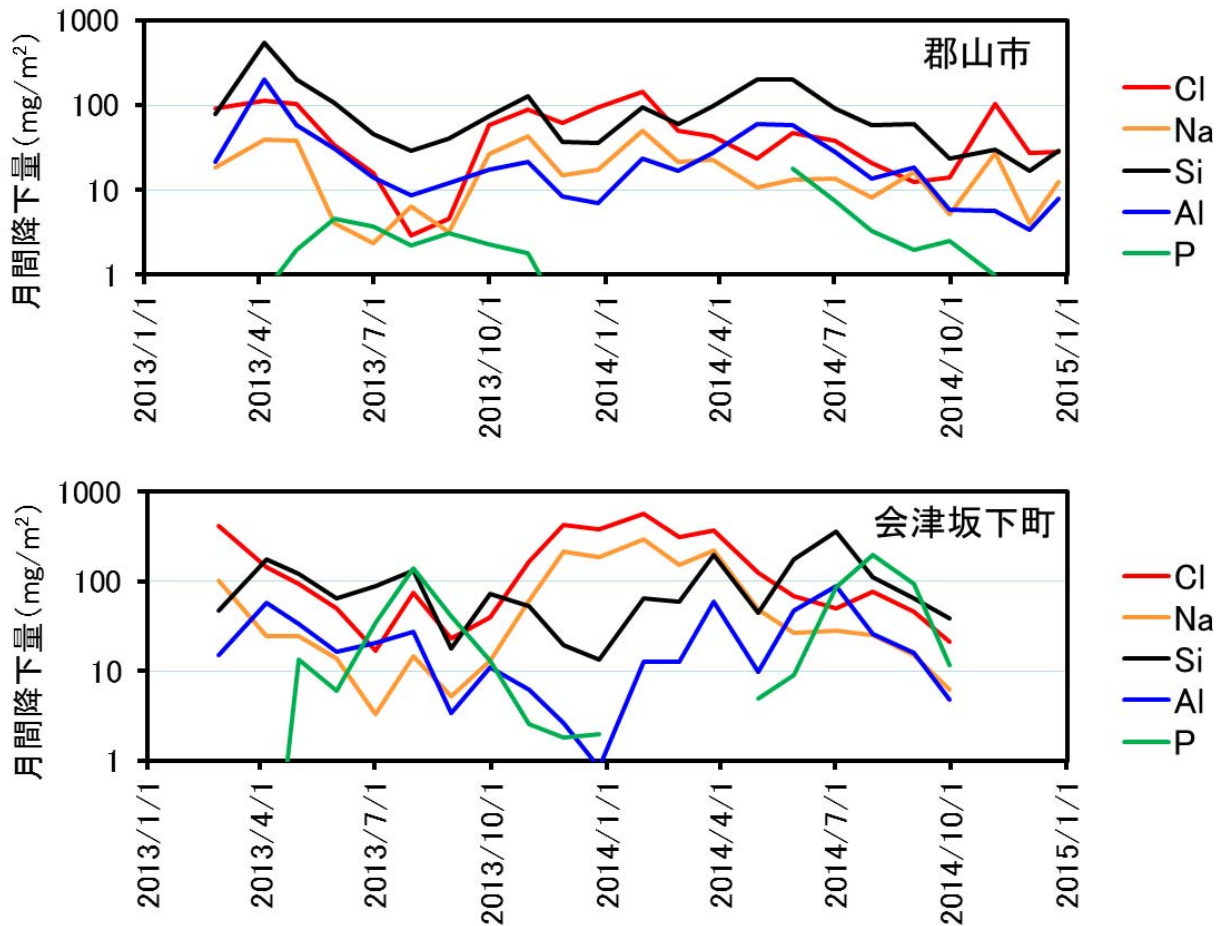


図4 福島県内で採取された大気降下物試料の測定結果

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.

## PIXE analysis of atmospheric deposition samples

H. Fujiwara<sup>1</sup> and K. Sera<sup>2</sup>

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

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

### Abstract

PIXE was applied for multi-element analysis of a geochemical reference material 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 material agreed with the certified values of elements with the exception of Pb and the low-Z elements such as Na and Mg. The measurement results of deposition samples suggest the contributions of sea-salt aerosol and soil particles.