

放射性ヨウ素等対策に関する研究成果報告 2

2011年5月17日

日本放射線安全管理学会

西澤邦秀名古屋大学名誉教授を委員長とするヨウ素対策アドホック委員会の野菜分析班(班長:金沢大学柴和弘教授)は、3月中旬以降検討を進め、この度中間報告として検討結果をまとめました。

福島第一原発事故によって放出された放射性物質により、福島県の農作物だけでなく近隣の県の一部農作物まで、暫定基準値以上の放射能が検出され出荷制限や摂取制限の対象となりました。その後も出荷制限を受ける食物は増加してきており、汚染の状況を調べると共に、汚染した農作物からの放射性物質の除去や低減化などについて検討を進めることは、国民生活の安全・安心の確保につながるといえます。

今回の結果から、以下のようなことが言えます。

(1) 葉が重なっている場合は、内側の葉や、根、茎の汚染は低く、主な汚染は葉の表面にあった。

(2) 野菜の放射能汚染はその汚染部位の状態、例えば、キズの部分、枯れた部分に汚染した場合、除染は難しくなると思われる。野菜の出荷を考える場合、野菜の傷んだ部分を丁寧に取り除くことが大事になると考えられる。

(3) 簡単な洗浄で、スポット状の汚染は除けるが、全面に付着したものは様々な洗浄法によっても落ちにくい。

(4) 還元剤の併用は除染にある程度の効果が認められた。

引き続き、物理的、又は化学的等のいろいろな方法等を検討し、安全かつ効率的な除染方法を開発するための研究を進める必要があります。

実験の詳細は中間報告書をごらんください。

平成 23 年 5 月 18 日

日本放射線安全管理学会

会長 梶本和義 殿

日本放射線安全管理学会

放射性ヨウ素安全対策アドホック委員会

委員長 西澤邦秀

福島第一原発事故によって汚染された野菜に付着した
放射性物質の除去法について

表記の件について、放射性ヨウ素安全対策アドホック委員会 野菜分析班柴和弘班長より別添
のとおり報告書の提出がありましたので、ご報告いたします。

本報告書については、本学会のホームページへ掲載し学会員に対して周知するとともに関係機
関等への適切な広報をお願い致します。

別添

平成 23 年 5 月 17 日

日本放射線安全管理学会
放射性ヨウ素安全対策アドホック委員会
委員長 西澤邦秀 殿

放射性ヨウ素安全対策アドホック委員会
野菜分析班
班長 柴 和弘

福島第一原発事故によって放出された放射性物質により汚染された農作物の除染方法について検討しております。今回、4月22日までの実験結果を中間報告として取りまとめましたので報告いたします。

なお、本報告書は暫定的な結果であり、最終的な結果は別途報告いたします。

別紙

福島第一原発事故によって汚染された野菜に付着した 放射性物質の除去法に関する中間報告

日本放射線安全管理学会

放射性ヨウ素アドホック委員会 野菜分析班

野菜分析班

班員

- 榎本 和義 (高エネルギー加速器研究機構)
- 末木 啓介 (筑波大学アイソトープ総合センター)
- 廣田 昌大 (東京大学大学院工学研究科)
- 野川 憲夫 (東京大学アイソトープ総合センター)
- 桧垣 正吾 (東京大学アイソトープ総合センター)
- 矢永 誠人 (静岡大学理学部)
- 西澤 邦秀 (名古屋大学名誉教授)
- ◎柴 和弘 (金沢大学学際科学実験センター)
- 清水喜久雄 (大阪大学ラジオアイソトープ総合センター)
- 三好 弘一 (徳島大学アイソトープ総合センター)
- 佐瀬 卓也 (徳島大学アイソトープ総合センター)
- 阪間 稔 (徳島大学大学院ヘルスバイオサイエンス研究部)
- ◎ 班長、○副班長

研究協力者

- 桧垣 匠 (東京大学 大学院新領域創成科学研究科)
- 飯田 敏行、村田 勲 (大阪大学 工学研究科)
- 矢坂裕太 (大阪大学 環境安全研究管理センター)
- 斎藤 敬 (大阪大学 安全衛生管理部)
- 北村 陽二、小阪 孝史 (金沢大学 学際科学実験センター)

目次

提言

概要

はじめに

研究報告

- 1, 基本的な洗浄及び測定手順
 - 1-1 洗浄手順
 - 1-2 測定法について
 - 1-3 除去率について
- 2, 物理的洗浄による汚染除去
 - 2-1 水洗浄による除染効果と汚染核種の種類と割合
 - 2-2 熱湯による除染効果
 - 2-3 超音波洗浄による除染効果
 - 2-4 どろ水シャワーによる除染効果
- 3, 化学的洗浄による汚染除去
 - 3-1 洗剤、酢、ヨウ化カリウム及び塩添加による除染効果
 - 3-2 酢、食塩を使った洗浄実験による各核種の除染効果
 - 3-3 クエン酸、重曹及びエタノールによる除染効果
 - 3-4 還元剤による除染効果
 - 3-4-1 次亜硫酸ナトリウムによる除染効果
 - 3-4-2 亜硫酸ナトリウムによる除染効果
 - 3-4-3 二亜硫酸ナトリウム及びチオ硫酸ナトリウムによる除染効果
- 4, 野菜に付着した放射性物質の付着部位や状態
 - 4-1 イメージングプレート(IP)画像による放射能分布
 - 4-1-1 各種野菜における付着放射性物質の画像化
 - 4-1-2 汚染したホウレンソウ 1 株の放射能分布
 - 4-2 走査型電子顕微鏡(SEM)による放射性物質の付着状態
 - 4-3 野菜の葉の各組織の放射能分布測定
- 5, 根からの放射性物質の吸収
- 6, まとめ

提 言

福島第一原発事故によって放出された放射性物質により、福島県の農作物だけでなく近隣の県の一部農作物まで、暫定基準値以上の放射能が検出され出荷制限や摂取制限の対象となった。それらの汚染した農作物の放射性物質を洗浄により除去できれば、出荷制限対象からの解除並びに一般家庭における食の安全・安心の確保につながる。これまで、単純な水洗に加えて各種洗剤、試薬、器具を用いて洗浄を行ったところ10～80%の放射能を除去できることを明らかにした。これらの結果を踏まえて食用に適した確実な放射能除去方法を見出すことが期待される。そのためには、多様な物理的、化学的な洗浄法を組み合わせた安全かつより効率的な洗浄法を開発するための研究を進める必要がある

概要

福島第一原発事故によって放出された放射性物質の付着により汚染した野菜(ホウレンソウ)の放射能除去を目的として、物理的な方法や化学的な方法による除染効果を検討した。物理的な方法としては、流水洗浄、熱湯洗浄、超音波洗浄、シャワー洗浄等を検討した。化学的な方法としては洗剤、酸、アルカリ、塩類、アルコール、還元剤等を検討した。また、除染法を工夫するうえで、重要な情報となる野菜に付着した放射性物質の付着状況や分布等についても、IP画像や走査型電子顕微鏡により検討した。

その結果、水洗浄だけの場合、個々の野菜により除去効果はかなりばらつきが見られた。特にI-131で除去率が12%~50%、Cs-137で32%~70%であった。核種としてはI-131は他の核種に比べて、除去が難しいようであった。物理的洗浄の工夫による除染効果は、熱湯(ゆで)洗浄、超音波洗浄では水洗浄とあまり違いが見られなかった。化学的洗浄の工夫として、食用洗剤、酢、塩、ヨウ化カリウム、クエン酸、重曹、エタノール及各種還元剤による除染効果を調べた。酢、クエン酸のような酸、重曹のようなアルカリ、エタノールや食塩では、水洗浄との違いがあまり見られなかった。食用洗剤はモデル実験では除染効果が見られたが、実際の汚染野菜を使った実験では水洗浄との違いが見られなかった。ヨウ化カリウムはI-131の除去率が約44%と同じ条件の水洗浄(20%)に比べて高い除去率を示した。化学的洗浄の中で最も除染効果があると思われたのは還元剤である。チオ硫酸ナトリウム、次亜硫酸ナトリウム、二亜硫酸ナトリウム、亜硫酸ナトリウム及びアスコルビン酸の5種類の還元剤を用いた。いずれもI-131の除去効果が高くなった。特に、1%w/v二亜硫酸ナトリウムは水洗浄と併せて78%と同じ条件の水の49%に比べ、非常に高い除去率を示した。Cs-137は還元剤と水洗浄の組み合わせで80%以上の除去が可能であった。また、還元剤の濃度は高い方が、また、浸しておく時間が長いほど、除去効果は高い。1%濃度の還元剤では野菜の鮮度は落ちるように思われた。しかし、今回使用したチオ硫酸ナトリウム・5H₂Oでは野菜の鮮度は落ちていないようであった。それはチオ硫酸ナトリウム・5H₂Oの実質的濃度は約0.6%と低かったためと考えられる。今後、低濃度及び短時間での除去率と鮮度の関係を検討することにより、有望な除染剤である可能性が高い。汚染野菜の放射能分布をIP画像で視覚的に調べた結果、スポット汚染と面汚染の2種類が観察された。スポット汚染は粒子状のダストに放射性物質が付着したものと考えられる。面汚染は雨に溶けた放射性物質が葉に付着したものと考えられた。葉の汚染は葉の表面の汚染であり、気孔や根から内部に吸収されていないことがわかった。このように原発から放射性物質が放出された時点で既に一定レベルまで成長していた野菜については、その放射性物質がほとんどが葉の表面に付着しており、洗浄により汚染除去が可能と考えられた。実際に、食品中にも使用される還元剤を用いることにより、最大80%以上の放射能汚染が除去できる可能性があった。一方、野菜の放射能汚染はその汚染部位の状態、例えば、キズの部分、枯れた部分に汚染した場合には除染が難しくなると考えられる。野菜の出荷を考える場合、野菜の傷んだ部分を丁寧に取り除くことが大事になると考えられる。

1, はじめに

平成23年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震(M9.0)の津波により、福島第一原子力発電所事故が起き、大量の放射性物質が大気中に放出された。放出された放射性物質は広い範囲に拡散し、土地、水、農畜産物等が汚染した。その結果、福島県の農作物だけでなく近隣の県の一部農作物まで、基準値以上の放射能が検出され出荷制限や摂取制限の対象となった。

日本放射線安全管理学会の放射性ヨウ素安全対策アドホック委員会では、野菜分析班を立ち上げ、出荷制限の対象となる農作物の低減化並びに家庭での安全・安心確保を目指し、放射性物質で汚染した農作物の簡単かつ効率的な除去方法の検討を行った。

検討項目として、

- ・野菜に付着している放射性物質を流水や温湯での洗浄、手洗い洗浄、超音波洗浄、シャワー洗浄した場合等の物理的な除去法の検討。
- ・野菜に付着した放射性物質の洗剤・酸・アルカリ・塩類・還元剤等による化学的な除去法の検討。
- ・野菜に付着した放射性物質の付着部位や状態をイメージングによる視覚的検討。
を中心に行った。

