

図4-1 食塩加標準寒天培地による7kGy照射香辛料の細菌数

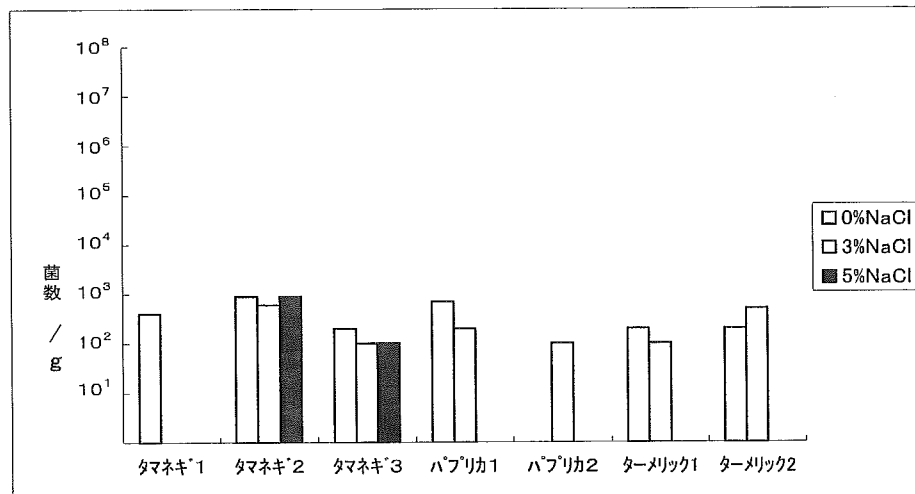
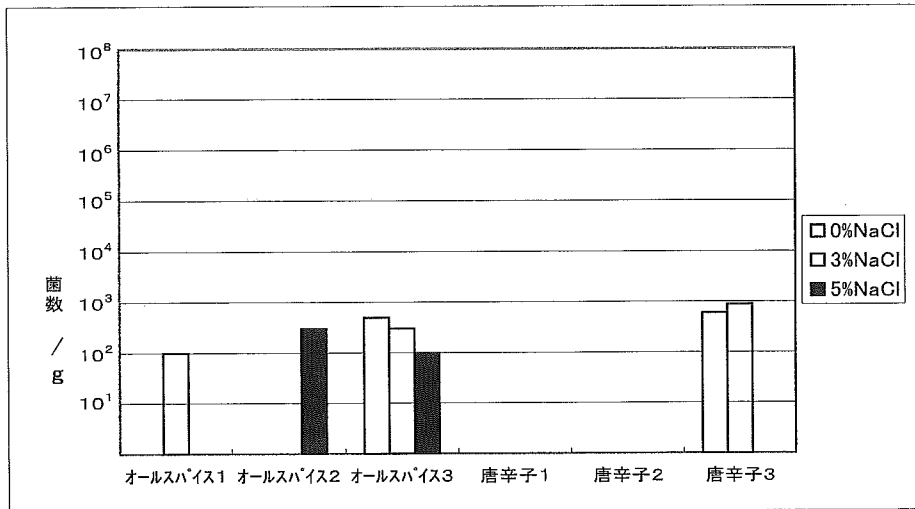
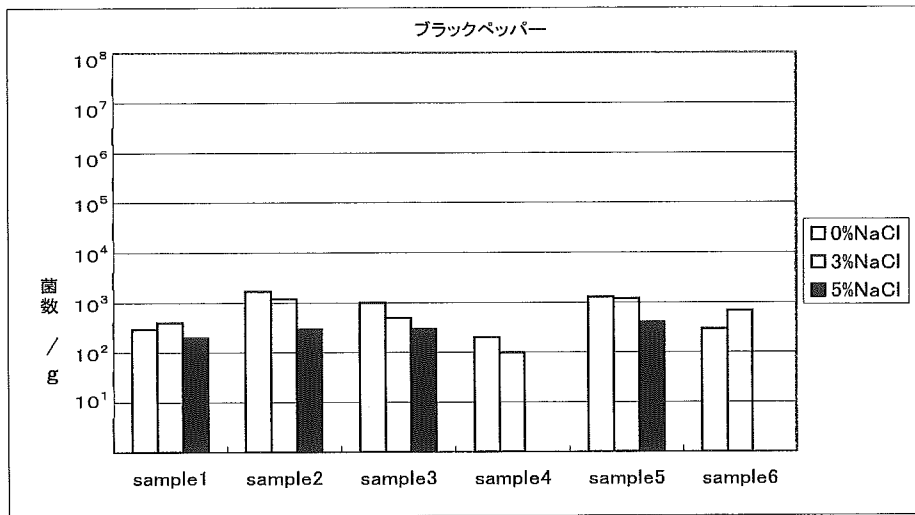


図4-2 食塩加標準寒天培地による7kGy照射香辛料の細菌数

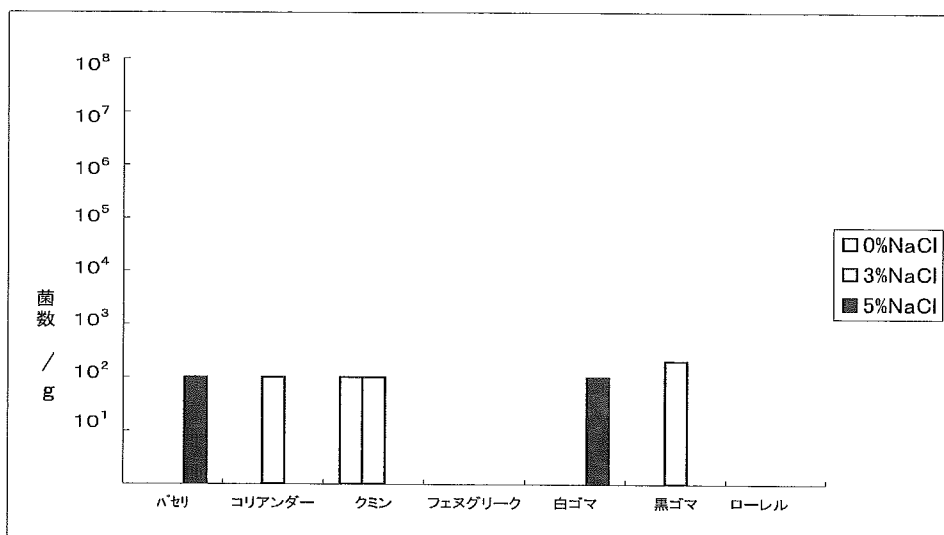
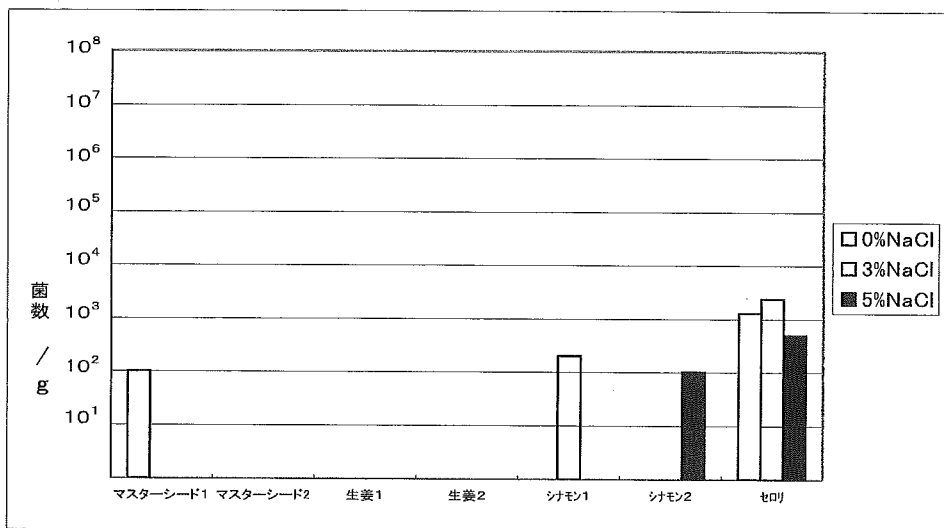
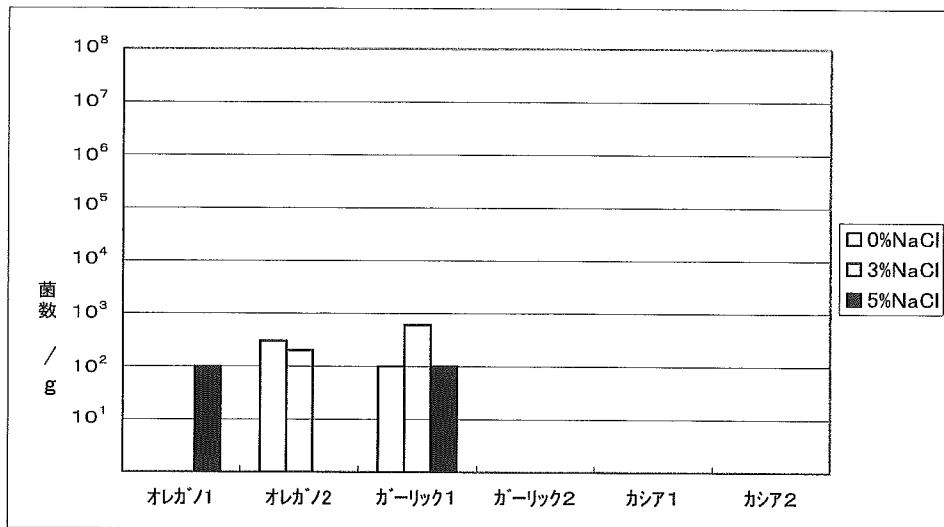


