

# 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・セシウム安全対策アドホック委員会  
野菜分析班

1

## 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)  
楢垣 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

楢垣 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)  
入倉奈美子、坂口由紀子 (徳島大学アイソトープ総合センター)  
北村 陽二、小阪 孝史 (金沢大学 学際科学実験センター)

2

## はじめに

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。

そこで、放射性ヨウ素・セシウム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。

3

## 検討項目

- 1) イメージングによる野菜に付着した放射性物質の付着部位や状態の視覚的検討。
  - ・ イメージングプレート(IP)画像による放射能分布
  - ・ 走査型電子顕微鏡(SEM)による放射性物質の付着状態
- 2) 野菜に付着している放射性物質の物理的な除去法の検討
  - ・ 流水や温湯での洗浄
  - ・ 超音波洗浄
  - ・ シャワー洗浄
- 3) 野菜に付着した放射性物質の化学的な除去法の検討
  - ・ 洗剤
  - ・ 酸・アルカリ・塩類
  - ・ 還元剤(次亜塩素酸ナトリウム、亜硫酸ナトリウム、二亜硫酸ナトリウム、チオ硫酸ナトリウム、アスコルビン酸)

4

## 1. 基本的な洗浄及び測定手順

### (1) 測定 1 (洗浄前)

- ・ Ge半導体検出器、GM& NaIサーベイメータ
- ・ イメージングプレート&イメージング解析装置

### (2) 前洗浄1 (除去操作前)

- ・ 10分間水中に浸す。
- ・ 流水下、手で葉をこすりながら、5分間洗浄する。
- ・ 根の部分を切り落とし、葉をバラバラにする。

### (3) 除去操作

- ・ 葉をそれぞれの条件の液に浸す。
- ・ 流水下、手で葉をこすりながら、5分間洗浄する。
- ・ 再び流水で洗った後、水を切る。

5

## 1-2 基本的な測定手順

by 金沢大学

### (4) 測定 2 (除去操作後)

#### 1) Ge半導体検出器

- ・ 検出器からの  
距離及び位置
- ・ 逆向きに配置して  
再度測定



#### 2) GM&NaIサーベイメータ

- ・ 検出器の口径に合わせて、  
野菜を置く
- ・ 4方向に置き直し、  
測定する(計4回測定)



6

## 送られてきた汚染野菜

- 1) 2011年3月28日(月)  
送り主: 日本環境調査研究所 泉 様
- 2) 2011年3月30日(水)  
送り主: 榎本 先生
- 3) 2011年3月30日(水)  
送り主: イング(株) 森 様
- 4) 2011年3月30日(水)  
送り主: 日本RI協会 ニツ川 様
- 5) 2011年4月9日(土)  
送り主: アロカ(株) 志手 様

7

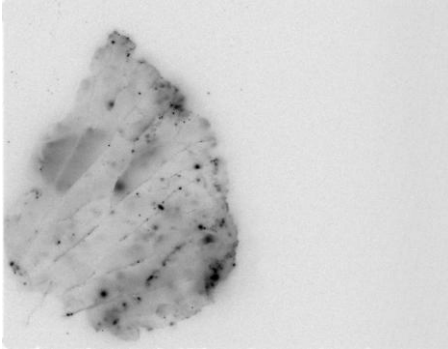
- 1) 野菜に付着した放射性物質の  
分布状態の視覚的検討。

8

## イメージングプレート(IP)画像による放射能分布

by 金沢大学

汚染キャベツ 1,000 cpm 福島市南相馬市馬事公苑 採取日: 3月23日



汚染キャベツ 石川県産キャベツ

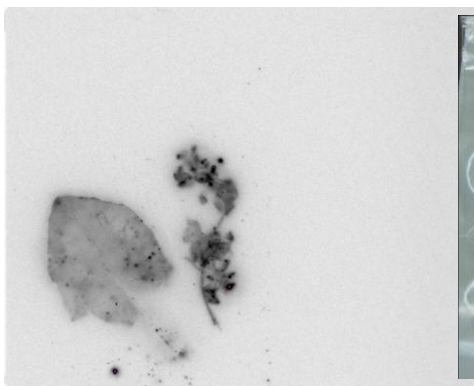
汚染キャベツ 石川県産キャベツ

曝露時間: 20時間 イメージングプレート: BAS-SR2025  
BAS-5000: 解像度 100 $\mu$ m

9

・ ホウレンソウ 2,000 cpm 福島市南相馬市馬事公苑 採取日: 3月23日

by 金沢大学



ほうれん草(No.6) 小松菜(対照)