尚、今回はこれまでの結果を中間報告としてまとめた。

○ 研究機関名称

各実験を担当した野菜分析班員の所属機関名は本文中、以下のような略語で表記した。

K 機構 : 高エネルギー加速器研究機構

T 大 : 東京大学

S 大 : 静岡大学

K 大 : 金沢大学

O 大 : 大阪大学

TS 大 : 徳島大学

2, 研究報告

1, 基本的な洗浄及び測定手順

1-1 洗浄手順

(1)測定1

洗浄前に試料を測定する。

(2)洗浄1

- ① 容器に試料をいれ、試料全体が浸るまで水を注入する。10 分間放置する。
- ② 10 分後に取り出す。
残りの水は廃棄してもよいし、測定してもよい。各自に任せる。
- ③ 試料を別の容器に移し、流水で5分間洗浄する。この時、流水中で、葉を広げて 葉柄部分を中心に葉を傷を付けない程度の強さで、指でこすりながら、全ての葉を洗った後、野菜の水を切る。
- ④ 根の部分を持ち落とし、葉をバラバラにする。最初から、切り落とすと、切り口から汚染水が浸透する恐れがある。
- ⑤ 再度容器にバラバラの葉を入れる。残留汚れを落とす目的で、流水中で、葉柄部分を中心に葉に傷を付けない程度の強さで、指でこすりながら、全ての葉を洗う。
- ⑥ ⑤の作業が終わったら、野菜を取りだし、一旦容器の水を捨て、容器を濯ぐ。
- ⑦ 濯いだ容器に野菜を戻し、再び流水で 3～5 分間洗浄する。この時、手、又は家庭用の菜箸(30cm 以上の長い箸)に相当するもので緩やかにかき混ぜる。
- ⑧ ⑦の試料を取りだし、水を切る。

(3)測定2

(2)⑧を測定する。

(4)以後の洗浄、測定は、各研究者の方法に従う。

1-2 測定法について

試料には、ヨウ素(I)だけでなく、Cs、Teも混在している。

- (1)Ge 及び、NaI スペクトロメータがある場合は、スペクトル測定を行い、核種分析を行う。
- (2)サーベイメータしかない場合は、カウント又は線量率で測定する。
GMとNaIサーベイメータの両方所持する場合は、両方で測る。
- (3)測定の前には、必ずBGの確認を行い、記録する。
- (4)配布の標準線源で校正を行う。
- (5)試料はビニール袋に入れて測定する。
- (6)サーベイメータも汚染を防ぐために、サランラップ、ビニール袋で被覆しておく。

1-3 除去率について

除去率は、次式に従って算出した。

$$\text{除去率(\%)} = \frac{A_0 - A}{A_0} \times 100 \quad (1)$$

A_0 :洗浄前の放射能濃度(Bq, cps, cpm), A :洗浄後の放射能濃度(Bq, cps, cpm)

2. 物理的洗浄による汚染除去

2-1 水洗浄による除染効果

1) 汚染ホウレンソウの水洗浄による除染効果

表一1 汚染ホウレンソウの水洗浄による除染効果

| | 除去率(%) | | | 除去率(%) | | | |
|---|--------|--------|------|--------|--------|----|-----|
| | I-131 | Cs-137 | | I-131 | Cs-137 | | |
| 1 | 50 | 70 | K 機構 | 8 | 41 | 60 | K 大 |
| 2 | 26 | 71 | TK 大 | 9 | 39 | 69 | K 大 |
| 3 | 45 | 57 | S 大 | 10 | 32 | 54 | K 大 |
| 4 | 45 | 61 | S 大 | 11 | 12 | 51 | K 大 |
| 5 | 20 | 39 | S 大 | 12 | 22 | 61 | K 大 |
| 6 | 23* | 32* | TS 大 | 13 | 33 | 53 | K 大 |
| 7 | 37 | 67 | K 大 | | | | |

*: 模擬汚染ホウレンソウ

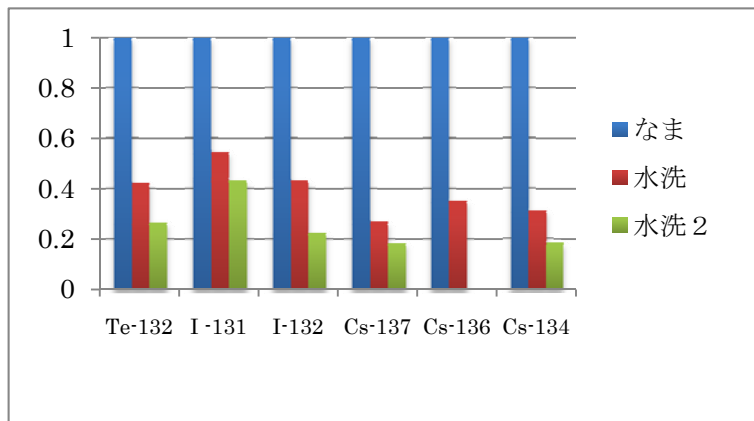
個々のホウレンソウで、除去率のバラツキが大きい。I-131の除去率が低い。

2) 茨城県北部の自家菜園から採取したホウレンソウ(K 機構)

a) 水洗浄の除染効果

I-131 は1回目の水洗で50%、2回目の水洗で60%除去できた。

Cs は1回目の水洗で70%、2回目の水洗で80%除去できた。



図一1

b) 根の部分の放射能

ホウレンソウの根の部分水洗して、放射能を測定した結果、I-131のみ0.33Bq/g検出された。つまり、根の方に放射能はほとんどない。I-131のみ見えたのは、水洗でも土が残っていた可能性がある。

3) 水洗浄実験による各核種の除染効果 (T 大)

表一2 水による洗浄(10分間水につけた後洗浄)

| 核種 | ¹³¹ I | ¹³² I | ¹³³ I | ¹³⁴ Cs | ¹³⁶ Cs | ¹³⁷ Cs | ¹³² Te | ¹⁴⁰ Ba | ¹⁴⁰ La |
|---------|------------------|------------------|------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| 洗浄前(Bq) | 636 | 66.4 | 0 | 118 | 9.50 | 102 | 67.1 | 0 | 0 |
| 洗浄後 | 472 | 38.5 | 0 | 30.6 | 2.60 | 30.0 | 32.9 | 0 | 0 |
| 除去率 | 26% | 42% | — | 74% | 73% | 71% | 51% | — | — |

2-2 熱湯による除染効果(K 機構)

1) ホウレンソウに塩を加えてゆでた場合の結果

表-3 生試料と塩を加えてゆでたあとの放射能の変化

| 核種 | 生試料 | 水洗浄 | 塩ゆで |
|--------|---------|--------|-----|
| | 放射能(Bq) | 除去率(%) | |
| Te-132 | 21 | 60 | 53 |
| I-131 | 248 | 50 | 60 |
| Cs-137 | 14 | 70 | 73 |
| Cs-136 | 2.6 | - | 71 |
| Cs-134 | 15 | - | 74 |

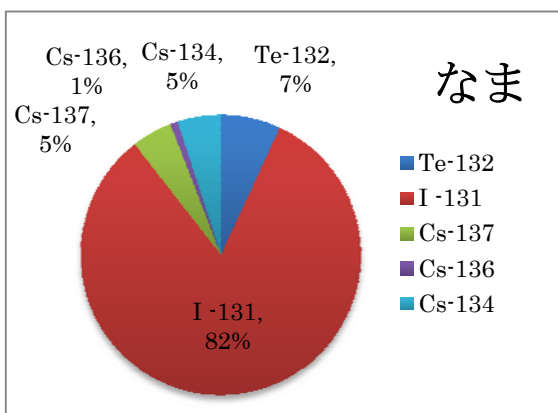


図-2 洗浄前の汚染核種の種類と割合

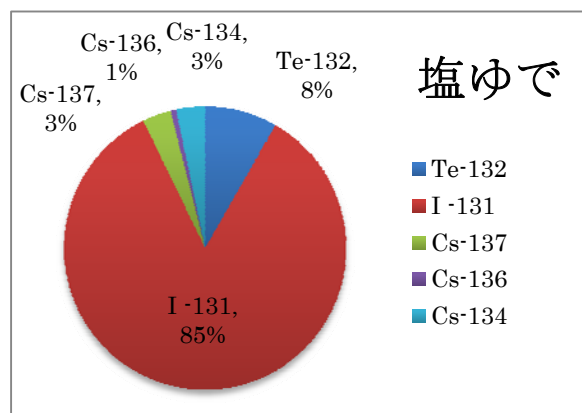


図-3 ゆでた後の汚染核種の種類と割合

ゆでも除染効果は水洗浄とあまりかわらなかった。また、核種組成もあまり変わらなかった。

2-3 超音波洗浄による除染効果(O 大)

1) 汚染ホウレンソウの Ge 検出器測定の結果

測定サンプル間の比較(計数率による相対比較)

| | ¹³¹ I | ¹³⁴ Cs | ¹³⁷ Cs | 使用検出器 |
|--------------|------------------|-------------------|-------------------|----------|
| 福島のと(1g) | 0.29 | 0.07 | 0.06 | Handy Ge |
| ホウレンソウ(7.1g) | 1.26 | 4.03 | 3.29 | 電気冷却 |
| hotspot* | 0.03 | 0.05 | 0.05 | 電気冷却 |

*IP 画像で強いシグナルがでた部分

汚染された土壌に比べてホウレンソウでは Cs の比率が高いことが伺える。

2) ホウレンソウの超音波発生装置による洗浄

標準プロトコルにより水洗いしたホウレンソウ(以下すべて同じ)を 0.5%ヤシノミ洗剤(サラヤ)を含んだ水道水で25°C10分間超音波処理して GM サーベイメータ(TG-133)で測定した。

結果:30%程度の除染効果があったが、25°Cでの浸け洗いの効果とほとんど変わらない。

2-4 だろ水シャワーによる除染効果(O 大)

1) だろを含まんだ水をシャワー状にして吹き付ける方法

1. 試料 (葉を一枚ずつにしたもの) を4時間水道水中に浸せきする。下記の溶液を調製する。
A 液 (だろ水) : 300 ml のだろを 500ml のビーカーに入れよくかき混ぜ、上澄みを除去した後、3回上澄みだろを抽出して全量を3Lにする。
B 液 : A 液に80gのマグネタイトを加え全量を4Lにする。
2. A 液中でよく水を切るようにして20回洗浄する。
3. A 液、B 液のシャワーで洗浄する
4. 水道水中で一晩放置する
5. GM で測定する。

結 果 : A 液のシャワーで洗浄したハウレンソウの除去率は約 53%、B 液では約 71%であった。B 液でのシャワーは効果があったが、今回の実験は各3葉づつの測定でかつ GM のみの計測であったので、次回は試料数を増やすとともに Ge での測定も行う予定である。

3. 化学的洗浄による汚染除去

3-1 洗剤、酢、ヨウ化カリウム及び塩添加による除染効果(TS大、K 機構、T 大)

1) 模擬汚染ハウレンソウを使った、野菜洗浄用洗剤の除染効果について(TS 大)

