

## PIXE法を用いた茶葉からのセシウム及びストロンチウムの溶出に関する研究

牛島寛章<sup>1</sup>、寺川貴樹<sup>1</sup>、鳴原健太<sup>2</sup>、細川 響<sup>2</sup>、梶山 愛<sup>1</sup>、長尾理那<sup>1</sup>、

鳴海慶一郎<sup>1</sup>、藤原充啓<sup>2</sup>、佐藤光義<sup>2</sup>、石井慶造<sup>1</sup>、世良耕一郎<sup>3</sup>

<sup>1</sup>東北大学サイクロトロン・RIセンター  
980-8578 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 6-3

<sup>2</sup>東北大学工学研究科  
980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6

<sup>3</sup>岩手医大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

2011年の福島第一原子力発電所事故では<sup>134</sup>Cs、<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Srなどの放射性核種が環境中に放出され、農作物の放射能汚染が問題となった。日本で生産・消費されている清涼飲料水の中で、茶系飲料は多くの割合を占める<sup>1</sup>。世界では、原発建設を進めている中国やインドなどで茶の生産・消費量が多い。原子力災害が発生したとき、茶樹とその生育土壌の汚染は大きな問題となりうるが、放射性Srが土壌から茶葉にどれだけ移行するのか、茶葉から茶（飲料）へどれだけ溶出するかについて調べた研究は少ない。

農作物の汚染経路は主に、大気中の核種が植物の地上部分に直接付着・浸透する経路と、土壌に降り注いだ核種が根から食物に吸い上げられる経路が考えられる。本研究では、核種が土壌から茶樹へ移行する経路について考える。土壌から農作物への元素の移行のしやすさは移行係数で与えられ、一般の植物ではSrのそれはCsよりも大きい<sup>2</sup>。一方、茶葉から茶（飲料）への溶出では、アルカリ金属元素の方がアルカリ土類金属元素より溶出しやすい<sup>3,4</sup>。従って、土壌に降り注いだ放射性Csと放射性Srがあった場合、どちらの核種の方がより多く土壌から茶（飲料）へ移るか分からない。茶の安全性を考えるためには、CsとSrの土壌から茶葉への移行量、茶葉から茶への溶出量を知る必要がある。本研究では、CsとSrの土壌から茶葉への移行と、茶葉から茶（飲料）への溶出についてPIXE法を用いて評価することを目的とする。

### 2 試料と方法

本実験は日本国内で栽培されている茶樹の8割を占める品種であるやぶきた<sup>5</sup>を10本用いた。その内5本の土壌8.5kgにCsとSrを供給するため、Cs<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>を41.7g、SrCO<sub>3</sub>を14.7g混ぜた。以後CsとSrを混ぜた茶樹サンプル系を〇〇Cs、Srとし、混ぜていない茶樹サンプル系を〇〇コントロールと表記する。茶樹は2017年11月にビニールハウス内で栽培し、2日または3日置きに土壌の乾き具合に応じて水やりを行った。栽培開始から30日後に、それぞれの茶樹から3g程度（15枚前後）の茶葉を無作為に採取した。

茶樹による違いを見るため、10本の茶樹から得た生茶葉をそれぞれ独立した系で、つまり実験で比較する2条件として2種類の茶葉に集約するのではなく、10本の茶樹から10種類の乾燥した未使用茶葉を作った。未使用茶葉は生茶葉を純水で2度洗浄し、緑茶葉生産工程を模擬し、電子レンジで1分半加熱、手もみ後80度で3時間かけて乾燥させることでサンプルを作製した。この未使用茶葉を0.50g用いて、90度の純水15.0gで溶出時間1分間とし茶（飲料）を淹れた。出濁は60度で3時間かけて乾燥させた。未使用茶葉と出濁はそれぞれ50.0mgを、茶（飲料）は1mLを試料とし、硝酸1mLと内部標準のIn（1000ppm）を添加し200Wの電子レンジで3分間加熱して硝酸灰化を行った。灰化溶液をバッキングフィルム上に20μL滴下しPIXE用のサンプルとした。