ほうれん草(No.6) 小松菜(対照)

曝露時間: 20時間 イメージングプレート: BAS-SR2025  
BAS-5000: 解像度 100 $\mu$ m

10

**千んげん菜 150 cpm 宮城県角田市内 採取日: 3月24日**  
by 金沢大学




汚染千んげんサイ 千んげんサイ(対照) 汚染千んげんサイ 千んげんサイ(対照)


曝露時間: 20時間 イメージングプレート: BAS-SR2025  
BAS-5000: 解像度 100μm

11


**試料: 白菜 (GM800cpm)、フロッコリー (GM200cpm)、ニラ (GM200cpm)、  
水菜 (GM250cpm)、ハウレンソウ (GM300cpm)、ネギ (GM200cpm)**  
by 徳島大学

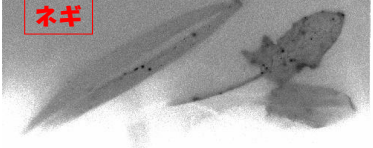


**白菜2葉**




**白菜4葉**





**ネギ**

**表**  
**裏**



**ハウレンソウ**

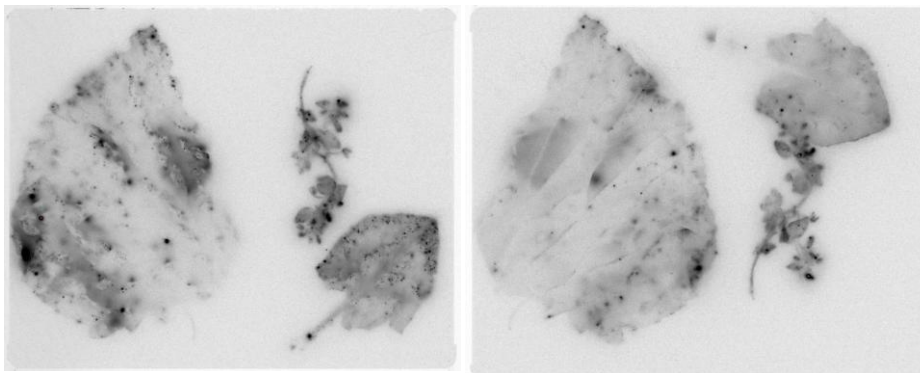
12

## 汚染野菜の葉の表側と裏側の像

by 金沢大学

葉の表側

葉の裏側

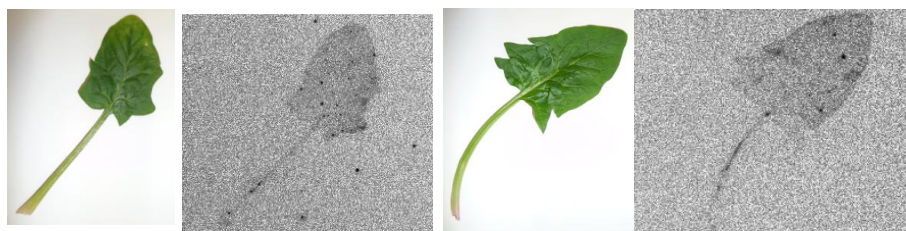


曝露時間:20時間    イメージプレート:BAS-SR2025  
BAS-5000: 解像度 100 $\mu$ m

13

## 汚染したホウレンソウ1株の放射能分布

by 東京大学



外から1枚目の葉

外から2枚目の葉



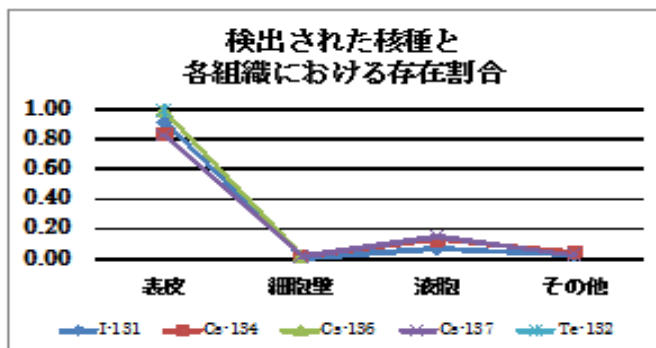
内側3枚の葉

14



## 野菜の葉の各組織の放射能分布測定

by 東京大学

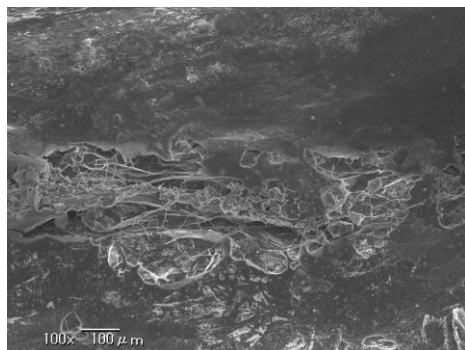


汚染野菜の放射能の80%以上が表皮細胞に存在していた

15