3月19日(土)に福島(会津若松)からの帰還者協力により、自家用車に付着したダスト(浮遊塵)を採取してもらい提供を受けた。

そのダストを無汚染のハウレンソウ(1枚の葉、重量 8.427g)に擦りつけて、それを模擬汚染ハウレンソウとした。

手順1: 模擬汚染ハウレンソウの放射能測定

手順2: 水道水、流水 20 秒間で洗浄、その後、放射能測定

手順3: 手順2の放射能測定後、野菜洗い用のヤシの実洗剤(原液希釈)で洗浄。その後、放射能測定

なお、放射能測定は、HPGe 検出器によるガンマ線スペクトロメリーで、手順1の測定開始時刻を放射能値の基準時刻として補正し、測定時の半減期補正も行っている。

誤差については、 γ 線ピークのネットカウントの計数誤差と検出効率の誤差等を含めて解析している。試料の幾何学的配置もほぼ同一の場所を再現しセットしている。

表-4 椰子の実洗剤洗浄後の放射能測定結果

| 核種 | 生試料 | 水道水洗い | 椰子の実洗剤 |
|---------------|------------------------------|-------------------------|-------------------------|
| Te-132 | $(2.79 \pm 0.12)e^{-2}$ Bq/g | $(2.23 \pm 0.12)e^{-2}$ | $(0.61 \pm 0.09)e^{-2}$ |
| Cs-136 | $(1.37 \pm 0.22)e^{-2}$ | $(1.48 \pm 0.32)e^{-2}$ | $< 0.65e^{-2}$ |
| I-131 | $(1.19 \pm 0.12)e^{-2}$ | $(0.92 \pm 0.10)e^{-2}$ | $(0.43 \pm 0.11)e^{-2}$ |
| Cs-134 | $(5.30 \pm 0.28)e^{-2}$ | $(4.47 \pm 0.30)e^{-2}$ | $(0.47 \pm 0.08)e^{-2}$ |
| Cs-137 | $(6.94 \pm 0.37)e^{-2}$ | $(4.75 \pm 0.29)e^{-2}$ | $(0.61 \pm 0.10)e^{-2}$ |
| I-132(Te-132) | $(2.53 \pm 0.19)e^{-2}$ | $(1.77 \pm 0.17)e^{-2}$ | $(0.60 \pm 0.12)e^{-2}$ |

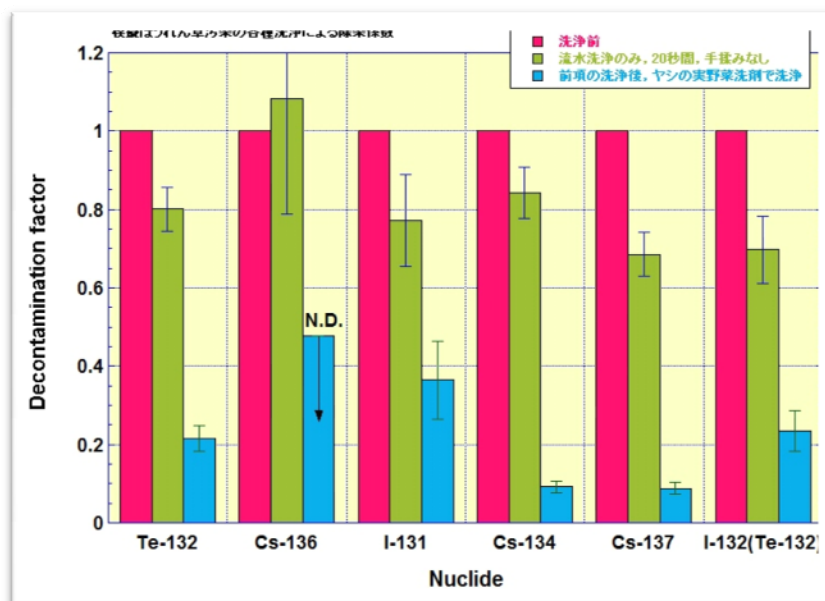


図-4

2) 洗剤、ヨウ化カリウム、食塩水を使った洗浄実験による各核種の除染効果 (T 大)

表-5 除染効果(5分間水につけた後、5分間洗剤水につけ、洗浄)

・水による洗浄(10分間水につけた後洗浄)

| 核種 | ¹³¹ I | ¹³² I | ¹³³ I | ¹³⁴ Cs | ¹³⁶ Cs | ¹³⁷ Cs | ¹³² Te | ¹⁴⁰ Ba | ¹⁴⁰ La |
|---------|------------------|------------------|------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| 洗浄前(Bq) | 636 | 66.4 | 0 | 118 | 9.5 | 102 | 67.1 | 0 | 0 |
| 洗浄後 | 472 | 38.5 | 0 | 30.6 | 2.6 | 30.0 | 32.9 | 0 | 0 |
| 除去率 | 26% | 42% | — | 74% | 73% | 71% | 51% | — | — |

・食器・食品用洗剤(5分間水につけた後、5分間洗剤水につけ、洗浄)

| 核種 | ¹³¹ I | ¹³² I | ¹³³ I | ¹³⁴ Cs | ¹³⁶ Cs | ¹³⁷ Cs | ¹³² Te | ¹⁴⁰ Ba | ¹⁴⁰ La |
|---------|------------------|------------------|------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| 洗浄前(Bq) | 660 | 60.6 | 0 | 103 | 17.6 | 115 | 75.2 | 0 | 0 |
| 洗浄後 | 527 | 42.6 | 0 | 23.9 | 3.6 | 27.7 | 25.1 | 0 | 0 |
| 除去率 | 20% | 29% | — | 77% | 80% | 76% | 67% | — | — |

・ヨウ化カリウム溶液1%(10分間KI溶液につけた後洗浄)

| 核種 | ¹³¹ I | ¹³² I | ¹³³ I | ¹³⁴ Cs | ¹³⁶ Cs | ¹³⁷ Cs | ¹³² Te | ¹⁴⁰ Ba | ¹⁴⁰ La |
|---------|------------------|------------------|------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| 洗浄前(Bq) | 667 | 57.5 | 0 | 97.7 | 13.4 | 104 | 62.1 | 0 | 0 |
| 洗浄後 | 376 | 19.0 | 0 | 21.6 | 2.4 | 21.8 | 18.3 | 0 | 0 |
| 除去率 | 44% | 67% | — | 78% | 82% | 79% | 71% | — | — |

・食塩水1%(10分間食塩水につけた後洗浄)

| 核種 | ¹³¹ I | ¹³² I | ¹³³ I | ¹³⁴ Cs | ¹³⁶ Cs | ¹³⁷ Cs | ¹³² Te | ¹⁴⁰ Ba | ¹⁴⁰ La |
|---------|------------------|------------------|------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| 洗浄前(Bq) | 683 | 64.9 | 0 | 111 | 11.0 | 114 | 76.7 | 0 | 0 |
| 洗浄後 | 504 | 40.4 | 0 | 0.88 | 4.85 | 0.79 | 0.21 | 0 | 0 |
| 除去率 | 26% | 37% | — | 56% | 51% | 49% | 61% | — | — |

結果

- ・ヨウ素と比べてセシウムは除去されやすかった。
- ・ヨウ化カリウム水溶液は比較的良好な効果が見られたが、その他は水洗いと大差はなかった。

3-2 酢、食塩を使った洗浄実験による各核種の除染効果 (K 機構)

ほぼ同じ重量のホウレンソウの葉 (96g) を酢酸 (0.7w%) または塩 (NaCl 1.0w%, KI0.13w% 添加) およびお湯のみを加えてゆでたあとの放射能 (Bq) を以下に示す。縦軸は放射能 (Bq)。

Te-132 について、酢酸の効果があるように思われるが、ほとんど差は認められない。

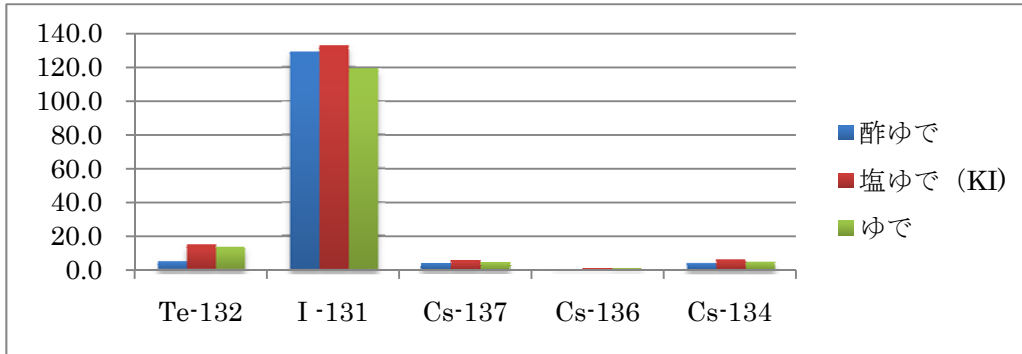


図-5

3-3 クエン酸、重曹及びエタノールによる除染効果 (K 大)

化学薬品の種類

- ① 1%クエン酸
- ② 1%重曹
- ③ 25%エタノール
- ④ 蒸留水

操作手順

- 1, キャベツとホウレンソウを 2-3 枚の葉に分けて、ナイロン袋に入れ、Ge 半導体検出器で放射能を測定する。
- 2, 1L の容器中にホウレンソウを入れ、流水下 10 分間付けておく。
- 3, ①~④の溶液 (1000 mL) にホウレンソウを完全に浸し、10 分間室温下で静置する。
- 4, 2, と同じ条件で洗浄する。
- 5, 1, と同じ条件で、Ge 半導体検出器で放射能を測定する。

結果

表-6 Ge 半導体検出器による測定結果

| | 除去率 (%) | | | |
|--------|---------|------|----------|-----|
| | 1%クエン酸 | 1%重曹 | 25%エタノール | 蒸留水 |
| Te-132 | 46 | 61 | 54 | 62 |
| I-131 | 29 | 44 | 36 | 37 |
| Cs-134 | 49 | 61 | 57 | 63 |
| Cs-137 | 50 | 65 | 60 | 66 |
| Cs-136 | 58 | 62 | 62 | 66 |

考察

食することを前提としていることから、酸として1%クエン酸、アルカリとして1%重曹及び有機液体として25%エタノールを用いて、放射能除去効果を調べた。しかし、対照である蒸留水での除去効果とあまり違いはないようであった。核種別で見ると、水洗浄だけの場合と同じく、I-131 の除去率が低かった。また、25%アルコールの場合、野菜がしおれてしまい、食するという点からも不適であった。

3-4 還元剤による除染効果

3-4-1 ハイドロサルファイトナトリウムによる除染効果 (TS 大)

1) 1.2wt%及び 10wt%ハイドロサルファイトナトリウム($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$)水溶液による除染効果

方 法

1. ビニール袋にホウレンソウを入れて Ge 検出器で測定(10wt%のみ)
2. 基本的洗浄手順に従って洗浄を行った。
3. ビニール袋(10wt%のみ)及び 200ml プラスチック容器(1.2wt%のみ)に入れて Ge 検出器で測定した。
4. 10wt%ハイドロサルファイトナトリウム水溶液 300ml 中で洗浄後、葉と茎をビニール袋に入れて測定後、その洗浄液 300ml を測定した。
5. 10wt%及び 1.2wt%ハイドロサルファイトナトリウム水溶液 300ml にそれぞれホウレンソウをつけ込んで 2 日放置後、水道水で洗浄した。
6. ビニール袋(10wt%のみ)または 200ml のプラスチック容器(1.2wt%のみ)に入れて測定後、その洗浄液 300ml を測定した。