図5-1 食塩加標準寒天培地による10kGy照射香辛料の細菌数

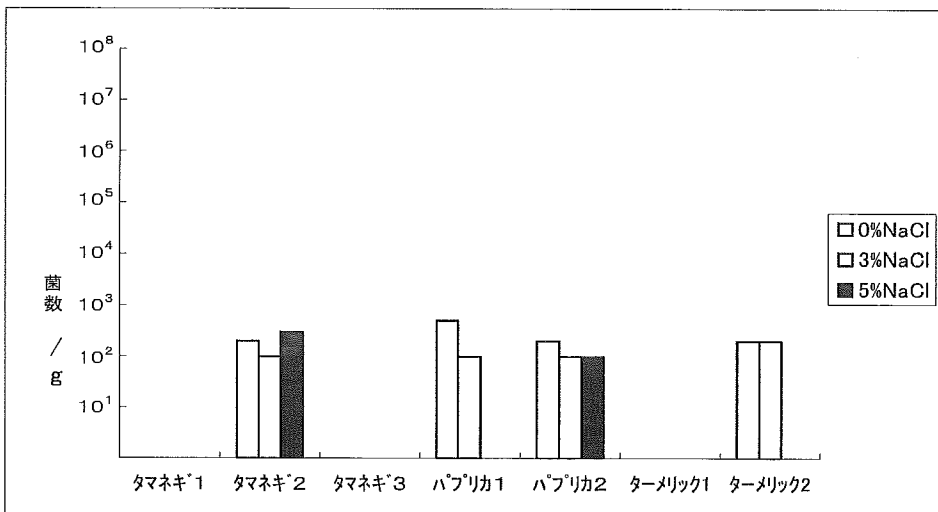
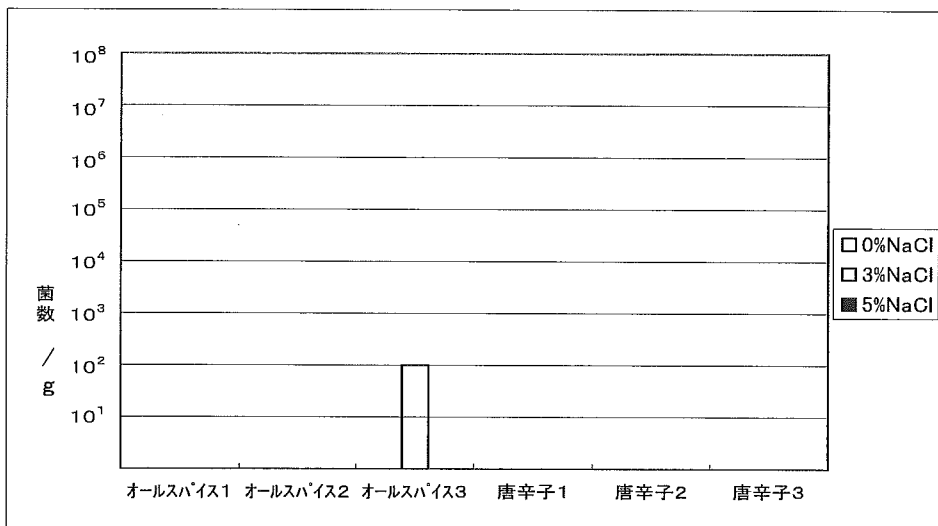
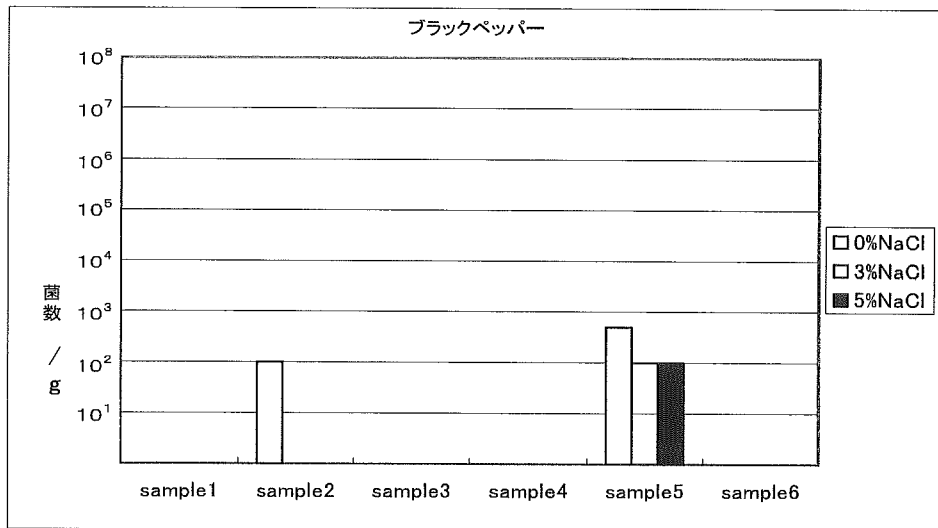


図5-2 食塩加標準寒天培地による10kGy照射香辛料の細菌数

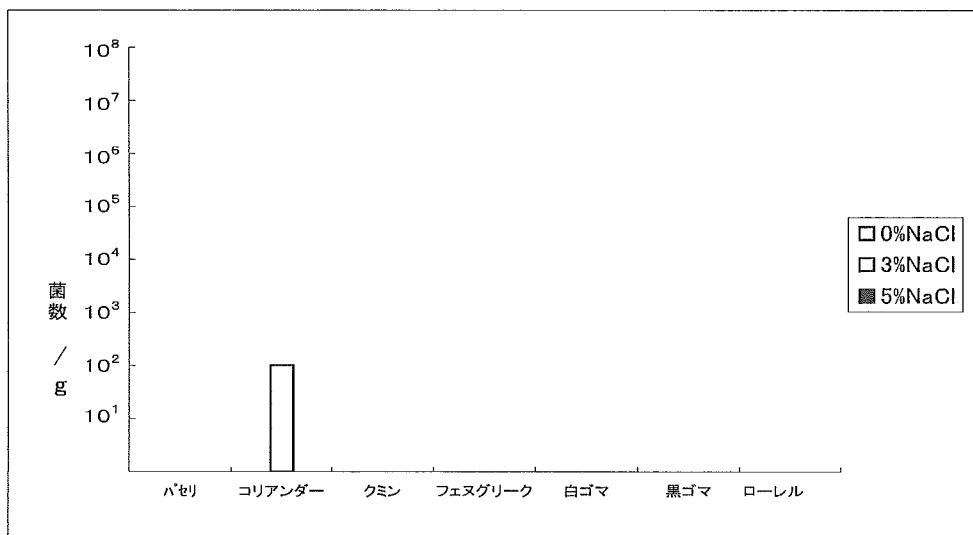
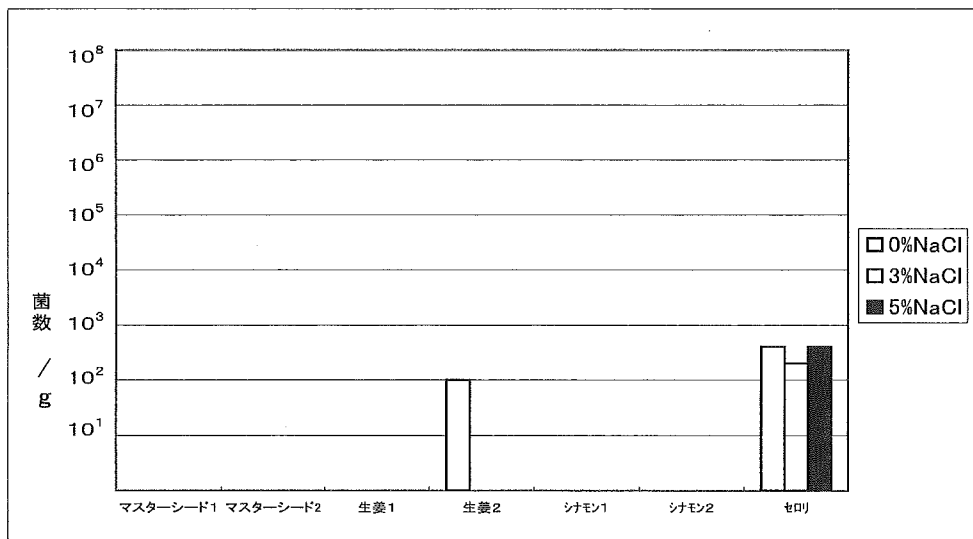
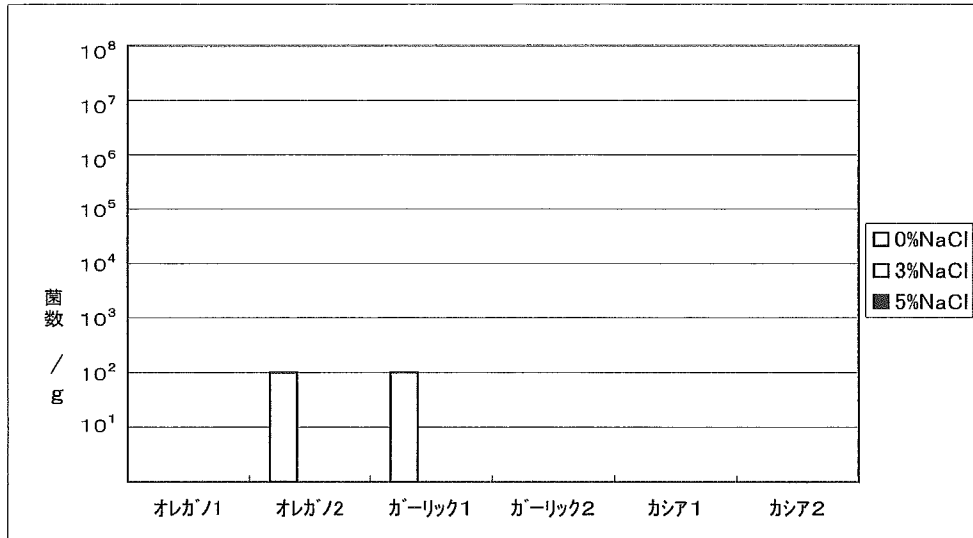