### 3 結果と議論

#### 3.1 土壌から未使用茶葉への移行

未使用茶葉のPIXE分析より得られた各元素濃度を図1に示す。等分散を仮定しないt検定を行ったところ、未使用茶葉Cs、Srと未使用茶葉コントロールとの間でK、Ca、Csに有意な差が見られた。KとCaの濃度はCs、Srの移行前後でそれぞれ6579ppm、6770ppm減少した。Csはコントロールの濃度がNDでありCsを移行させることで115ppmに増加した。一方、RbとSrには有意な差を見ることができなかった。Csの移行係数は0.029であった。未使用茶葉中のSrの濃度にはCs、Srとコントロールで有意な差がなかったが、Srの平均濃度の差をSrの移行と見たとき、Srの濃度増加は5.7ppmで移行係数は0.0057と計算された。

文献値でSrの移行係数は0.1、Csの移行係数は0.01オーダーであり<sup>2</sup>、Srの移行係数が文献値と実験値で大きく乖離した。この理由は炭酸塩の水への溶解度によるものだと考えられる。Cs<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>の溶解度は261g/100mL（20℃）<sup>6</sup>、SrCO<sub>3</sub>の溶解度は0.011g/100mL（18℃）<sup>7</sup>であり、SrCO<sub>3</sub>はCs<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>に比べ水に難溶である。SrCO<sub>3</sub>が水に難溶であるからSrイオンはCsイオンに比べ土壌中に存在しにくい。土壌から植物への元素の移行は、植物が土壌中から水分を主とした養分の吸収によって起こるものであり、この水分中にSrイオンの存在量が少ないことがSrの移行量を減少させる原因となったと考えられる。

#### 3.2 未使用茶葉から茶への溶出

出濁中と茶（飲料）中の各元素の重量合計と未使用茶葉中の各元素重量の重量比を図2に示す。未使用茶葉中の元素は茶を淹れることで一部は茶（飲料）に溶出し、残りが出濁に残ると考えられる。これ以外の流出がない場合、重量比は1となる。グラフのベタ部は出濁中を、斜線部は茶中の割合を表している。試料コントロールのCsについては、いずれのサンプルからもCsが検出されなかったためグラフから除外した。

CaとSrは茶（飲料）部分がほぼ0、出濁部分がほぼ1を示し、アルカリ土類金属元素が茶（飲料）に溶出しにくいことが確認された。Srは、試料Cs、Srについて、出濁に105%の残留、茶（飲料）部分に0.65%が溶出した一方、Csは出濁に含有重量の76%が残留、茶（飲料）部分に12%が溶出した。SrはCsに比べ未使用茶葉から茶（飲料）へ溶け出しにくいことが分かった。

K、Rb、Csの重量比が1になっていない理由は、茶（飲料）中に含まれていた各元素の濃度が小さく、正しく評価できなかった可能性、実験器具の壁面等に付着して減少した可能性などが考えられる。この点を改善することでより正確な溶出率が導き出されることが望まれる。

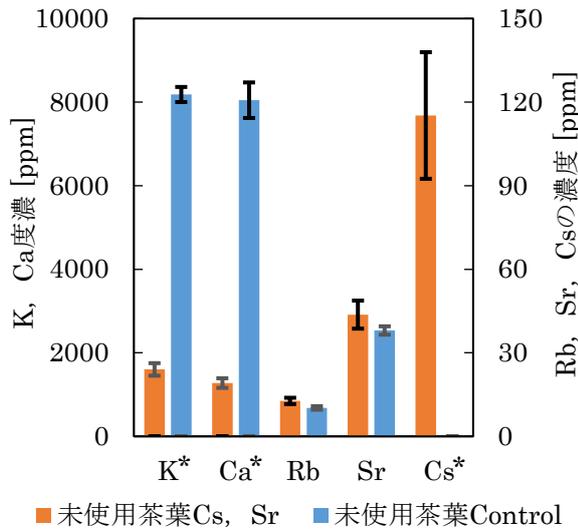


図1 茶葉中の各元素の濃度 (\* $p < 0.01$ )