結 果

洗浄直後よりも 2 日間放置後の方が、 ^{131}I の高い除染率が得られ、1.2wt%が 75%、10wt%が 50%であった。これらの値は、洗浄液への ^{131}I の溶出率と 10%-20%の範囲で一致した。溶出率は、洗浄液中の ^{131}I のピーク面積を使用して算出した。また、表中の-は、測定していないことを示している。

表-7 1.2wt%及び 10wt%ハイドロサルファイトナトリウム水溶液による ^{131}I の除染効果

| ハイドロサルファイト水溶液の濃度 | 洗浄直後 | | 2日間放置後 | |
|------------------|----------|----------|----------|----------|
| | 葉と茎(除染率) | 洗浄液(溶出率) | 葉と茎(除染率) | 洗浄液(溶出率) |
| 1.2wt% | 0% | - | 75% | 68% |
| 10wt% | 4% | 4% | 50% | 39% |

考 察

洗浄直後の除染率は、10wt%ハイドロサルファイト水溶液を使用しても 4%と低い除染率であったことから、ハイドロサルファイトによる ^{131}I の除染効果は、2 日間のつけ込み効果であると思われる。2 日経過後のハイドロサルファイト洗浄液は薄い緑色となっており、ホウレンソウ成分が溶け出したことを示している。洗浄直後の除染率が 0-4%であることから、 ^{131}I はホウレンソウ成分と共存しており、2 日間のつけ込みによってホウレンソウ成分とともに溶出されたと思われる。今回の実験では、ハイドロサルファイトの濃度の違いによる除染率の改善は見られなかったが、この理由は、用いたホウレンソウの放射性ヨウ素の付着時期や量、付着状態の違いによる可能性があると考えられるため、さらに検討が必要である。

3-4-2 亜硫酸ナトリウムによる除染効果(S 大)

亜硫酸ナトリウムによるヨウ素の除去

材料 ホウレンソウ 1 (茨城県つくば市小野崎産)
 ホウレンソウ 2A、2B (福島県広野町産)

実験 1 水洗のみによる洗浄効果

操 作

1. ホウレンソウ 1 株を特別の処理をすることなくポリエチレン袋に二重に封入し、Ge 半導体検出器で放射能測定を行った。また、一部のものについては GM サーベイメータでの測定も行った。
2. 測定後のホウレンソウを西澤先生の洗浄レシピにしたがって洗浄し、再度、放射能測定を行った。

結 果

水のみによる洗浄前後の放射能測定の結果を表 8～11 にまとめた。なお、表 9 および表 10 の ^{131}I の計数率は、2011 年 4 月 16 日 0 時を基準時刻として補正をした値である。

表-8 水道水による洗浄前後のホウレンソウの放射能の比較 (ホウレンソウ 1)

| | 測定時間(s) | ^{131}I | | ^{137}Cs | |
|--------|---------|------------------|-----------------|-------------------|-------------------|
| | | 計数 | 計数率(cps) | 計数 | 計数率(cps) |
| 水洗前 | 2780 | 3650 | 1.31 ± 0.02 | 539 | 0.194 ± 0.009 |
| 水洗後 | 4290 | 3180 | 0.74 ± 0.01 | 359 | 0.084 ± 0.005 |
| 除去率(%) | | | 44 ± 2.2 | | 57 ± 5.7 |

表-9 水道水による洗浄前後のホウレンソウの放射能の比較 (ホウレンソウ 2A)

| ホウレンソウ 2A | 測定時間(s) | ^{131}I | | ^{137}Cs | |
|-----------|---------|------------------|-----------------|-------------------|-----------------|
| | | 計数 | 計数率(cps) | 計数 | 計数率(cps) |
| 水洗前 | 900 | 308 | 3.70 ± 0.07 | 680 | 0.76 ± 0.03 |
| 水洗後 | 1200 | 2240 | 2.02 ± 0.04 | 360 | 0.30 ± 0.02 |
| 除去率(%) | — | — | 45 ± 2.4 | — | 60 ± 5.1 |

表-10 水道水による洗浄前後のホウレンソウの放射能の比較 (ホウレンソウ 2B)

| ホウレンソウ 2B | 測定時間(s) | ^{131}I | | ^{137}Cs | |
|-----------|---------|------------------|-----------------|-------------------|-----------------|
| | | 計数 | 計数率(cps) | 計数 | 計数率(cps) |
| 水洗前 | 900 | 3220 | 3.90 ± 0.07 | 548 | 0.61 ± 0.03 |
| 水洗後 | 1200 | 3490 | 3.17 ± 0.06 | 439 | 0.37 ± 0.02 |
| 除去率(%) | — | — | 17 ± 2.4 | — | 40 ± 5.6 |

表-11 GM サーベイメータによる測定結果

| | ホウレンソウ 2A | ホウレンソウ 2B |
|--------------|-----------|-----------|
| 重量(g) | 83 | 86 |
| 洗浄前の計数率(cpm) | 250～950 | 250～1150 |
| 洗浄後の計数率(cpm) | 130～750 | 70～750 |

実験 2 水洗に引き続く亜硫酸ナトリウム水溶液による除染効果 (1)

材料 ホウレンソウ 1 (茨城県つくば市小野崎産 3/27)

操 作

1. 実験 1 で使用したホウレンソウを 250 ml プラスチック容器中で亜硫酸ナトリウム水溶液に浸しやすくするために、葉の部分と葉柄を切り離した。
2. 250 ml プラスチック容器 2 個に、葉および葉柄をほぼ均等になるように分けて入れた。葉および葉柄を入れた後に重さを量ったところ、たまたま、1%亜硫酸ナトリウム水溶液に浸すものも 2.5%亜硫酸ナトリウム水溶液に浸すものも、どちらも 24.4 g であった。このとき、長い葉柄については短く切断するとともに、2 個の容器内での試料の高さがほぼ同じくらいになるように押さえた。
3. それぞれポリエチレン容器内に入れた状態で放射能測定を行った。
4. 放射能測定後、1%亜硫酸ナトリウム水溶液または 2.5%亜硫酸ナトリウム水溶液 200 ml に浸した。
このとき、二つの容器内のホウレンソウの重量はたまたま同じであったが、葉と葉柄の量のバランスが違っていたのか、あるいは、容器内に入れるときや押さえる時に力を入れすぎたのか、2.5%亜硫酸ナトリウム水溶液に浸した方は全体が丸まってしまった。これに関しては、葉に物理的な力を加えたことが原因である可能性がある他、亜硫酸ナトリウムの濃度が関係している可能性も否定できず、後で記すことにする。
5. 亜硫酸ナトリウム水溶液に浸してから約 20 時間後に、水溶液のみをデカンテーションにより別の同じ型のポリエチレン容器に移した。



図一 6

6. ホウレンソウおよび亜硫酸ナトリウム水溶液の両者の放射能測定を行った。
7. 放射能測定後、ポリエチレン容器からホウレンソウの葉および葉柄を取り出し、亜硫酸ナトリウム処理後の様子を観察した。

結果と考察

1. 亜硫酸ナトリウム処理前後のホウレンソウについてガンマ線を測定した結果と処理に用いた亜硫酸ナトリウム水溶液の測定結果を表 14 にまとめた。ここで示した残存率とは、この実験 2 での亜硫酸ナトリウム処理前の葉の測定値に対する処理後の葉の測定値の割合である。なお、亜硫酸ナトリウム水溶液で処理する前の測定から処理後の測定までは、ほぼ 1 日あいているので、処理前の葉の計数値については 1 日分の減衰補正を行った。

表に示したように、この測定条件での計数率で見ると、 ^{131}I については、1%亜硫酸ナトリウム水溶液に 20 時間浸した場合には約 17%が除去され、2.5%水溶液に浸した場合には約 44%が除去されたことになる。

表-12 亜硫酸ナトリウム水溶液による放射能除去の効果

| | 測定時間 (s) | ¹³¹ I | | ¹³⁷ Cs | |
|---|-------------|------------------|---------------|-------------------|-----------------|
| | | 計数* | 計数率(cps) | 計数 | 計数率(cps) |
| 1% Na ₂ SO ₃ 処理前の葉 | 6610 | 2700 | 0.409 ± 0.008 | 352 | 0.0533 ± 0.0031 |
| 処理後の葉 | 4330 | 1480 | 0.341 ± 0.009 | 172 | 0.0398 ± 0.0035 |
| 処理後の水 | 14400 | 1360 | 0.094 ± 0.003 | 249 | 0.0173 ± 0.0014 |
| 除去率(%) | | | 17 ± 3.0 | | 25 ± 8.8 |
| 2.5%Na ₂ SO ₃ 処理前の葉 | 3740 | 2850 | 0.762 ± 0.014 | 220 | 0.0588 ± 0.0043 |
| 処理後の葉 | 4410 | 1880 | 0.426 ± 0.010 | 159 | 0.0361 ± 0.0034 |
| 処理後の水 | 4500 | 864 | 0.192 ± 0.007 | 102 | 0.0227 ± 0.0026 |
| 除去率(%) | | | 44 ± 2.4 | | 39 ± 9.8 |

* 亜硫酸ナトリウム水溶液処理前の測定値のみ減衰補正を行った。

2. 三好先生により行われたハイポによる洗浄効果の実験と同様に、本実験でも、亜硫酸ナトリウム処理後の葉の放射能値（計数率）と水溶液の放射能値（計数率）の和と、もとの葉の放射能値とは、あまりよく一致していない。

これは、おのおのの試料についての測定器との幾何学的関係が一定していないところによるのであろうが、もう一つ重要なこととして、葉の汚染が不均一であることがあげられる。IP 画像で見ると、葉の表面に不均一に点在する汚染スポットのうちの一つあるいは数個の放射能が極端に強く、葉の放射能測定において、その強いスポットが検出器の近くにあるかどうかで測定値が大きく変わってくると思われる。サーバイメータを用いての測定や汚染の評価も、同様の理由により困難である。

3. 1回の実験結果であるが、1%亜硫酸ナトリウム水溶液よりも 2.5%水溶液の方が除染効果が高い結果が得られている。しかしながら、両濃度の亜硫酸ナトリウム処理後のハウレンソウを比較してみると、1%水溶液で処理した方は、まだ、葉がしっかりとした生鮮食品のような感じであったが、2.5%水溶液で処理した方は葉が妙に柔らかく、しおれてしまったようであった。食感も、先にも記したように、おひたしのような感じであった。

これは、ポリエチレン容器内に葉を詰めたり、測定の際の幾何学的条件をそろえるために葉を押さえたりしたときに葉を傷めたことによること、または亜硫酸ナトリウムの化学的効果によることも考えられるが、2.5%Na₂SO₃水溶液というのがハウレンソウにとって、かなりの高張液であることが考えられる。

亜硫酸ナトリウムが水溶液中で完全に電離しているとする、1%水溶液の場合の正負あわせたイオンの濃度は約 0.24 mol/l であり、植物細胞とほぼ等張と考えられそうである。しかし、2.5%の場合には相当の高張となり、その結果、ハウレンソウがしおれてしまったと考えられる。