図6-1 香辛料の芽胞数

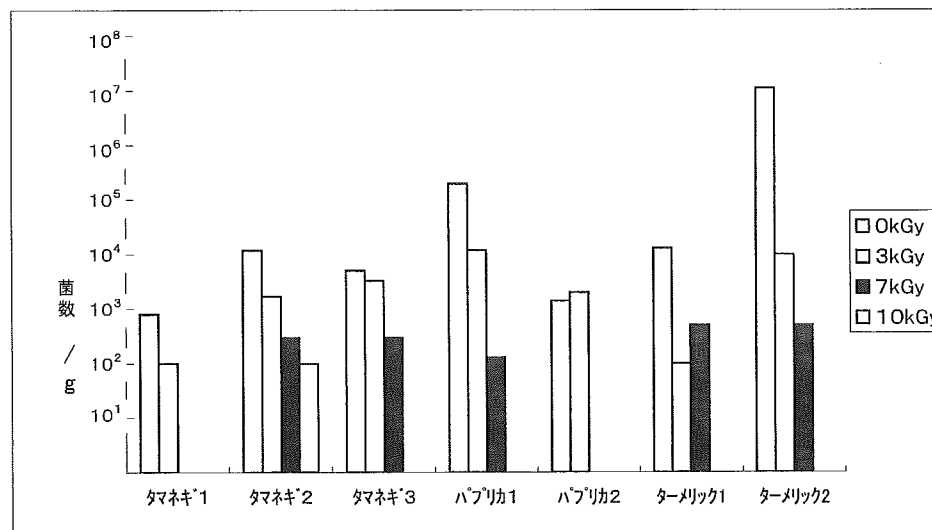
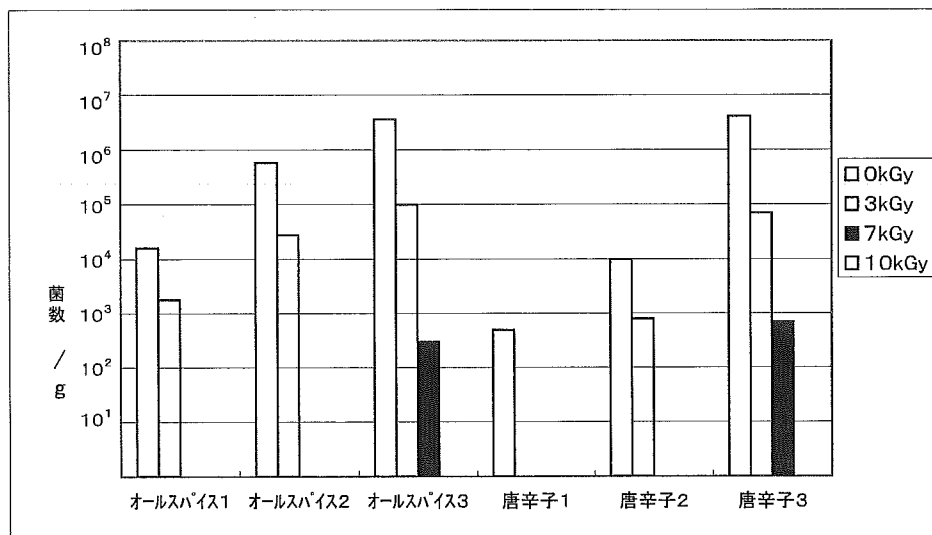
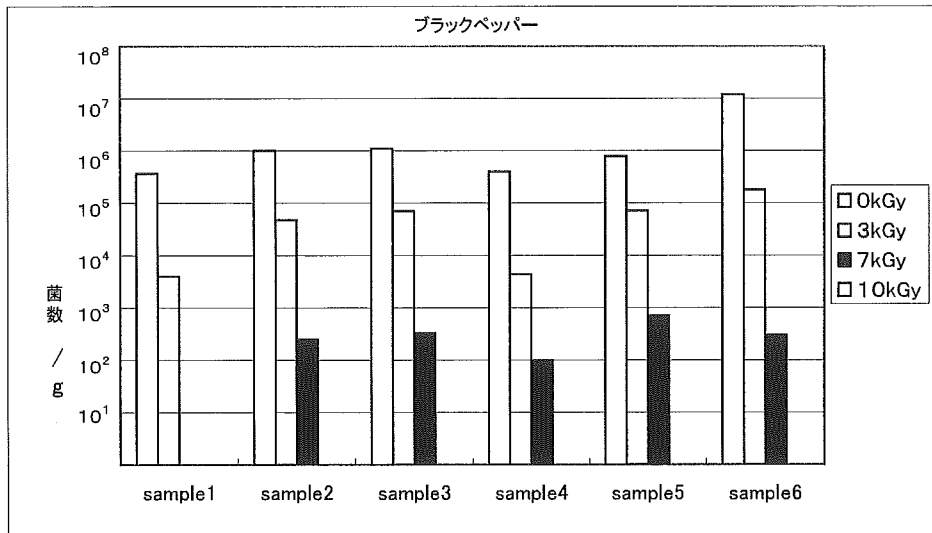


図6-2 香辛料の芽胞数

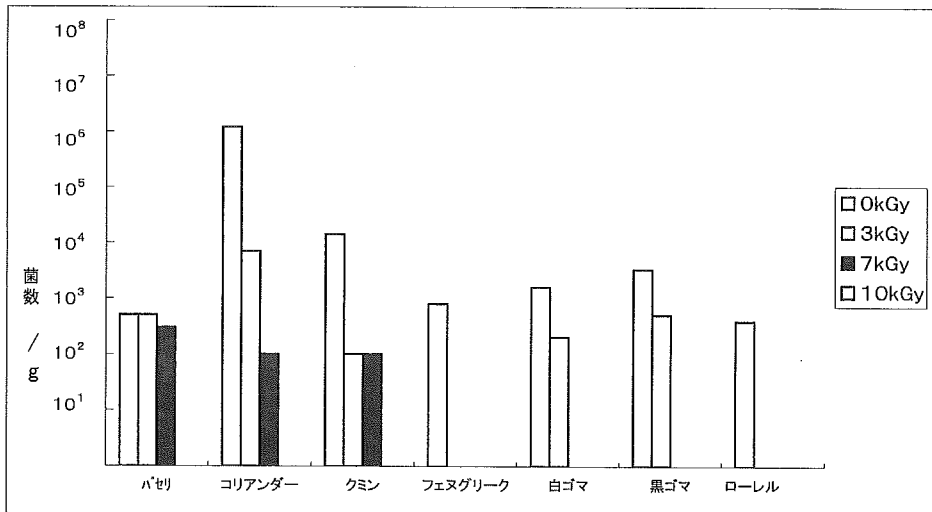
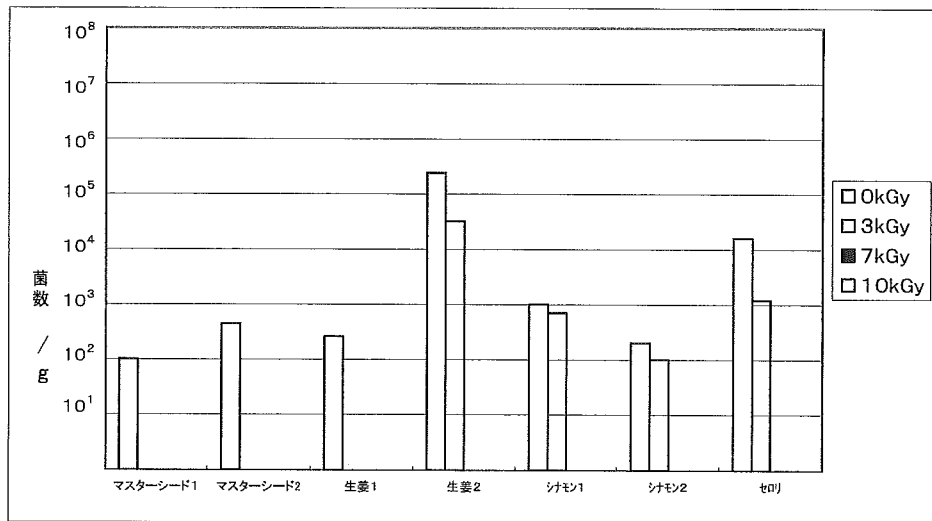
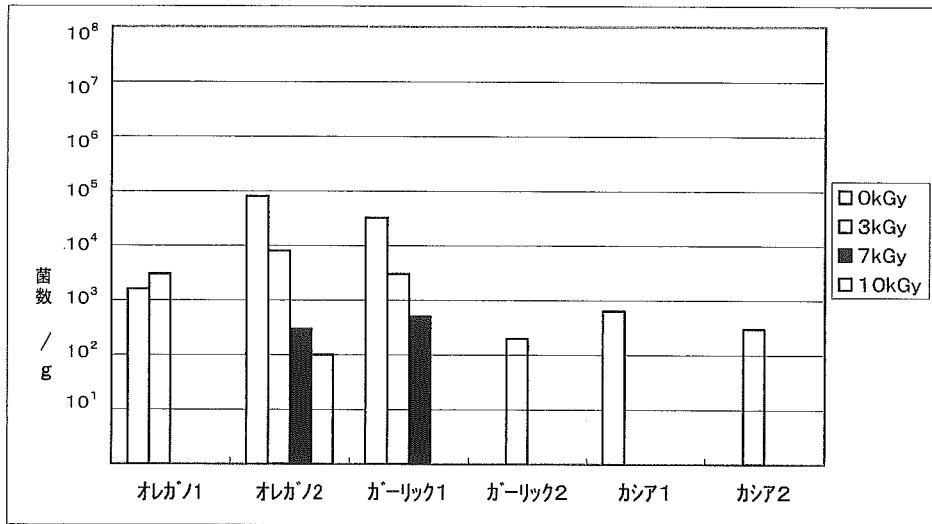