## 走査型電子顕微鏡 (SEM)による放射性物質の付着状態

by 大阪大学



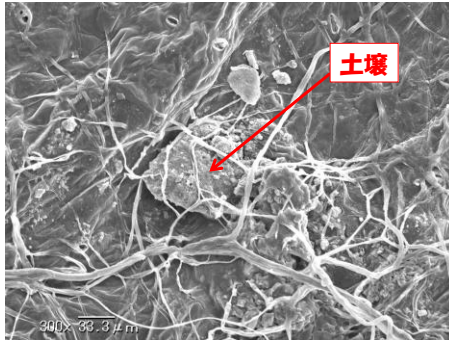
採取後、時間が経ち乾燥が進んだホウレンソウのSEM画像。付着物がホウレンソウの内部に浸入している。採取後、時間が経過するにつれて、放射性物質の除去は困難になる可能性がある。

16



## 走査型電子顕微鏡 (SEM)による 放射性物質の付着状態

by 大阪大学



ホウレンソウ由来の繊維状のものに土壌がからまっている。成長途中でからまって行くと考えられるので汚染土壌で栽培した場合には放射能を含んだ土壌を除去するのは難しいかもしれない。

17

## 汚染野菜の放射能分布のまとめ

1. 汚染には2種類ある。
  - ・ スポット汚染： 粒子状浮遊物がついた物  
(特に：傷やしわなどに付着している)
  - ・ 面汚染 : 雨に溶けた物
2. 葉の表と裏でかなり汚染分布が違う。
  - ・ 葉の表のほうが汚染が多い。
3. 野菜1株では内側の葉ほど汚染が少ない。
4. 放射能の80%以上が葉の表皮細胞に存在。
5. 採取後、なるべく早く洗浄した方が除染しやすい可能性が高い。

18

## 2) 汚染野菜に付着している 放射性物質の除去法 (物理的方法)

19

### ○ 水洗浄による放射能除去効果

#### ホウレンソウ

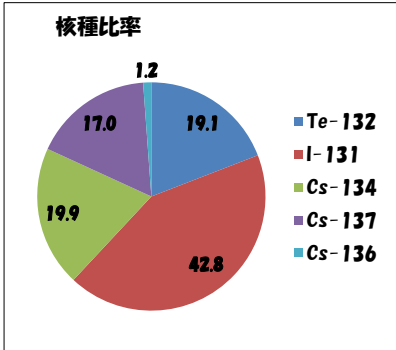
	除去率(%)				除去率(%)		
	I-131	Cs-137			I-131	Cs-137	
1	50	70	高工ネ研	8	41	60	金沢大学
2	26	71	徳島大学	9	39	69	金沢大学
3	45	57	静岡大学	10	32	54	金沢大学
4	45	61	静岡大学	11	12	51	金沢大学
5	20	39	静岡大学	12	22	61	金沢大学
6	23	32	徳島大学	13	33	53	金沢大学
7	37	67	金沢大学		33	57	平均