もし、2.5%溶液でハウレンソウがしおれてしまったのが上述のような理由によるならば、

- ・ 1%水溶液での処理の時間を延ばす
- ・ 水溶液の量を増やす
- ・ 葉を広げるようにするとともに、攪拌するなどして、葉の表面の亜硫酸ナトリウムの作用自体による葉の表面での濃度低下を防いで効率を高める

などのようなことにより除去効果を高めることができるかもしれない。

そこで、1% Na₂SO₃水溶液を充分量用いての実験を行うこととした。

実験 3 水洗に引き続く亜硫酸ナトリウム水溶液による除染効果 (2)

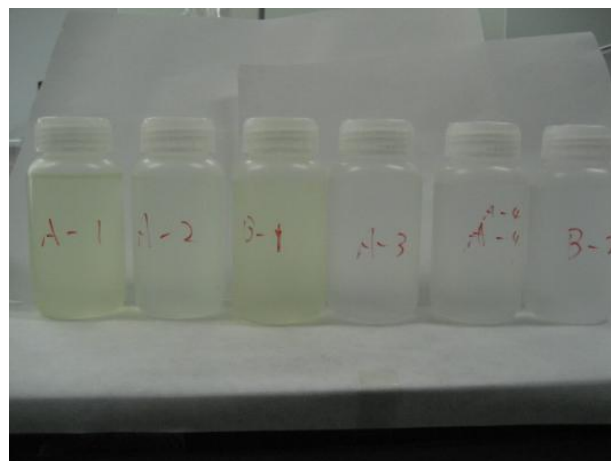
材料 ホウレンソウ 2A、2B (福島県広野町産)

操 作

1. 実験 1 で使用したホウレンソウを 350 ml プラスチック容器 (ビール用カップ) 中で亜硫酸ナトリウム水溶液に浸しやすくするために、葉の部分と葉柄を切り離した。
2. 350 ml プラスチック容器の中に立てかけるように葉を 1 枚ずつ入れたものを 6 個(ホウレンソウ A から 4 枚、B から 2 枚)作成して Ge 半導体検出器で放射能測定を行った。
3. 2 の測定結果を考慮しつつ、1%亜硫酸ナトリウム水溶液に浸すグループ 3 枚と純水に浸すグループ 3 枚にわけ、それぞれ、250 ml の溶液または純水に浸した。
4. 約 34 時間後、1%亜硫酸ナトリウム水溶液または純水をデカンテーションにより 250ml ポリエチレン容器に移した。
5. 葉については、いったんプラスチック容器から取り出して様子を観察してから、処理前の測定と同じようにもとのプラスチック容器の中に立てかけた状態にして Ge 半導体検出器で放射能測定を行った。溶液および水については、ポリエチレン容器のまま測定を行った。



図一 7



図一 8

結果と考察

1. ホウレンソウ A から 4 枚 (A1~A4 とする)、ホウレンソウ B から 2 枚 (B1~B2 とする) の葉を選び、葉柄を切り取った後の葉の重量を表 15 に示した。この後の放射能測定の結果をもとに、A1、A2 および B1 を 1%亜硫酸ナトリウム水溶液での処理を行うグループ、残りの A3、A4 および B2 を純水での処理を行うグループとした。

表一 1 3 実験に使用した葉の重量

| 葉の名称 | A1 | A2 | A3 | A4 | B1 | B2 |
|-------|------|------|------|------|------|------|
| 重量(g) | 3.20 | 2.69 | 2.67 | 2.31 | 3.74 | 2.42 |

実験 2 では、ホウレンソウの葉および葉柄あわせて 24.4 g を 250 ml のポリエチレン容器内で 200 ml の溶液に浸したのに対し、今回の実験では、2.31~3.74 g の葉を 350 ml のプラスチック容器内で 250 ml の溶液または純水に浸したことから、物理的に葉を傷めることもなく、亜硫酸ナトリウムの効果を見ることができたのではないかと考えている。

2. 1%亜硫酸ナトリウム水溶液に 30 時間浸した葉と純水に 30 時間浸した葉では、溶液から取り出した段階では、目視あるいは触感では、ほとんど差異は感じられなかった。しかしながら、図-7、図-8 の写真に見られるように、1%亜硫酸ナトリウム水溶液が入っている 3 本は、実験 2 に比べればはるかに僅かではあるが、溶液がやや黄色く色づいていた。ただし、葉 A2 が入っていたものの色はかなり薄く、同じ株の葉といえども着色の程度は一様ではなかった。

溶液から取り出した葉は、洗ビンからの純水で葉を簡単にすすいでからガンマ線測定や IP にコンタクトさせたが、時間が経過するにつれて、1%亜硫酸ナトリウム水溶液に浸した方は、明らかにしおれていった。これは、着色の程度が低いとはいえ、処理液が色づいていたことから亜硫酸ナトリウムによって葉の表面の細胞が損傷を受け、それが原因で、純水に浸したものに比べて早くしおれてしまったことも考えられるが、水溶液から取り出した後の水洗が不十分であったために、葉の表面の水分が気化していくにつれて高濃度の亜硫酸ナトリウム水溶液に浸されているのと同様の効果となり、しおれてしまったことも考えられる。亜硫酸ナトリウムは還元剤として用いているのであるとともに、食用ということを念頭に置いてのテストであるので、現在、①もう少し希薄な溶液 (0.5%溶液) でのテスト、②1%溶液に浸す時間を 1 時間程度とし、その後は純水に浸す、というようなことを試みているところである。

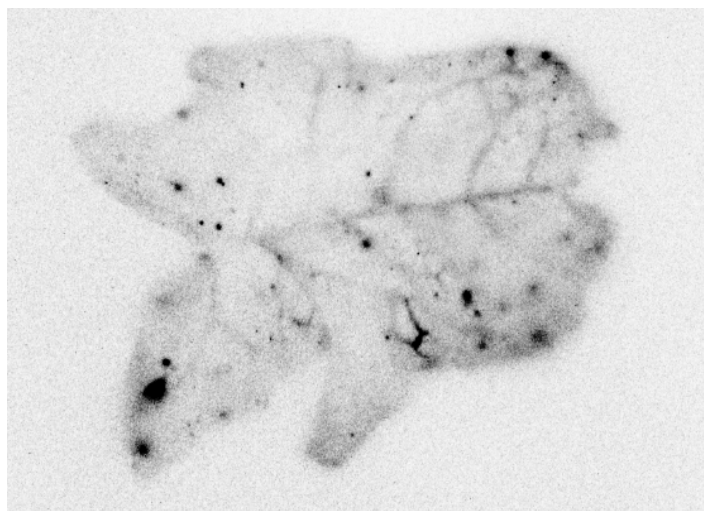


図-9 葉 A1 の IP 画像
(1%亜硫酸ナトリウム水溶液処理後)

図-9 の 1%亜硫酸ナトリウム水溶液処理後の葉 A1 画像では、葉脈内に RI が存在しているのが明瞭に見て取れる。これは、葉柄の部分を取り取って 1%亜硫酸ナトリウム水溶液あるいは純水に浸したために、葉から遊離した RI が導管を通過して侵入したものと考えている。しかし、ホウレンソウ B で、実験に用いなかった葉の IP 画像には無処理の葉でも葉脈内に RI の存在を疑わせるものがあり、今後、注意深く観察していきたい。

3. 1%亜硫酸ナトリウム水溶液または純水での処理前後の放射能測定の結果および処理後の溶液についての放射能測定の結果を表-14 (ヨウ素) および表-15 (セシウム) にまとめた。

表-14 1%亜硫酸ナトリウム水溶液処理前後の葉および溶液の ^{131}I 放射能測定の結果

| | 処理前の葉 | | | 処理後の葉 | | | 除去率(%) | 溶液または水 | |
|----|-------|------|---------------|-------|------|---------------|-------------|--------|------|
| | 測定時間 | 計数 | 計数率(cps)* | 測定時間 | 計数 | 計数率(cps)* | | 測定時間 | 計数 |
| A1 | 1200 | 802 | 0.787 ± 0.029 | 1800 | 696 | 0.538 ± 0.021 | 32 ± 4.7 | 3600 | 369 |
| A2 | 1200 | 172 | 0.169 ± 0.014 | 1800 | 222 | 0.172 ± 0.012 | -1.8 ± 10.8 | 3600 | 72.0 |
| B1 | 1200 | 612 | 0.605 ± 0.025 | 1800 | 494 | 0.385 ± 0.018 | 36 ± 5.3 | 3600 | 477 |
| A3 | 1200 | 189 | 0.186 ± 0.014 | 1800 | 209 | 0.162 ± 0.012 | 13 ± 10 | 3600 | N.D. |
| A4 | 1200 | 1030 | 1.02 ± 0.033 | 1800 | 1120 | 0.873 ± 0.027 | 14 ± 4.2 | 3600 | 151 |
| B2 | 1200 | 74.5 | 0.074 ± 0.010 | 1800 | 66.7 | 0.052 ± 0.001 | 29 ± 18 | 3600 | N.D. |

* 計数率については、4月16日0時現在の値となるように補正した。

表－15 1%亜硫酸ナトリウム水溶液処理前後の葉および溶液の ^{137}Cs 放射能測定の結果

| | 処理前の葉 | | | 処理後の葉 | | | 除去率(%) | 溶液または水 | |
|----|-------|------|---------------------|-------|------|---------------------|--------------|--------|------|
| | 測定時間 | 計数 | 計数率(cps) | 測定時間 | 計数 | 計数率(cps) | | 測定時間 | 計数 |
| A1 | 1200 | 116 | 0.0967 ± 0.0093 | 1800 | 122 | 0.0679 ± 0.0065 | 30 ± 12 | 3600 | 74.7 |
| A2 | 1200 | 36.0 | 0.0300 ± 0.0054 | 1800 | 52.3 | 0.0291 ± 0.0043 | 3.1 ± 23 | 3600 | N.D. |
| B1 | 1200 | 73.0 | 0.0608 ± 0.0075 | 1800 | 58.5 | 0.0325 ± 0.0046 | 47 ± 16 | 3600 | 39.0 |
| A3 | 1200 | 24.3 | 0.0203 ± 0.0047 | 1800 | 35.5 | 0.0197 ± 0.0037 | 2.6 ± 30 | 3600 | N.D. |
| A4 | 1200 | 165 | 0.1370 ± 0.0111 | 1800 | 58.5 | 0.121 ± 0.008 | 12 ± 10 | 3600 | N.D. |
| B2 | 1200 | 15.0 | 0.0125 ± 0.0042 | 1800 | N.D. | N.D. | - | 3600 | N.D. |