図7-1 香辛料の大腸菌群

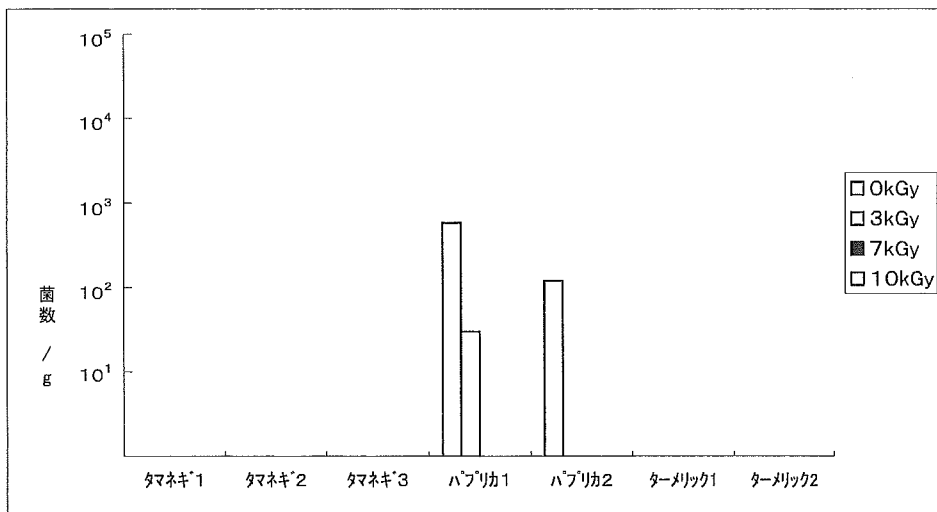
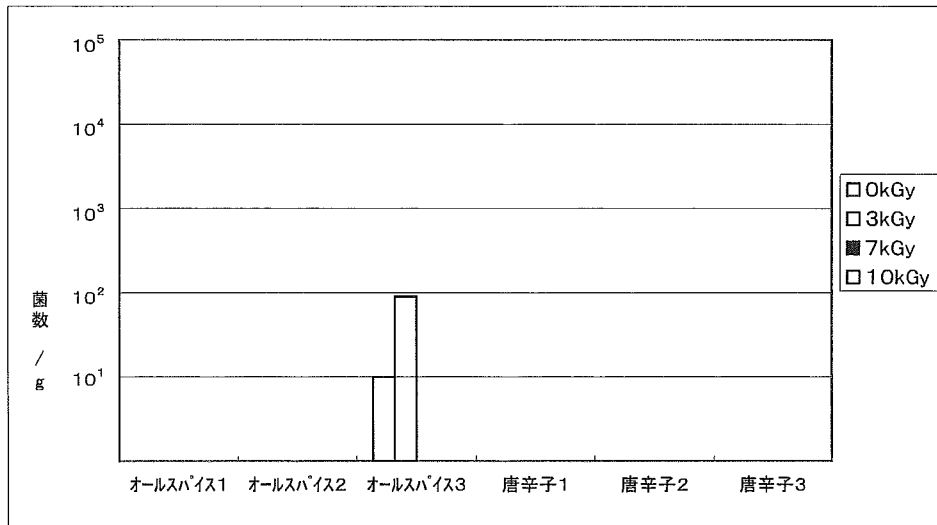
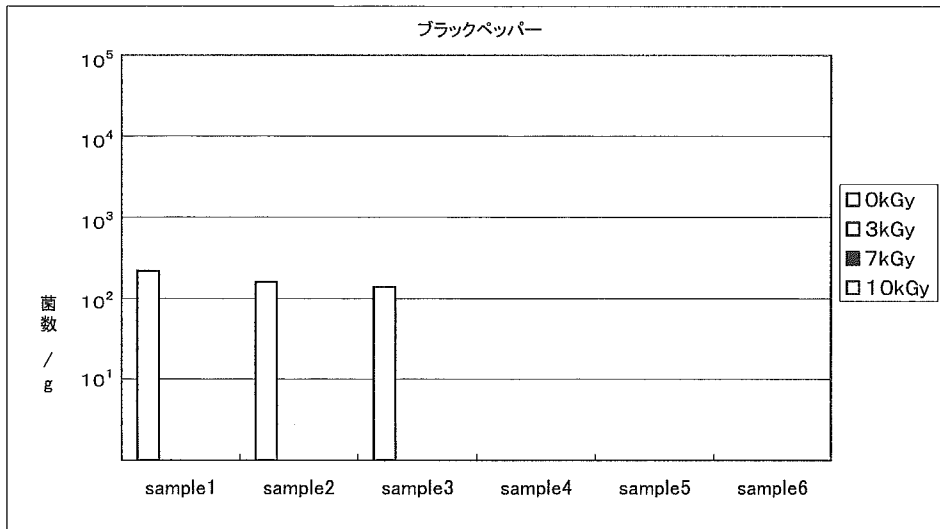
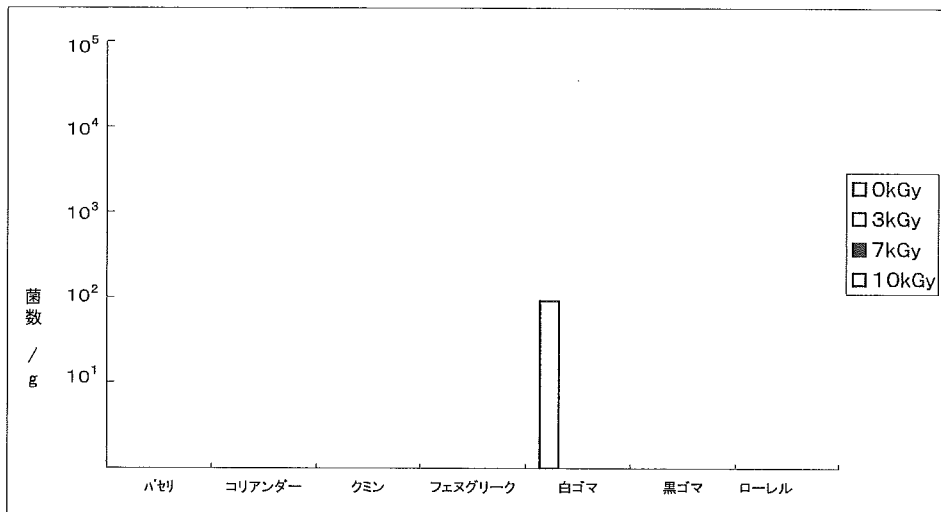
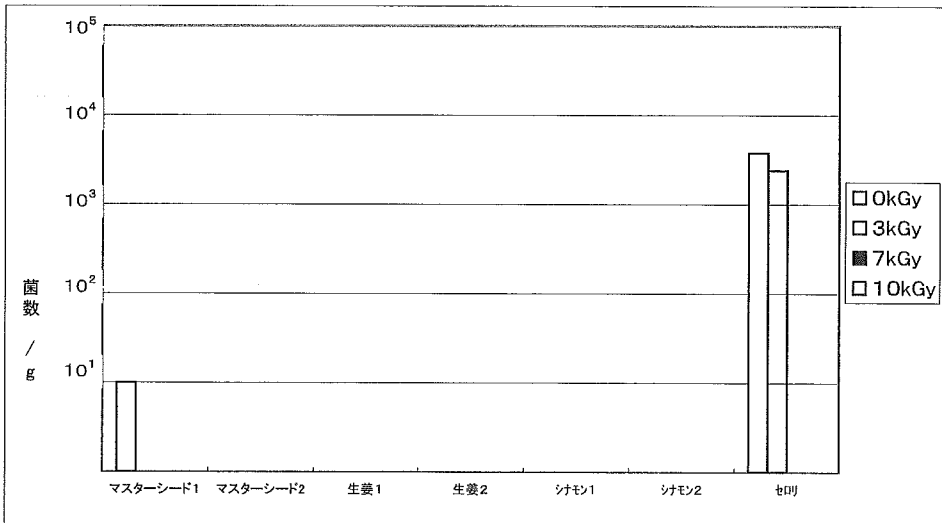
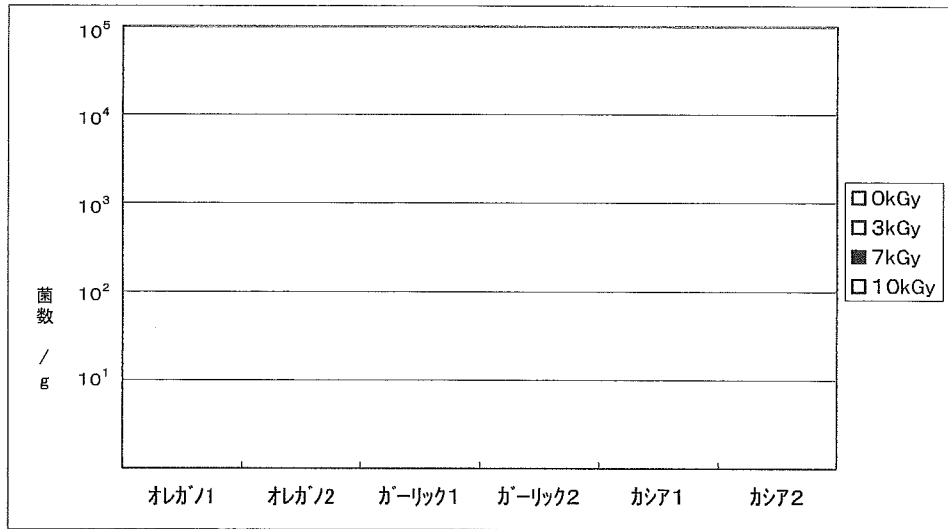