20

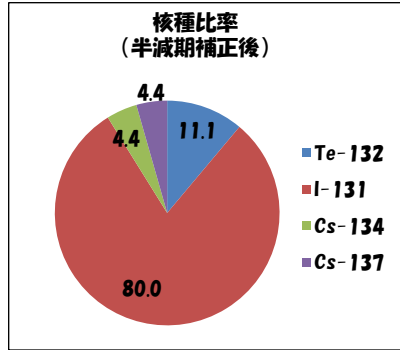
## ハウレンソウの水洗浄前後の放射性核種比率

送り主: 日本環境調査研究所(3月28日) by 金沢大学  
 3月23日 福島市南相馬市馬事公苑

水洗浄前



水洗浄後

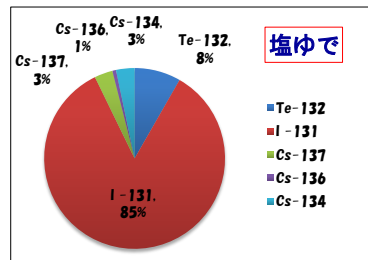
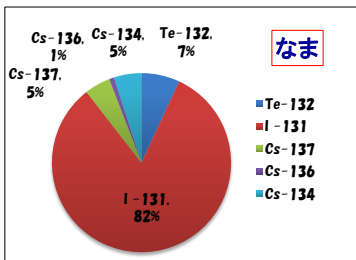


21

## ○ 塩ゆでの放射能除去効果

by 高工ネ研

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



JRSM6月シンポジウム20110623-24

22

## ○ どろ水シャワーによる放射能除去効果

by 大阪大学

### (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（どろ水）：300 mlのどろを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回上澄みど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後、GMサーベイメータで測定する。

	除去率(%)
A液	53
B液	71

## ○ 超音波洗浄(10分間)による放射能除去効果

25℃の水の浸け洗いとほとんど変わらなかった。(除去率:約30%)

JRSM6月シンポジウム20110623-24

23

## 汚染野菜の放射能除去（物理的方法）のまとめ

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%））が大きい。
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、放射能除去効果を上げることは難しいと考えられた。
4. どろ水を使ったシャワー洗浄により、放射能除去効果が向上した。

24

### 3) 汚染野菜に付着している 放射性物質の除去法 (化学的方法)

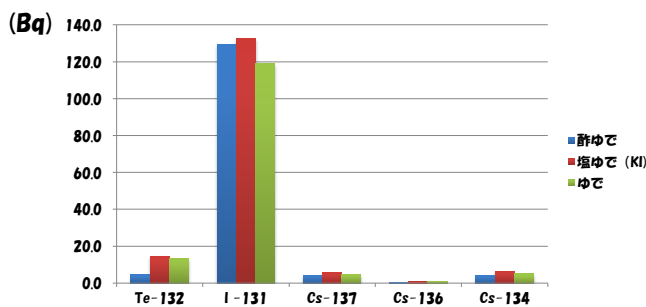
25

### 酢、食塩の放射能除去効果

ホウレンソウ

by 高工ネ研

酢酸(0.7 w%)、塩(NaCl 1.0 w%, KI 0.13w%)



26

## クエン酸、重曹及びエタノールの放射能除去効果

by 金沢大学

① 1%クエン酸、② 1%重曹、③ 25%エタノール、④ 蒸留水

### 洗浄方法

1. 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。
2. 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。
3. 1. と同じ条件で洗浄する。

	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

27

## 放射性ヨウ素の化学形

米国スリーマイル島2号原子炉TMI-2事故時に、廃棄フィルター上流側で分析された排気中のヨウ素の種類

ヨウ素	濃度(mBq/cm <sup>3</sup> )	非粒子状の割合(%)
I <sub>2</sub>	2.5	35
HOI	1.8	25
CH <sub>3</sub> I	2.9	40
粒子状ヨウ素	2.7	-

28

## 還元剤による放射能除去効果

by 徳島大学、静岡大学

### ○ 還元剤の濃度と放射能除去効果

- ・ 次亜硫酸ナトリウム( $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ ) 1.2 wt%, 10 wt%