表14に見られるように、表の上段に掲げた1%亜硫酸ナトリウム水溶液処理を行った3枚の葉のうちのA1およびB1の2枚については30%以上の除去効果があった。それに対して、葉の測定結果で見ると、A2については除去効果が認められていない。しかしながら、A2を処理した後の溶液からはヨウ素が検出されていたのに対して、このA2と同程度の汚染の葉であるA3を純水処理した後の水の測定においてはヨウ素のピークは認められなかった。このことは、純水に浸すことによる除去の効果は低く、亜硫酸ナトリウム水溶液には一定以上の除去効果があることを示しているのであるが、葉の測定で見ると、そのような結論を導けない。その原因が測定の際の葉の置き方であることは間違いないであろう。今回は、①葉を折りたたむことによって葉に傷をつけるのを避けること、②葉を検出器に平置きした場合よりも縦置きの方が処理前後での測定における汚染スポットの幾何学的位置のズレの影響が少なくなるかもしれないと考えたことから、切り取った葉柄があった側を下にしてコップ内に葉を立てかけて測定したが、やはり正確さに欠けていたのであろう。なお、図9に示した葉A1のIP画像で、葉の上端（図では右端）が切れているのは、もともと傷がついていた部分に、葉がしおれてきてカップの中に立てかけることができなかつたためにカップに貼り付けるために用いたテープを剥がした際に切れてしまったものである。このような幾何学的問題は、A2に限ったことではなく、A1やB1でも同様のことが考えられ、それを考慮すると、水洗後のハウレンソウからの1%亜硫酸ナトリウム水溶液によるヨウ素の除去率は、実験2の値である20%程度というところかもしれない。この点、現在、測定に時間はかかっているが、縦型Ge半導体検出器の表面から一定の位置で、葉を水平におくようにして、汚染の不均一さによる測定誤差を減じるようにした測定を行うようにしている。

また、現在行っている実験では、葉の前処理に関して、ある程度の長さの葉柄を残してその部分が処理液に浸らないようにすることにより、葉柄の切断面からの処理液や処理液に溶解したRIの侵入の可能性をなくしている。この点に関して、まだ実験の途中であるが、最近になって成長した葉では、おそらく根からの吸収により葉の内部が汚染されていることを疑わせるデータが得られつつある。

一方、セシウムについては、亜硫酸ナトリウム水溶液処理の場合には処理後の溶液からは検出されている（A1およびB1）のに対して、純水処理の場合には処理後の水では検出されていない。このことから、セシウム汚染についても亜硫酸ナトリウム水溶液処理は一定の効果があると考えられるが、今回の試料では、同じ測定時間では全体として計数が少なく、まだ断定的なことは言えない。

3-4-3 二亜硫酸ナトリウム及びチオ硫酸ナトリウムによる除染効果(K 大)

1) 還元剤によるホウレンソウの放射能汚染の除去効果

還元剤の種類

- ① 1%チオ硫酸ナトリウム($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$)
- ② 1%次亜硫酸ナトリウム($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$)
- ③ 1%二亜硫酸ナトリウム($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_5$)
- ④ 1%亜硫酸ナトリウム(Na_2SO_3)
- ⑤ 1%アスコルビン酸
- ⑥ 蒸留水

操作手順

- 1, ホウレンソウ一株を GM サーベイメータ、NaI サーベイメータ、Ge 半導体検出器で放射能測定を行う。
 予め、カウントの高い葉を1枚取り、イメージングプレート(BAS-SR2025)に12時間密着させ、画像を得る。
- 2, 1Lの容器中にホウレンソウを入れ、流水下10分間付けておく。その後、葉を一枚一枚切り離し、流水下、5分間手で洗う。
- 3, 1,と同じ方法で放射能測定する。また、同じ葉を同様にイメージングする。
- 4, ①～⑥の還元剤溶液(500 mL)にホウレンソウを完全に浸し、24時間室温下で静置する。
- 5, ホウレンソウを2,と同様な方法で洗浄する。
- 6, 1,と同じ方法で放射能測定する。また、同じ葉を同様にイメージングする。

結果

表-16 GM サーベイメータの測定結果

| | 水洗浄効果 | 還元剤効果* | 水洗浄+還元剤効果 |
|--------------|--------|--------|-----------|
| | 除去率(%) | 除去率(%) | 除去率(%) |
| ①1%チオ硫酸ナトリウム | 71 | 52 | 86 |
| ②1%次亜硫酸ナトリウム | 63 | 57 | 84 |
| ③1%二亜硫酸ナトリウム | 19 | 90 | 92 |
| ④1%亜硫酸ナトリウム | 66 | 69 | 90 |
| ⑤アスコルビン酸 | 39 | 47 | 68 |
| ⑥蒸留水 | 62 | 24 | 71 |

表-17 NaI サーベイメータの測定結果

| | 水洗浄効果 | 還元剤効果* | 水洗浄+還元剤効果 |
|--------------|--------|--------|-----------|
| | 除去率(%) | 除去率(%) | 除去率(%) |
| ①1%チオ硫酸ナトリウム | 53 | 38 | 71 |
| ②1%次亜硫酸ナトリウム | 13 | 61 | 66 |
| ③1%二亜硫酸ナトリウム | 49 | 62 | 81 |
| ④1%亜硫酸ナトリウム | 20 | 50 | 60 |
| ⑤アスコルビン酸 | 42 | 47 | 69 |
| ⑥蒸留水 | 22 | 28 | 66 |

* 還元剤効果の除去率は手洗い洗浄後の放射能に対する還元剤洗浄後の放射能の割合で示した。

表-18 Ge 半導体検出器の測定結果

| | | | |
|--------------|--------|--------|-----------|
| ①1%チオ硫酸ナトリウム | 水洗浄効果 | 還元剤効果* | 水洗浄+還元剤効果 |
| | 除去率(%) | 除去率(%) | 除去率(%) |
| Te-132 | 60 | 47 | 87 |
| I-131 | 41 | 53 | 72 |
| Cs-134 | 63 | 49 | 81 |
| Cs-137 | 60 | 51 | 80 |
| ②1%次亜硫酸ナトリウム | 水洗浄効果 | 還元剤効果* | 水洗浄+還元剤効果 |
| | 除去率(%) | 除去率(%) | 除去率(%) |
| Te-132 | 53 | 64 | 83 |
| I-131 | 39 | 44 | 66 |
| Cs-134 | 71 | 26 | 78 |
| Cs-137 | 69 | 32 | 79 |
| ③1%二亜硫酸ナトリウム | 水洗浄効果 | 還元剤効果* | 水洗浄+還元剤効果 |
| | 除去率(%) | 除去率(%) | 除去率(%) |
| Te-132 | 44 | 47 | 70 |
| I-131 | 32 | 68 | 78 |
| Cs-134 | 57 | 66 | 85 |
| Cs-137 | 54 | 65 | 84 |
| ④1%亜硫酸ナトリウム | 水洗浄効果 | 還元剤効果* | 水洗浄+還元剤効果 |
| | 除去率(%) | 除去率(%) | 除去率(%) |
| Te-132 | 54 | 61 | 82 |
| I-131 | 12 | 64 | 69 |
| Cs-134 | 52 | 58 | 80 |
| Cs-137 | 51 | 62 | 81 |
| ⑤1%アスコルビン酸 | 水洗浄効果 | 還元剤効果* | 水洗浄+還元剤効果 |
| | 除去率(%) | 除去率(%) | 除去率(%) |
| Te-132 | 45 | 52 | 74 |
| I-131 | 22 | 57 | 67 |
| Cs-134 | 57 | 56 | 81 |
| Cs-137 | 61 | 49 | 80 |
| ⑥蒸留水 | 水洗浄効果 | 還元剤効果* | 水洗浄+還元剤効果 |
| | 除去率(%) | 除去率(%) | 除去率(%) |
| Te-132 | 53 | 43 | 73 |
| I-131 | 33 | 23 | 49 |
| Cs-134 | 59 | 20 | 67 |
| Cs-137 | 53 | 32 | 68 |

* 還元剤効果の除去率は手洗い洗浄後の放射能に対する還元剤洗浄後の放射能の割合で示した。

考 察

流水下の手洗いによる物理的な方法による放射能除去率はGMサーベイメータで $54 \pm 18\%$ 、Ge 半導体検出器でTe-132 ($56 \pm 8.8\%$)、I-131 ($31 \pm 11\%$)、Cs-134 ($59 \pm 5.1\%$)、Cs-137 ($57 \pm 7.6\%$)であった。流水下での手洗い洗浄の場合、放射能除去率のばらつきが大きかった。これは手洗いなので一定条件にできないためや、野菜に付着している放射性物質の付着状態がそれぞれ異なるためと考えられる。尚、NaI サーベイメータでの測定の場合、 $30 \pm 18\%$ と低かったのは検出器の口径が小さく、野菜全体の測定ができなかったためと考えられる。 水手洗い洗

浄だけの場合、I-131 の除去効果が特に低いことがわかった。これは、I-131 の化学形に原因があると考えられる。チェルノブイリ原発事故の場合、空气中に放出された I-131 の化学形並びに存在比は I_2 (35%), HOI (25%), CH_3I (40%) (原子力百科事典 HP より) であった。そのうち I_2 分子は物質に吸着しやすいため、除去しにくい。そこで、 I_2 分子を還元剤により、化学形を I⁻ (ヨウ素イオン) に変えて、水で洗い落としやすくする方法を検討した。還元剤としては食料品等の酸化防止剤に使用されている亜硫酸ナトリウム系の還元剤を用いた。その結果、蒸留水に比べ検討したすべての還元剤において、除去効果が高くなった。特に、ワインの酸化防止剤に使用されている二亜硫酸ナトリウム ($Na_2S_2O_5$) の放射能除去率は、GM サーベイメータ測定で約 90%、Ge 半導体検出器測定で I-131 が約 68% と蒸留水のそれぞれ 24% や 23% に比べて高い値を示した。しかし、還元剤溶液に浸した時間が 24 時間と長かったため、野菜 (ほうれん草) がしおれてしまったものが多く、食するという点から問題であると思われた。唯一、チオ硫酸ナトリウム洗浄の野菜は外見的に比較的保たれていた。これは、チオ硫酸ナトリウムだけが結晶水を含んでいたため、実際の濃度が約 0.6% であったためと考えられた。今後、低濃度の還元剤の使用や浸しておく時間を短くすることによる除去率及び鮮度の影響を検討する必要がある。