図7-2 香辛料の大腸菌群



照射食品検知のための TL 法に関する研究

分担研究者 後藤 典子 東京都立産業技術研究所 主任研究員

実験協力者 玉 城 恵 東京都立産業技術研究所

実験協力者 村瀬 亜紀子 東京都立産業技術研究所

実験協力者 深井 由美子 東京都立産業技術研究所

実験協力者 江口 美佐子 東京都立産業技術研究所

研究要旨 わが国でも照射食品の検知法が求められている。香辛料など多くの食品に適用でき、判別精度の高い熱ルミネッセンス（TL）法による検査方法を検討した。検体の採取量は通常全粒と呼ばれているもの試料では 100 g とし、粉末試料は 5 g とした。照射試料から分離できる鉍物の発光曲線は一山の単純な形を示すことが一般的であったが、一部には特徴的な形を示す発光曲線もあった。

非照射鉍物を照射黒コショウに添加すると、鉍物を 51～138%回収できたが、回収した鉍物の発光曲線には 190℃付近の発光極大が認められ、照射黒コショウ由来の鉍物も分離された。

照射した TLD 素子（TLD100）を用いて測定に用いる試料皿の形状を検討したが、素材の板厚が厚くなると発光極大の温度がやや高くなり、縁の高さが高くなると TL 発光比にやや差が生じた。試料皿の素材はステンレスまたはアルミニウムとし、板厚は 0.2～0.5mm 程度で、TL 装置の加熱版に密着する大きさが適切であった。照射した TLD100 を用いて、発光極大の温度確認をして使用することを検討した。

数ヶ月の保存期間では、TL 発光比が低下するが、明所に保存したものでも判別できた。また、文献上は数年間、検知できるとされている。

非照射の黒コショウに照射したものを 2～20%混合して、鉍物を分離した。この鉍物の TL 測定をおこなったところ、照射試料を 20%混合した場合は 5 検体すべてに明確な発光極大が認められた。一方、照射試料を 2%混合した場合は 5 検体すべてに発光極大が認められなかった。

照射した試料を加熱処理した場合の影響を 5 kGy 照射した黄砂をモデル鉍物として検討した。TLD100 の発光極大（V）より低いところに発光極大が認められたのは、150℃で 4 分間、180℃で 10 秒間加熱した場合であった。

発光量の標準化のために 1kGy の照射をおこなうが、この照射線量と TL 発光比はおおむね反比例する。標準化の照射線量を 1kGy ± 20%程度に管理が必要がある。黒コショウとターメリックそれぞれに γ 線または電子線を照射した場合、線源にかかわらず発光極大と TL 発光比から照射されたと判別できた。判別の限界を検討した。

A. 研究目的

海外では30数か国で殺菌、芽止め、保存期間の延長などを目的として食品への放射線照射が行われている。現在わが国においてはジャガイモの芽止めのみ放射線の照射が認められているが、そのほかの食品への放射線照射は禁止されている。しかし、平成15年度に東京都が実施した「放射線照射食品探知調査」では熱ルミネセンス法（以下、TL法と記す）によって「放射線の照射が推定された食品」が検出されている¹⁾。市販香辛料のTL法による研究においても「照射の可能性が大なもの」が報告されている²⁾。

一方、旧厚生省に対する要望として、平成12年12月に香辛料協会から、香辛料への放射線照射許可についての要請が出されている。また、平成17年10月に閣議決定された原子力政策大綱において食品照射に対する基本的な考え方が示され、原子力委員会は食品照射専門部会が設置した³⁾。

放射線を照射した香辛料などの食品を一般消費者が判別するのは困難である。わが国のこのような現状においては、照射食品に対する消費者の理解を得るためには、放射線を照射した旨の表示をし、消費者の選択の自由を保障することが必要であろう。照射した旨の表示を確認する方法として、照射食品の判別方法（検知法）が必要である。

EUでは照射食品の検知法として10種類の方法をヨーロッパ標準法^{4~13)}に制定している。このうち、TL法⁸⁾は香辛

料をはじめとする多くの食品に適用でき、判別精度は高い。まず照射食品の検査法として、TL法の確立が望まれるため、TL法の検査手順を決めるのに必要な基礎的データを集め、検査方法を検討した。

B. 研究方法

今回の検討対象は放射線照射許可の要請も出されている香辛料とした。

a, 検討試料（香辛料）：海外で収穫後殺菌の行われていないと推定されるものを輸入者から購入した。念のため、実験前にTL法で放射線照射が行われていないことを確認の上、検討試料とした。

黒コショウ（イエロー）とターメリック（中国産）を主に実験試料にした。以下、特に記述がない場合はこれらを試料とした。

b, TL測定手順

i. 装置

熱ルミネセンス測定装置

試料室雰囲気：窒素ガス

昇温：開始温度70℃、終了温度350℃から500℃

昇温スピード：6℃/秒

照射施設

γ線源（⁶⁰Co）

超音波浴

恒温槽（50 ± 5℃）

遠心分離機

運転条件：1000 G、2分間

遠沈管攪拌器

減圧ポンプ

ii. 試薬・試液など

・ポリタングステン酸ナトリウム溶液（比

重 2.0)

ポリタングステン酸ナトリウム ($\text{Na}_6[\text{HW}_{12}\text{O}_{40}] \times \text{H}_2\text{O}$) 250 g を水 150mL に加えて溶かす。

- ・炭酸カリウム：試薬特級
- ・タングステン酸ナトリウム：試薬特級
- ・ヨウ化カリウム：試薬特級

飽和溶液は褐色ビンに保存する。

- ・1mol/L 塩酸

調製する場合は、塩酸 (35 ~ 37%)

8.8mL を水に加え 100mL にする。

- ・1mol/L アンモニア水

調製する場合は 28%アンモニア水 6.8mL

を水に加え 100mL にする。

- ・アセトン：試薬特級
- ・水 (蒸留水、またはイオン交換水)
- ・鉍物分離用メッシュ

目開き 125 または 250 μm

ナイロンまたはステンレス (使用の都度用意する)

- ・試料皿 (ステンレス製またはアルミニウム製)

底面が TL 測定装置のヒータに密着する大きさのもの。使用前にアセトンに浸漬して超音波浴で洗浄し、密閉容器に保存する。

iii. 試料の調製

試料の形状により (1-1) ~ (1-3) のいずれかにより鉍物を分離する。

(1-1) 鉍物の分離 (粒状検体の場合)
検体約 100 g を 300 ~ 1000mL のビーカー A (検体の容積の 2 倍程度) に入れ、200 ~ 500mL の水 (検体が十分浸る程度) を加え超音波浴に 15 分入れる。目開き 125 または 250 μm のナイロンメッシュ

またはステンレスメッシュを篩の枠に取り付ける。その後、別の 500 ~ 1000mL ビーカー B で水などを受け、メッシュの上で検体を洗びんの水で濯ぐ。検体は取り除き、廃棄する。ビーカー A に残っている沈殿物を含む水もナイロンメッシュを通してビーカー B に加え、ビーカー A を傾けて、器壁の付着物 (鉍物) をすべて洗ビンの水で流しながら加える。さらにメッシュ上の有機物も洗びんの水でよく洗う。

ビーカー B の水を 15 分間静置し、上澄みをデカンテーションまたは減圧ポンプで水面からゆっくりと吸引し、沈殿物を残す。デカンテーションの場合はビーカー B をゆっくりと傾け、序々に水を捨てる。有機物はふわっと舞い上がってくるので、そのまま水を捨てるが、鉍物は捨てないように注意する。

ビーカー B に残った沈殿物を水とともに 50mL の遠沈管に移す。このとき、ビーカー B に沈殿物 (鉍物) が残るので、遠沈管の上でビーカー B を傾けて洗ビンの水で洗い流す。一度に集めきれないときは、遠心分離し、上澄みを捨て、残りの沈殿物を 50mL の遠沈管に加える。これを遠心分離後、上澄みを捨て、10 または 15mL の遠沈管に沈殿物を移し、遠心分離後、上澄みを捨てる。これに 5 mL のポリタングステン酸ナトリウム溶液を加え、攪拌させたのち遠心分離をする。以下、(2) 鉍物の精製 の操作を行う。
(1-2) 鉍物の分離 (粉末検体の場合)
検体約 2 ~ 5 g を 50mL の遠沈管に採り、15 ~ 30mL のポリタングステン酸ナ

トリウム溶液を加えて軽く攪拌し、溶液中に検体を均一に懸濁させる。遠心分離するためにポリタングステン酸ナトリウム溶液を加えてバランスを取った後、超音波浴に5分入れた後、遠心分離する。