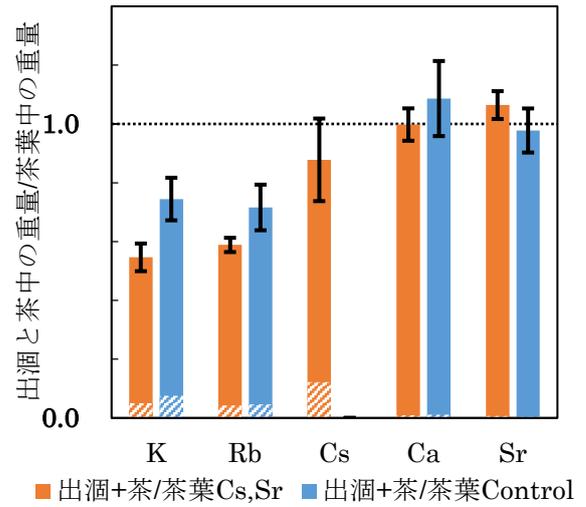


図2 出潤及び茶中の元素と茶葉中の元素の重量比 (ベタ部: 出潤、斜線部: 茶中の割合)

参考文献

- 1) 全国清涼飲料連合会「清涼飲料水品目別生産量推移 (1997年～2016年)」  
<http://www.j-sda.or.jp/statistically-information/stati04.php>.
- 2) 直接沈着及び経根吸収による放射性核種の植物への移行, RADIOISOTOPES, 61, 5 (2012), 267-279, 田上恵子
- 3) 茶の浸出条件と可溶成分との関係, 日本食品工業学会誌, 11, 10 (1964), 429-435, 梶田武俊, 西川郁子, 岸田典子, 長谷川千鶴
- 4) 茶の入れ方と化学成分の溶出量との関係, 茶業研究報告, 55 (1982), 43-50, 下徳敏雄, 市川浩美, 阿南豊正, 高柳博次, 池ヶ谷賢次郎
- 5) 農林水産省「茶をめぐる情勢」  
[http://www.maff.go.jp/j/seisan/tokusan/cha/pdf/cha\\_meguji\\_h2805.pdf](http://www.maff.go.jp/j/seisan/tokusan/cha/pdf/cha_meguji_h2805.pdf).
- 6) Chemical Book「炭酸ジセシウム」  
[http://www.chemicalbook.com/ChemicalProductProperty\\_JP\\_CB3274457.htm](http://www.chemicalbook.com/ChemicalProductProperty_JP_CB3274457.htm).
- 7) International Labour Organization「炭酸ストロンチウム」  
[http://www.ilo.org/dyn/icsc/showcard.display?p\\_lang=ja&p\\_card\\_id=1695](http://www.ilo.org/dyn/icsc/showcard.display?p_lang=ja&p_card_id=1695).

## Study on the elution of cesium and strontium from tea-leaves evaluated using PIXE analyses

H. Ushijima<sup>1</sup>, A. Terakawa<sup>1</sup>, K. Shigihara<sup>2</sup>, H. Hosokawa<sup>2</sup>, A. Kajiyama<sup>1</sup>,  
R. Nagao<sup>1</sup>, K. Narumi<sup>1</sup>, M. Fujiwara<sup>2</sup>, M. Sato<sup>2</sup>, K. Ishii<sup>1</sup> and K. Sera<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Cyclotron and Radioisotope Center, Tohoku University  
6-3 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8578, Japan

<sup>2</sup>Graduate School of Engineering, Tohoku University  
6-6 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8579, Japan

<sup>3</sup>Cyclotron Research Center, Iwate Medical University  
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

### Abstract

In this work we aimed to measure the concentration of cesium and strontium in unused and used tea leaves using a particle-induced X-ray (PIXE) analysis to investigate the elution of these elements in the leaves into green tea. We used the tea leaf samples which were grown in soil with stable cesium and strontium added. The conventional PIXE analyses were performed on the basis of the internal standard method. The amount of cesium elution into green tea was 12% of total cesium weight contained in the tea leaves whereas that of strontium elution was 0.65%. The results of the PIXE analysis suggest that the elution of radioactive cesium into green tea is much lower than cesium.