2) IP 画像による、野菜の放射性物質の付着状態の視覚的検討

次に、水洗浄前、水洗浄後、還元剤洗浄後のそれぞれのほうれん草の葉の IP 画像を撮り、洗浄による放射能除去の様子を視覚的に比較検討した。

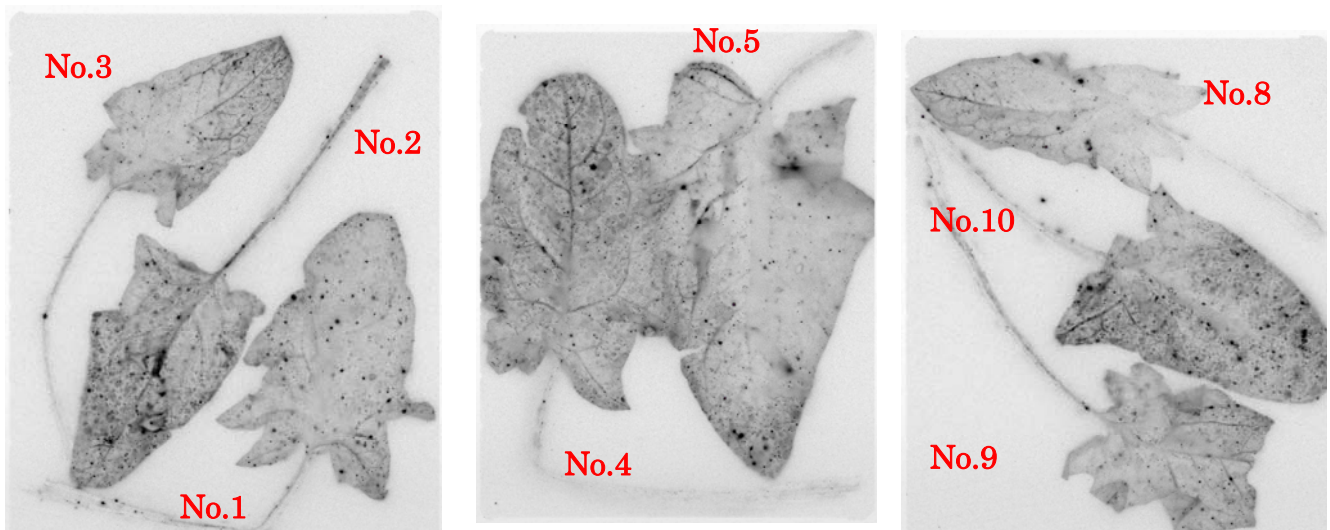


図-10 水洗浄前のほうれん草の葉の IP 画像 (12 時間 曝露)

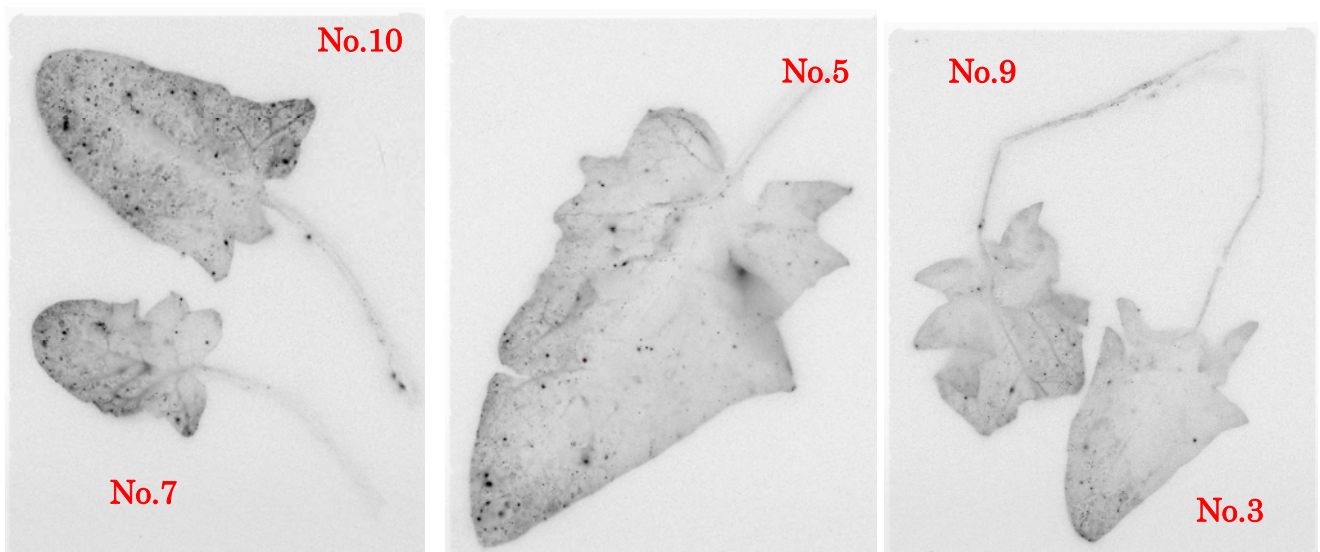
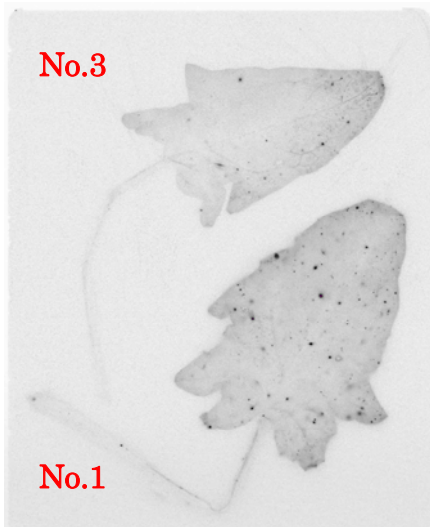
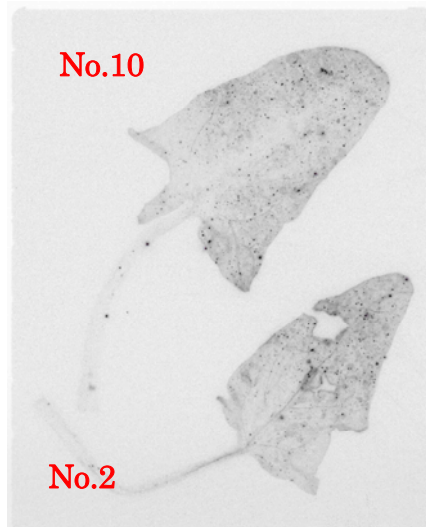


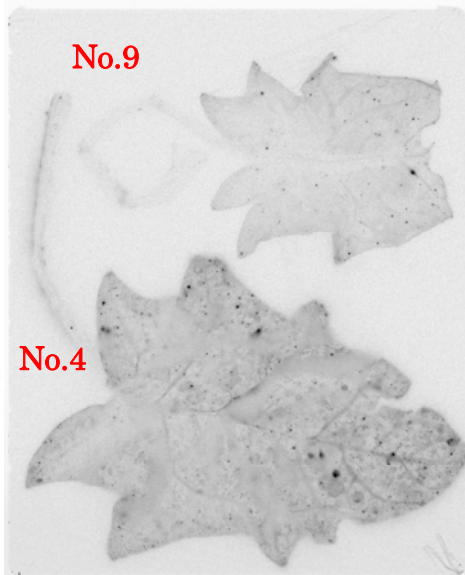
図-11 水洗浄後のほうれん草の葉の IP 画像



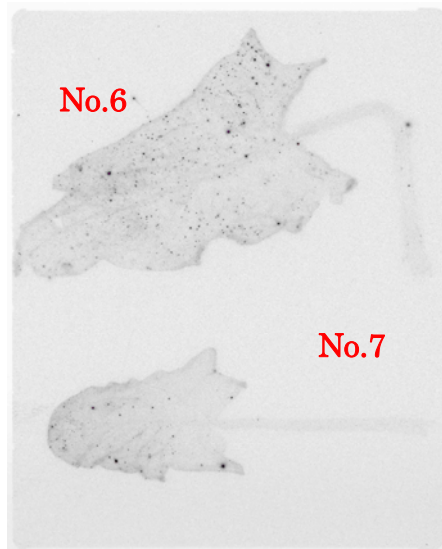
No.1:チオ硫酸ナトリウム、No.3: 亜硫酸ナトリウム



No.2, No.10: 二亜硫酸ナトリウム



No.9: アスコルビン酸、No.4: 蒸留水



No.6, No.7: 次亜硫酸ナトリウム

図-12 還元剤洗浄後のほうれん草の葉のIP画像

考察

野菜の放射能汚染にはスポット汚染と面汚染の2種類があると思われる。スポット汚染は大気中の粒子状の放射性ダストが野菜の葉に付いたものと考えられる。また、水洗浄前のNo.2やNo.4の葉のIP画像(図-10)を見ると、雨粒の大きさの丸い面汚染がいくつも見られることから、面汚染は、降雨時に、ダスト等に付着していた放射性物質が雨滴に移行し、葉に付いたためと考えられる。水手洗い洗浄で落ち難い汚染はダストが葉の線維にからまっている場合や葉の細かい傷の隙間に入り込んでしまっている可能性がある。また、I-131の場合はその化学形による影響も無視できないと考えられる。二亜硫酸ナトリウムのような還元剤により、I-131の除去率が高くなるのは、化学形が吸着しやすい I_2 が還元剤でI-イオンとなり、水に溶けやすくなり除去しやすくなったと考えられる。

水流下での手洗い洗浄による汚染の除去効果をIP画像で調べて見た。その結果、スポット汚染と面汚染とも、水及び物理的な力でとれずに残るものがかかりあることがわかる。

放射能除去効果の大きかった二亜硫酸ナトリウム洗浄後のIP画像を手洗い洗浄後のIP画像と比較すると、手洗い洗浄で落ちなかったスポット汚染や面汚染ともかなり落ちていることが視覚的にも観察できた(図-11及び図-12のNo.10)。

4. 野菜に付着した放射性物質の付着部位や状態

4-1 イメージングプレート(IP)画像による放射能分布

4-1-1 各種野菜における付着放射性物質の画像化(TS 大)

福島原子力災害に由来する放射性物質が付着した野菜類の放射線像を、イメージングプレート (IP) を用いて画像化したので、以下に報告する。

試料：白菜 (GM800cpm)、ブロッコリー (GM200cpm)、ニラ (GM200cpm)、
水菜 (GM250cpm)、ホウレンソウ (GM300cpm)、ネギ (GM200cpm)

撮像時間：70時間：IP用カセット内における常温照射(遮蔽なし)

使用IP：BAS-MS3543 (白菜第2葉、第4葉、ブロッコリー(5mmスライス)、ニラ、水菜)
BAS-MS2040 (ホウレンソウ表、ホウレンソウ裏、ネギ新鮮、ネギやや黄変)

使用機器：FLA9000 (Sモード、ガラスステージ使用、画素200 μ m)

結果：画像参照



図-13: <写真>白菜第2葉、第4葉、
ブロッコリー(5mmスライス)、ニラ、水菜



図-14: <IP像>白菜第2葉、第4葉、
ブロッコリー(5mmスライス)、ニラ、水菜



図-15: <写真>ホウレンソウ表、
ホウレンソウ裏、ネギ新鮮、ネギやや黄変

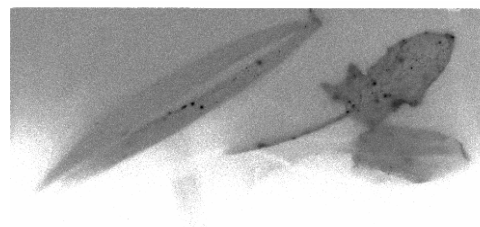


図-16 <IP像>ホウレンソウ表、ホウレンソウ
裏、ネギ新鮮、ネギやや黄変

考 察

白菜：上部 1/3 にヨウ素、セシウムと思われる汚染多し。内側第 4 葉までも汚染は広がっており、外葉の除去だけでは対応できない汚染と考えられる。

ブロッコリー：花蕾（上部）部分に汚染が集中、茎には汚染が少ない。

ニラ：葉身全体にわたって分布。葉頂と根の部分がやや高い。

水菜：スポット状の汚染多数。汚染部分の視覚的変化（ススの付着等）は認められなかった。

ホウレンソウ：表面より裏面の方が汚染は少なかった。

ネギ：黄変ネギにのみスポット状の汚染が確認された。＜東大グループから報告されている「汚染の程度は新葉<古葉」と一致する結果となったが、サンプル数が少ないため、気孔の影響か皺の影響か、はたまた偶々か判断がつかず、更なる検討が必要と思われる。