遠心分離した50mLの遠沈管の沈殿物を含むポリタングステン酸ナトリウム溶液(数mLずつ数回に分け、合計約5mL)を遠沈管の底からスポイトで一気に*)吸い取り、10または15mLの遠沈管に移す。さきの50mLの遠沈管に5~10mLのポリタングステン酸ナトリウム溶液を加えて、浮上物を均一に懸濁させる。遠心分離するためにポリタングステン酸ナトリウム溶液を加えてバランスを取った後、超音波浴に5分入れる。これをもう一度、遠心分離する。

遠心分離した50mLの遠沈管の沈殿物を含むポリタングステン酸ナトリウム溶液(数mLずつ数回に分け、合計約5mL)を遠沈管の底からスポイトで一気に*)吸い取り、10または15mLの遠沈管にあわせ、遠心分離をする。以下、(2) 鉍物の精製の操作を行う。

*) 鉍物は重いので、溶液をゆっくりと吸い上げると遠沈管の底の残る。

(1-3) 鉍物の分離(粉末検体の場合2)

パプリカの場合は上記(1-2)の工程を次のようにすることができる。ポリタングステン酸ナトリウム溶液の代わりに、飽和炭酸カリウム溶液、飽和タングステン酸ナトリウム溶液または飽和ヨウ化カリウム溶液を加えて、おこなう。

最後に加えた飽和溶液を捨て、数mLの水に沈殿物を攪拌して、さらに水を加

え10mLにする。これを遠心分離した後、水を捨て、沈殿物を残す。(飽和炭酸カリウム溶液を使用した場合は、更に水洗いを2回繰り返し、数mLの水を残したところに1mol/L塩酸を加え、中性もしくは弱酸性にする。ただし、1mol/L塩酸を1滴加えたとき、激しく発泡するようであれば数回水洗いを繰り返した後、1mol/L塩酸を加える。これを遠心分離した後、水を捨て、沈殿物を残す。)

5mLのポリタングステン酸ナトリウム溶液を加え、攪拌後、遠心分離する。以下、(2) 鉍物の精製の操作を行う。

(2) 鉍物の精製

洗ビンで約2mLの水を静かに遠沈管の器壁を洗うように加える。ポリタングステン酸ナトリウムと水の層ができ、界面に有機物が浮く。スポイトで界面に浮いた有機物を吸い取り、水を吸い取った後、ポリタングステン酸ナトリウム溶液も取り除き、遠沈管に沈殿物を残す。器壁についた有機物は、湿らせた小さく切ったティッシュで拭き取る。

再度、2~5mLのポリタングステン酸ナトリウム溶液を加え、攪拌後、遠心分離する。ポリタングステン酸ナトリウム溶液をスポイトで吸い取り、沈殿物を残す。器壁についた有機物は湿らせたティッシュで極力拭き取る。

次に、数mLの水に沈殿物を攪拌して、さらに水を加え10mLにし、攪拌する。

これを遠心分離した後、水を捨て、沈殿物を残す。

再度、水を加え、この操作を1回繰り返す。

この時点で、沈殿物の大部分は鉍物になる。以下、沈殿物は鉍物と記す。

(3) 炭酸塩の除去と水洗い

炭酸塩を除去するために1mol/L塩酸2mLを加え鉍物を攪拌し、15～20分間放置する。

1mol/Lアンモニア水2mLを加え、攪拌し、水を加えて、液量を10mLにし、再度攪拌する。遠心分離後、水を捨て、鉍物を残す。数mLの水に鉍物を攪拌して、さらに水を加え10mLにし、再度攪拌する。遠心分離後、水を捨て、鉍物を残す。

再度、水を加え、この操作をさらに1回繰り返す。pH試験紙で中性であることを確認する。

(4) 水分除去

アセトン3～5mLを加え、攪拌して、遠心分離後、鉍物を残す。アセトンパスツールピペットで吸い取って捨てる。アセトンを加えたとき、溶液が白濁した場合はポリタングステン酸ナトリウムが除去されていないので、水洗いを数回おこなってからアセトンを加える。

再度、アセトンを加え、この操作をさらに1回繰り返すが、最後は0.2～0.5mLのアセトンを残す。

ターメリックやパプリカは色素が鉍物に付着しているので、アセトン溶液が着色する。この場合は着色がなくなるまで、アセトンを加えて遠心分離する。

iv. TL測定

1試料につき、2～3個の試料皿の重量 W_0 (mg)を測定し、蓋つきの容器(ペトリ皿等)に入れておく。パスツール

ピペット(または25～50 μ L分取できるマイクロピペット)で、遠沈管の底のわずか上から鉍物を吸い上げ、鉍物がピペットの先端に集まるのを待って試料皿に1～2滴落とす。0.5mgを目安に鉍物を分取するが、試料皿に載った鉍物が少ない場合は、再度、鉍物を吸い上げ、鉍物を滴下する。同様に残りの1～2個の試料皿に鉍物を載せる。ただし、分離できた鉍物量が少ない場合は無理に分けず、試料皿1個で測定する。この場合は再度、試料を採取し、鉍物を分離するのが望ましい。

鉍物を載せた試料皿をひとつずつペトリ皿などの容器に入れ蓋をし、遮光して、50°Cに保った恒温槽に入れ1晩放置する。

鉍物を乗せた試料皿の重量 W_1 (mg)を測定しておく。

TL測定装置の加熱板に鉍物を載せた試料皿を置き、発光量を測定する。この発光量をGlow 1'とする。熱による影響を測定するため、そのまま、発光を測定し、この発光量をGlow 1' Bとする。この後、鉍物をこぼした試料皿は基本的に廃棄する。

鉍物を試料皿に載せたまま、標準化のために1kGy照射し、遮光して、50°Cに保った恒温槽に入れ1晩放置する。

TL測定装置の加熱板に照射した試料皿を置き、発光を測定する。この発光量をGlow 2'とする。熱による影響を測定するため、そのまま、発光を再度測定し、この発光量をGlow 2' Bとする。

次の式により、鉍物量とTL発光比を

計算する。

鉍物量W (mg)

$$W = W_1 - W_0$$

TL 発光比 = Glow 1 / Glow 2

ただし、

$$\text{Glow 1} = \text{Glow 1}' - \text{Glow 1}' \text{ B}$$

$$\text{Glow 2} = \text{Glow 2}' - \text{Glow 2}' \text{ B}$$

必要に応じて、Glow2 測定後の試料皿の重さ W_2 (mg) を測定する。単位重量あたりの発光量 $\text{Glow1}/W$ 、 $\text{Glow2}/(W_2 - W_0)$ を計算し、これらの値から算出した TL 発光比は参考値とする。

v. 放射線照射の判定

0.5Gy 照射した TLD100 を 10 回測定し、一番強い発光極大 (V) の温度の平均 ($X^\circ\text{C}$) を出す。

① Glow 1' の発光曲線において、 $X^\circ\text{C}$ より低温側に明確な発光極大がある。

② TL 発光比が 0.1 以上である。

上記の①と②が測定される場合は「照射された」と判定する。ただし、検体の一部が照射された場合または非照射検体に照射検体が混入した場合は①のみの可能性がある。

vi. 発光量の下限值

水を対象とした空試験を数回行い Glow 1 と Glow2 を測定する。それぞれの平均値 (M)、標準偏差 (SD) を算出する。

$$\text{検出限界 (MDL)} = M + 3 \times \text{SD}$$

とすると

発光量の下限值は検出限界の 10 倍とする。

下限値以上の Glow 1、Glow 2 が得られた場合に、TL 発光比を算出する。

参考事項

1) 検体量は鉍物の付着量が多いことがわかっている場合は、鉍物を 1mg 程度分離できる量に減らすことができる。セロリシードでは 10 g、ローレルはかさばるので 50g、パプリカは 2 ~ 3g とする。

2) 器具類はプラスチック製が望ましい。ただし、ポリスチレン製の遠沈管にアセトンを加えると溶けるので、アセトンを使用する場合は他の素材ものものを使用する。

ガラス器具には鉍物が付着しやすい。ガラス製のビーカーや遠沈管を再使用する場合は、十分洗浄し、使用前に鉍物が付着していないことをルーペなどで確認する必要がある。ガラス製のピペットを使用する場合も、器壁に鉍物が付着してアセトンや水で洗い流しても取れなくなることがある。鉍物を試料皿に移す場合などは吸い上げる液を少量にし、付着する鉍物量を抑える。

3) ポリタングステン酸ナトリウムは有害であるので、廃液は回収することが望ましい。

4) でんぷんを含む粉末試料 (コショウなど) にヨウ化カリウムを加えると、粘度が高くなり、鉍物の分離が困難になるので使用しない。また、でんぷんが沈殿した場合は酵素処理して、浮上させる。

5) 分離した鉍物を試料皿に載せるためにマイクロピペットを使用する場合は、分取量は 25 ~ 50 μL が適当であるが、25 ~ 50 μL 用のチップでは先端が細いので鉍物を吸い上げにくく、滴下しに

く。チップは先端のやや太いもの（たとえば、250 μ L 用）を使用する。

6) Glow1 を測定した後、試料皿の鋳物をこぼした場合は基本的には当該試料は無効とする。ただし、ある程度の鋳物が試料皿に残っている場合は、鋳物量を測定のうえ、単位重量あたりの発光量を算出し、TL 発光比を出す、参考値とする。

7) TL 測定装置からの排気は局所排気することが望ましい。（有機物が焦げるにのほかに、甘ったるいにおいがすることがある。）

8) 試料から分離した鋳物を TL 測定前に 50°C に加熱する時間は 1 晩とする。

本研究では条件をそろえるため 16 時間とした。

9) 本研究では発光量の積分範囲は 70-400°C とした。

次のグラフを例示する。

- ・照射、非照射試料の発光曲線（図 1-1 ~ 1-4 および図 2 参照）
- ・ T L D 100 の発光曲線（図 5 参照）

c, 測定回数

測定は 5 試料から鋳物を分離し、鋳物の一部を試料皿に載せ、それぞれを 1 回測定した。測定回数は 5 回としたが、これ以外の場合のみ測定回数を記した。

d, 照射施設

- ・原子燃料工業株式会社 電子線 (10MeV)
- ・東京都立産業技術研究所 ^{60}Co 線源 (185TBq, 129.5TBq)