	洗浄直後	2日間静置
次亜硫酸ナトリウム濃度		
1.2 wt%	—	75%
10 wt%	4%	50%

- ・ 亜硫酸ナトリウム( $\text{Na}_2\text{SO}_3$ ) 1.0 wt%, 2.5 wt%

	20時間静置	
亜硫酸ナトリウム濃度	I-131	Cs-137
1.0 wt%	17%	25%
2.5 wt%	44%	39%

29

### ○ 還元剤の種類と放射能除去効果

by 金沢大学

## ホウレンソウ

#### 還元剤の種類

- ① 1% 千才硫酸ナトリウム( $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ )
- 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( $\text{Na}_2\text{SO}_3$ )
- 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。

30



**Ge半導体検出器の測定結果(1束)**

還元剤の種類	核種	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 (%)
① 1%チオ硫酸ナトリウム	I-131	41	53	72
	Cs-137	60	51	80
② 1%次亜硫酸ナトリウム	I-131	39	44	66
	Cs-137	69	32	79
③ 1%二亜硫酸ナトリウム	I-131	32	68	78
	Cs-137	57	66	85
④ 1%亜硫酸ナトリウム	I-131	12	64	69
	Cs-137	51	62	81
⑤ 1%アスコルビン酸	I-131	22	57	67
	Cs-137	61	49	80
⑥ 蒸留水	I-131	33	23	49
	Cs-137	53	32	68

31

**IP画像による、還元剤効果の視覚的検討**

**1%二亜硫酸ナトリウムの効果**

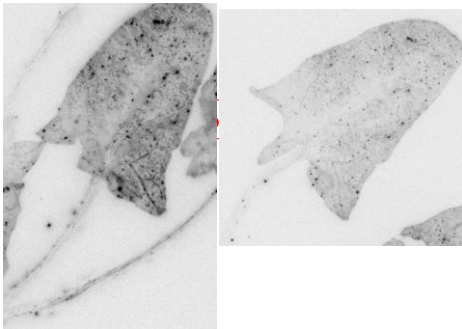
除去率: 75%

水洗浄前

1900 cpm

還元剤処置後

480 cpm



**1%アスコルビン酸の効果**

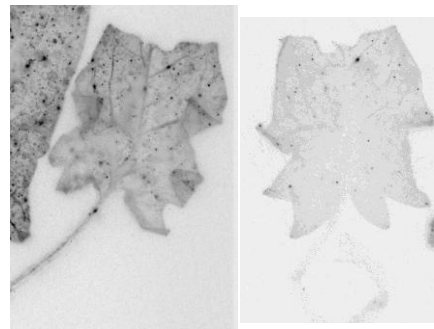
除去率: 82%

水洗浄前

965 cpm

還元剤処置後

175 cpm



IP画像 (12時間 曝露)

32

## 汚染野菜の放射能除去（化学的方法）のまとめ

1. 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。
2. 食用洗剤は、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。
3. 還元剤により、 $I-131$ の放射能除去が高くなった。特に、二亜硫酸ナトリウムで約78%の除去率を示した（水：49%）。また、安全性・汎用性から考えるとアスコルビン酸も有力である。
4. 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。

33

## 実験結果のまとめ

1. 汚染には2種類ある。（スポット汚染、面汚染）
2. 葉の表側の表面に多くの放射性物質が付着している。
3. 採取後、時間経過とともに放射能除去し難くなる可能性がある。
4. 水洗浄だけの場合、個々の野菜により除去率にバラツキが大きい。  
野菜の状態：傷、イタミ、しわ等
5. 水洗浄では $I-131$ の除去が難しい。
6. 食品に使用されている還元剤で $I-131$ の除去ができる可能性がある。  
特に、安全性・汎用性から1%アスコルビン酸が有望である。

34

## 総まとめ&今後の課題

汚染野菜の放射能除去は還元剤により、水洗浄では落ちにくいI-131の除去率を高めることが可能であると考えられた。

しかし、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。

今後、Cs-137の効率的除去法並びに土壌中の放射能を吸収した野菜の除染について検討する必要がある。

35