4-1-2 汚染したホウレンソウ 1 株の放射能分布(T 大)

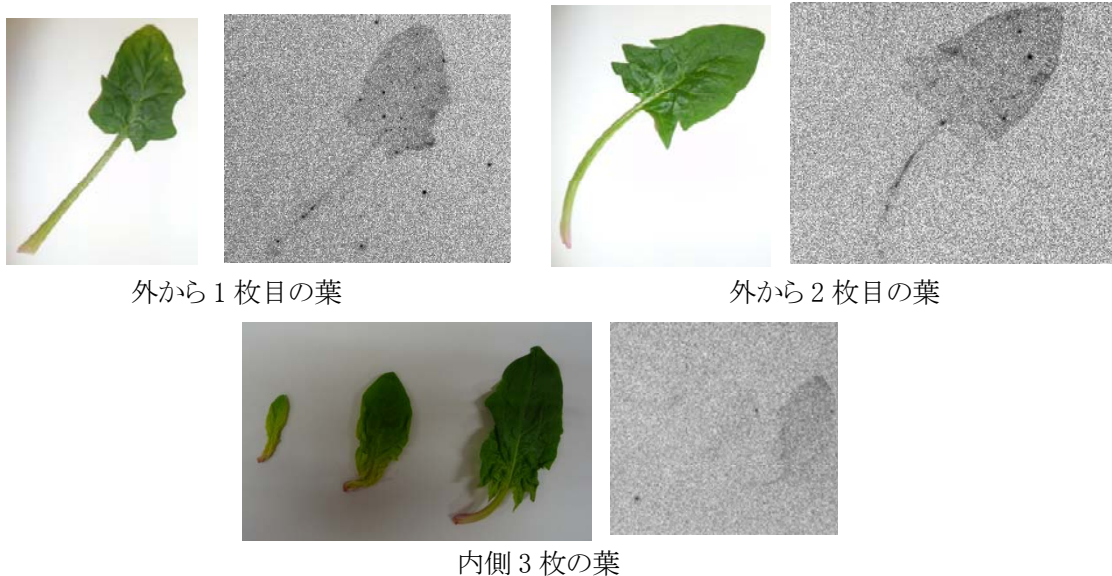


図-17 水洗浄後の葉の IP 画像

考 察

・IP 画像上のホットスポットが出来ている箇所を詳細に観察した結果、しわや筋の中に土や埃が入り込んでいたり、葉の表面に傷が付いていたりする箇所が殆どであった。

・原発から放射性物質が放出された時点で既に一定レベルまで成長していたホウレンソウについては、産地や個体によらず、株の内側の葉ほど汚染が少ない傾向がみられた。

4-2 走査型電子顕微鏡(SEM)による放射性物質の付着状態

1) ホウレンソウの観察

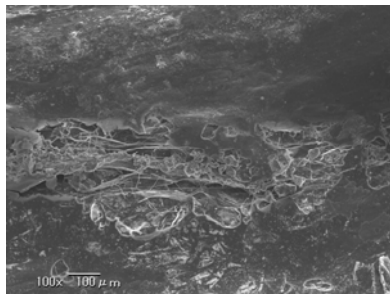
IP 画像上で強いシグナルの部分を取り出し SEM で観察し元素分析を行った。元素分析は写真中央より少し左上の楕円状のものを解析した。

表-19 野菜の付着物の元素組成

| 元 素(w/v%) | | | | | | | | | |
|-----------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| C | O | Na | Mg | Al | Si | Cl | K | Ca | Fe |
| 44.5 | 35.8 | 0.24 | 0.34 | 2.91 | 6.34 | 2.15 | 6.79 | 0.32 | 0.52 |

結果および考察:

元素分析の結果を上にも示したが、C および O はホウレンソウ由来である。Si および Al の含有が多いので土壌が大半である可能性が高い。今回の解析では放射能を有する部位の特定が難しく観察している部位が本当に放射能を有するかは不明である。今後は放射能を有する部位を特定し、その部分を解析していきたい。



付着物がホウレンソウの内部に浸入している。

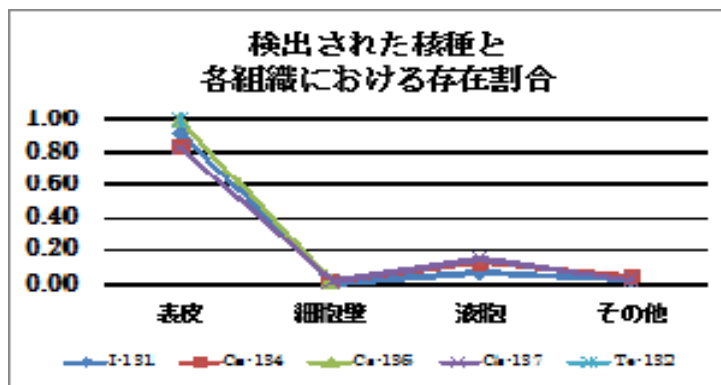
今後の方針:

SEM による元素分析を進め、付着物の組成や、由来を突き止めることで効果的な除染法の開発につとめる。また今回有望であった、どろシャワー法を追試し有効性を確認。

図-18 採取後、時間が経ち乾燥が進んだ
ホウレンソウの SEM 画像。

4-3 野菜の葉の各組織の放射能分布測定 (T 大)

(¹³¹I:373Bq/kg, ¹³⁴Cs:112Bq/kg, ¹³⁷Cs:131 Bq/kg)



考 察:

・原発から放射性物質が放出された時点で既に一定レベルまで成長していたホウレンソウについて、検出された全ての核種の 80%以上は表皮細胞に存在していた。

5. 根からの放射性物質の吸収(O 大)

1) 汚染ホウレンソウの根の部分のみを雨水に浸して、根から ¹³¹I の吸収があるかどうかを調べる。

1L ビーカーに雨水 200ml を入れホウレンソウの根の部分のみが浸るように入れる(写真参照)。

8h、24、48、72h 経過後にホウレンソウを取り出し、根の部分をきった後に標準プロトコルで水洗いする。

測定:

イメージングアナライザーによるIP画像
Ge 半導体検出器による測定(24h サンプル)
ガンマカウンタによる測定

結果:

上記3つの方法による計測では ^{131}I は検出されなかった。

考察:

本実験は出荷された国産のホウレンソウを用いているので十分生育している。正確にヨウ素核種の根からの吸収を調べるためには未成熟の状態(可能であれば種から)のホウレンソウを用いて実験する必要があるが一ヶ月位の期間を要するので今回は実施していない。なおGe測定では極微量(1Bq/g以下)のCsが検出された。



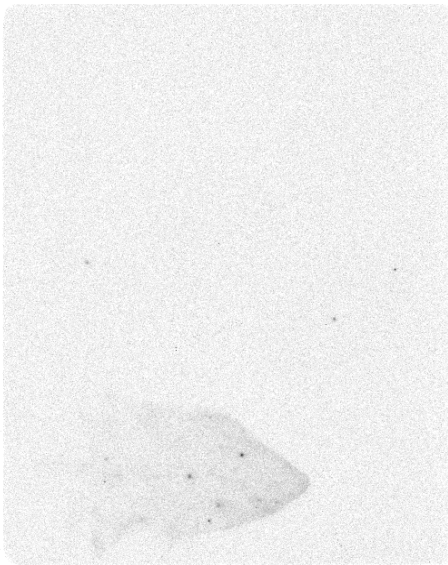
図-20

2) ホウレンソウ全体を雨水に浸けた実験

1Lのビーカーにホウレンソウを入れ、全体が浸るまで雨水を入れ放置する。18h後に標準プロトコルにより洗浄する。

測定: イメージングアナライザーによるIP画像(24h露光)

結果: 雨水によるものと思われるシグナルが観察された。



① 非汚染ホウレンソウ

② 雨水に浸したホウレンソウ
(2葉)

③ 汚染したホウレンソウ

図-21

考察:

スポット状にシグナルが観察されたが、これらは葉の損傷部分(キズ、虫くい)からの放射性物質の浸入であると考えられる。

6, まとめ

1. 水洗浄だけの場合、個々の野菜により除去率にバラツキ (I-131 (12~50%)、Cs-137 (32~70%)) が見られた。
2. 水洗浄だけの場合、I-131 の除去率 (%) が他の核種 (Cs-137 , Cs-134, Te-132 等) に比べ低かった。
3. 物理学的工夫 (熱湯、超音波等) では、除染効果を上げることは難しいと考えられた。
4. だろ水によるシャワー洗浄による除染は例数は少ないが除染効果の向上が期待できる。
5. 化学的工夫による洗浄では、酸、アルカリ、塩、アルコール等による除去率の向上は見られなかった。
6. 食用洗剤は、模擬汚染ホウレンソウでは除染率が向上したが、実際の汚染ホウレンソウでは水洗浄とあまり差は見られなかった。今後、さらに検討する必要がある。
7. ヨウ化カリウムは I-131 の除去率が水洗浄に比べて高くなった。
8. 食品中に使用される還元剤の I-131 の除染効果を調べた結果、いずれの還元剤も除染効果があると思われた。特に、1%二亜硫酸ナトリウムや1%チオ硫酸ナトリウムは水洗浄と合わせると I-131 で除去率がそれぞれ約78%と約72%と高い値を示した。
9. 還元剤による洗浄では、還元剤の濃度が高いほどまた浸しておく時間が長いほど、除去率は高くなるが、野菜の鮮度が落ちる。そのため、低濃度及び短時間での除去率と鮮度の検討が必要である。
10. 野菜の葉の放射能汚染にはスポット汚染と面汚染の2種類がある。洗浄前と洗浄後の IP 画像を見る限り、除染のしやすさは汚染の種類により、違いは無いようである。今後さらなる詳細な解析が必要である。
11. 野菜の葉の汚染は葉の裏側より、表側のほうが汚染が多かった。また、ホウレンソウ1束の場合、内側の葉の方が外側の葉より汚染が少なかった。野菜の茎には汚染が少なかった。
以上のことから、放射能汚染は野菜が放射性物質を吸収したものではなく、空気中に存在する放射性物質が付着したものである。
12. 葉を分画し、各組織の放射能を測定した結果、ほとんどの放射能は葉の表皮に存在していた。
11. 走査型電子顕微鏡の観察の結果、小さい粒の土が野菜の線維に絡まっているのが観察された。これは放射性物質が付着した土とは限らないが、今後汚染した土壌で栽培した場合、土壌由来の汚染した土が野菜に除染し難い形で付着する可能性が高いことを示している。

以上が、これまでの結果のまとめであるが、野菜の放射能汚染はその汚染部位の状態、例えば、キズの部分、枯れた部分に汚染した場合、IP 画像から除染は難しくなると思われる。野菜の出荷を考える場合、野菜の傷んだ部分を丁寧に取り除くことが大事になると考えられる。