本研究で、分離した鋳物へ 1kGy 照射した時の線量率は約 0.70 ~ 0.75kGy/h であった。アラニン線量計で測定した

吸収線量は平均 0.93 k Gy、標準偏差 0.022kGy であった。（測定回数：10 回）

e, 使用した装置および器具

- ・ TLD 測定装置：HARSHAW QS 3500
- ・遠心機
- ・恒温槽
- ・超音波浴
- ・電子天秤 (0.01mg まで測定できるもの)
- ・遠沈管 (15、50mL) プラスチック製
- ・メッシュ (目開き 125 μ m、ナイロン製)

f, 使用した試薬等

- ・ポリタングステン酸ナトリウム：SOMETU 社製
- ・アセトン：試薬特級
- ・塩酸：試薬特級
- ・アンモニア：試薬特級
- ・ TLD 素子：HARSHAW TLD-100 (フッ化リチウム、直径 3.6mm、厚さ 0.1mm)
- ・黄砂：国立環境研究所提供の黄砂エアゾル標準物質 (CJ-2)
- ・シリコンスプレー：信越化学工業製、KF96SP
- ・アラニン線量計：BRUKER 製、ペレット、使用した電子スピン共鳴装置 (ESR) は日本電子製、JER-RE2X

1、香辛料から分離できる鋳物量

香辛料には多くの種類があるが、本研究ではわが国への輸入量の多いものを検査対象とした。中でもこれらの代表として、粒状の試料では照射した黒コショウとターメリックについて詳細に検討した。

検体の採取量を決定するため、香辛料から分離できる量を確認した。TL 測定

には、1mg 程度の鉍物を分離する必要があり、所定の TL 測定手順に従い、香辛料から鉍物を分離し、その重量を測定した。

香辛料から分離した鉍物に 1kGy 照射し、TL 測定をした発光曲線を比較した。

2、 鉍物の添加回収

香辛料などから分離できる鉍物は発光量、形状などから粘土鉍物が多いと推定される。そこで、100g の照射した黒コショウに土壌（東京都立産業技術研究所駒沢分室敷地内で採取）を風乾後、篩い、粒度 75 ~ 173 μm に調整したものを約 30mg を添加し、TL 測定手順に従い鉍物を分離した。黒コショウから分離した鉍物のうち一部は TL 測定用試料とし、残りを別のステンレス皿に取り、それぞれ 50°C で 16 時間加熱後秤量した。

3、 試料皿の形状

表 1 試料皿の材質（JIS 規格による）

| | ステンレス | アルミニウム | 銅 |
|----|-----------|---------------|--------|
| 角型 | SUS304 | A1050 (A1N30) | C1100P |
| 丸型 | SUS304-2D | A1050-H18 | — |

() は 0.1mm の素材である。

試料皿の熱容量が大きいと TL 測定時の発光極大の温度に影響を与える可能性があったので、照射した TLD 素子 (TLD 100) を用いて、素材の異なる各試料皿について比較検討した。試料皿の材質は表 1 のとおりであった。

試料皿の形状は角型 (5.9mm × 5.9mm、縁なし) と丸型 (直径 6.0mm、厚さ 0.2mm、縁の高さ 1mm) を使用した。また、試料

皿の縁の高さの影響を検討するために、アルミニウム製の示差熱計用セル (直径 4.5mm、縁の高さ 2.6mm) も用いた。

TLD 素子 (TLD100) は 400°C で 1 時間加熱し、さらに 100°C で 2 時間加熱したものを東京都立産業技術研究所の ^{60}Co (129.5TBq) 線源、線量率 1.0Gy/h で 0.5Gy 照射し、4 ~ 5 時間後に測定した。

本研究において、鉍物を測定するときには、丸型ステンレス製のものを使用した。

試料皿の縁の高さの TL 測定に対する影響を検討するために、0.5Gy 照射した TLD 素子 (TLD100) のほかに、5 kGy 照射した黄砂を試料に用いた。入手した黄砂は試料調製時に滅菌のため、 ^{60}Co の γ 線を照射されていたので、400°C で 2 時間アニールした後、東京都立産業技術研究所の ^{60}Co 線源 (185TBq) で 5 kGy 照射したものを試料とした。

縁なしの試料皿では傾けると、黄砂がこぼれるので、試料皿にシリコンをスプレしたのち黄砂を載せ、軽く揺すって黄砂を試料皿全体に広げた。縁がある試料皿には、黄砂を載せた後、アセトンを数滴たらして、試料皿全体に広げた。

4、 照射試料の経時変化

同一ロットのターメリックと黒コショウをポリ袋に 500g (おおよそ 20 × 22cm、厚さ 2cm) に小分けし、電子線 (10MeV) で 1kGy、5 kGy を目標に片面照射した。このときの照射線量はラジオクロミック線量計 (FWT-60-1P) で裏表 2ヶ所測定した平均値を表 2 に示す。実

験開始前に、試料を均一にするために、それぞれの試料を袋から出し、混合したのち数10gずつ取り分け500gにし、ポリ袋に入れ暗所に保存した。一部のものは蛍光灯の元に置いた。

表2 試料へ照射した吸収線量

(k Gy)

| 目標線量 | 黒コショウ | ターメリック |
|------|-------|--------|
| 1 | 1.1 | 1.1 |
| 5 | 5.4 | 5.8 |

TL測定において、鉍物を分離後速やかに測定した場合でも、50℃で一晩加熱、Glow1の測定、照射、50℃で一晩加熱、Glow2の測定の一連の作業に3日間を要する。照射施設を持たない検査機関では、試料（鉍物）を照射施設に運搬し、照射した後Glow2を測定することが予想される。また、休日がこの途中に入ることも予想されるので、照射後50℃で一晩加熱し、直後と1週間後にGlow2を測定した場合について検討した。

5、混合実験

5.4kGy照射したものが2～20%、対照（非照射）との合計量が100gになるように黒コショウを分取した。これを、TL測定手順に従い鉍物を分離し、TL測定を行った。

6、高温加熱処理によるTL発光への影響

照射した香辛料などを加熱処理した場合の影響を検討するために黄砂をモデ

ルとして検討した。「3、試料皿の形状」で調製した5kGy照射した黄砂1～2mgを試料皿に乗せ、アセトンを滴下して、黄砂を試料皿上で薄く広げた。50℃で16時間加熱したものを180℃、150℃に加熱した後、その日のうちにTL測定をした。

加熱処理の方法は180℃8分以下の加熱の場合はTL測定装置で行い、30分以上の試料はTLD素子加熱用の装置で加熱した。150℃の加熱はTLD素子加熱用の装置で加熱した。

7、標準化のための照射線量の影響

標準化のために照射する線量が分離した鉍物への影響を検討するために、⁶⁰Co（185TBq）線源で1kGy前後の線量を照射した。モデル鉍物として「3、試料皿の形状」で調製した5kGy照射した黄砂を試料皿に取り、アセトンを滴下して、試料皿に広げたものを50℃で16時間加熱した。鉍物が移動しないように黄砂を載せた試料皿にシリコンスプレーを吹き付けてから、TL測定を行った。この黄砂に0.5～1.5kGy照射したが、そのときの線量率は0.35～1.2kGy/hであった。

8、照射線源の影響

本研究で使用したものと同一ロットの黒コショウとターメリックに原子燃料工業の電子線（10MeV）およびと東京都立産業技術研究所のγ線（⁶⁰Co、185TBq）を3kGy、7kGy照射した。

照射した試料を3ヶ月暗所で保存後、それぞれの試料100gから鉍物を分離

し、鉍物を5つの試料皿に分けて、TL測定を行った。

9、発光量の下限值

TL発光量の検出限界を確認するために、試料の代わりに100mLの水を用いた空試験を実施した。空試験は、試料から鉍物を分離する場合と同一の器具、試薬を用いておこなった。

上記の空試験のほかに、試料皿だけをTL測定し、1kGy照射して再度TL測定を行った。

C. 研究結果

1、各種香辛料から分離できる鉍物

約1mgの鉍物を分離できる試料採取量を検討した。粒状のものは500mLビーカーに分取したとき水に浸る量として、100gを試料採取量として検討した。ロー

レルは25gで500mLビーカーにいっぱいになったが、分離できる鉍物量が少ないと予想されたので、50gの試料を採取して検討した。粉末試料では鉍物の分離が容易なので、試料採取量を5gとした。実験に使用した香辛料の産地と形状および100g（粉末香辛料では5g）の香辛料から分離できた鉍物量を表3に示す。

表3に示す香辛料から分離した鉍物に1kGy照射したときの主な発光曲線を図1-1～1-4に示す。中国産ターメリックのような発光曲線が一般的であった。これとは発光曲線の形が異なるスペイン産パプリカや、330～340℃付近の発光量がやや高いマレーシア産黒コショウの例があった。ブラジル産黒コショウのように独特な発光曲線を示すものもあった。ブラジル産黒コショウの場合は試料

表3 各種香辛料から分離できた鉍物量

| 品名 | 産地 | 形状 | 試料採取量 (g) | 鉍物量 (mg) |
|---------|--------|---------|-----------|----------|
| オールスパイス | ジャマイカ | ホール | 100 | 2.4 |
| 黒コショウ | インド | ホール | 100 | 1 |
| 黒コショウ | マレーシア | ホール | 100 | 4～6.5 |
| 黒コショウ | マレーシア | ホール(選別) | 100 | 5.7～8.7 |
| 黒コショウ | ブラジル | ホール | 100 | 1.2 |
| 黒コショウ | ベトナム | ホール | 100 | 3.2 |
| 黒コショウ | (イエロー) | ホール | 100 | 2.3 |
| セロリ | インド | ホール(種子) | 100 | 630 |
| ローレル | トルコ | ホール | 50 | 0.95 |
| パプリカ | スペイン | 粉末 | 5 | 2.7～11 |
| パプリカ | チリ | 粉末 | 5 | 9.8～13 |
| ショウガ | 中国 | ホール | 100 | 0.87 |
| ターメリック | 中国 | フィンガー | 100 | 4.9 |
| ターメリック | マドラス | フィンガー | 100 | 22 |
| ガーリック | 米国 | チョップ | 100 | 2.3 |
| | | | | |

皿に載せた鉱物により、発光曲線の低温側発光極大のほうが高くなるケースも認められた。

照射されていない香辛料から得られた発光量は少ない（縦軸は測定したときの値である）が、発光曲線は図2や図7（上）のように300～350℃付近の発光量が高くなった。

以下に示す発光曲線は熱影響(Glow 1' BまたはGlow 2' B)を差し引いて、図を作成した。

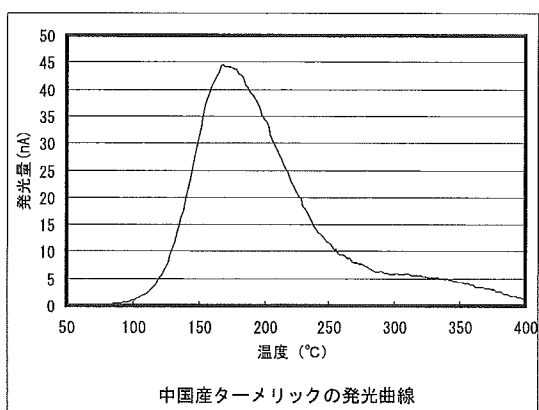


図1-1 ターメリックから分離した鉱物にγ線を1kGy照射したときの発光曲線

このような発光曲線を示す試料が多かった。

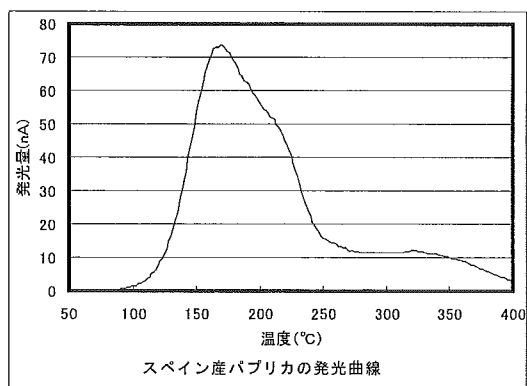


図1-2 パプリカから分離した鉱物にγ線を1kGy照射したときの発光曲線

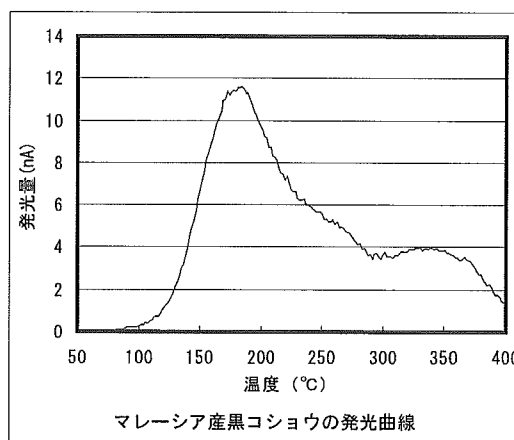


図1-3 黒コショウから分離した鉱物にγ線を1kGy照射したときの発光曲線

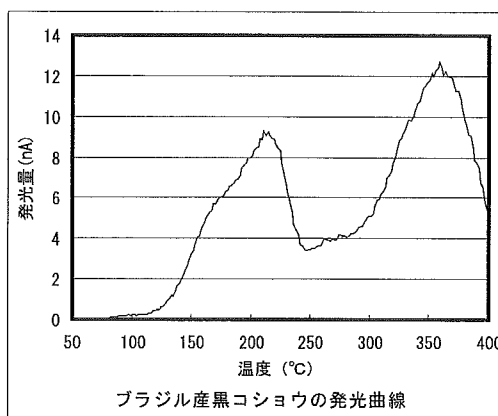


図1-4 黒コショウから分離した鉱物にγ線を1kGy照射したときの発光曲線

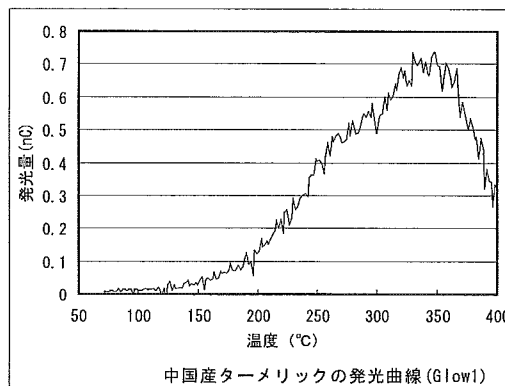


図2 照射されていない試料から分離した鉱物の発光曲線

また、表3に示す香辛料から鉍物を分離して測定した発光量 (Glow1) と、この鉍物に1kGy照射して測定した発光量 (Glow2) について鉍物1mgあたりの発光量を図3に示す。

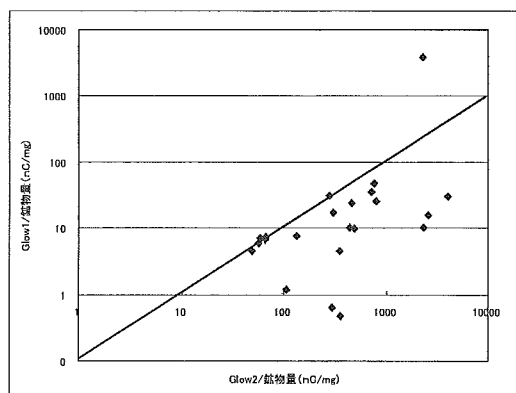


図3、香辛料から分離した鉍物の発光量 (nG/mg)

斜めの線はTL発光比 (Glow1/Glow2) = 0.1を示す。この線より上の点はTL発光比が0.1より大きいことを示す。斜め線のわずかに上に位置する試料では、明確な発光極大は認められなかった。

2、鉍物の添加回収

100gの黒コショウからTL測定手順によって分離できた鉍物量を表4に示す。この結果、黒コショウから分離できる鉍物量は平均5.1mgであったが、最低1.1~最高31.3mgと変動した。

下記表4と同一ロットの5.4 k Gy照射した黒コショウ100gに非照射土壌(75~173 μm)約30mgを添加後、回収(TL測定手順によって分離)した鉍物量を表5に示す。また、試料1~5について、回収した鉍物の発光曲線(Glow1)はほぼ同じ形を示した。TL発光比が一番小さ

さい試料を発光曲線の例として図4に示す。

表4 100gの黒コショウからの分離した鉍物量(単位:mg)

| No | 最大値 | 最小値 | 平均値 | SD |
|-----|------|-----|------|------|
| A-1 | 9.4 | 2.7 | 6.1 | 3.02 |
| A-2 | 11.3 | 2.1 | 6.0 | 3.55 |
| A-3 | 31.3 | 3.0 | 13.9 | 13.3 |
| B-1 | 2.1 | 1.1 | 1.5 | 0.41 |
| B-2 | 21.0 | 1.1 | 6.4 | 8.33 |
| B-3 | 3.8 | 1.1 | 2.2 | 1.02 |
| B-4 | 3.4 | 1.2 | 2.0 | 0.85 |
| B-5 | 3.5 | 2.7 | 2.7 | 0.74 |

NoのA,Bは実験者が異なる。最大:31.3mg、最小:1.1mg、平均:5.1mg

SD:標準偏差(以下、このように記す)

表5 黒コショウへの土壌の添加量および回収量

| | 添加量 (mg) | 回収量 (mg) | 回収率 (%) | TL発光比 |
|-----|----------|----------|---------|-------|
| 試料1 | 32.4 | 44.64 | 138 | 0.47 |
| 試料2 | 30.1 | 16.71 | 56 | 0.14 |
| 試料3 | 31.6 | 16.08 | 51 | 0.14 |
| 試料4 | 30.8 | 16.86 | 55 | 0.16 |
| 試料5 | 30.5 | 20.75 | 68 | 0.20 |
| 平均 | 31.1 | 23.0 | 73 | 0.22 |
| SD | 0.92 | 12.23 | 37 | 0.14 |

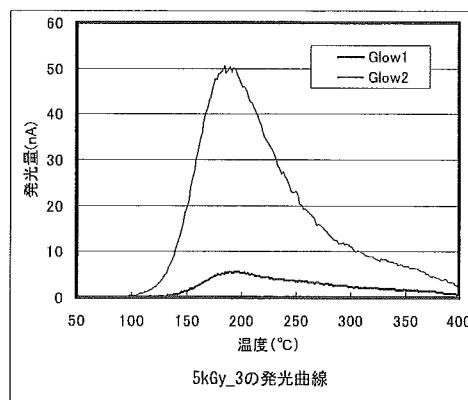


図4 試料3(表5)の発光曲線

Glow1:190°C付近に発光極大が認められた。