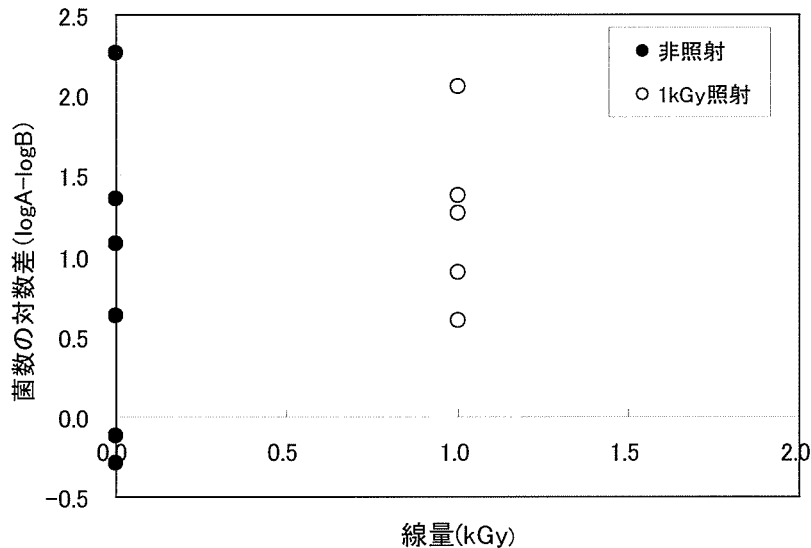


図8 熱処理有無の菌数差異のばらつき



べきであった。

② 熱処理温度を 60℃としたが、60℃と 70℃の菌数の差は大きく、熱処理の間の温度の誤差（最大± 5℃）を考慮すれば、60℃以上の温度での菌数はかなりクリティカルに変化した可能性がある。このため、温度誤差を考慮し、実際の目標温度をもう少し下げるべきであった。

しかしながら、3種類の香辛料のうち、白胡椒は熱処理後の菌数は照射の有無により明らかに傾向が異なり、セージにおいても、照射試料の方が熱処理後の菌数減少率が大きかった。このため、本試験を真菌による検知法のための予備実験と位置づければ、さらにデータを収集することによって、本方法を放射線照射の検

知に用いることが出来る可能性を示すことはできたと考える。

参考文献

- 1) 矢野信礼；細菌の損傷とその修復，魚肉ソーセージ，p13-26
- 2) 新谷英晴；滅菌バリデーションならびに再現ある滅菌保証達成のために3，防菌防黴，29，p345-351(2001)
- 3) 木暮一啓；損傷菌と培養不能細菌について，防菌防黴，30，p82-84(2002)
- 4) 新谷英晴，数馬昂始；日本に於ける滅菌保証達成に於ける問題点と解決法7－（上），防菌防黴，30，p749-758(2002)
- 5) 武川哲也，赤土雄美，多田幹郎，古田雅一；医療用不織布製品より分離されたカビの電子線に対する抵抗性，防菌防

- 6) 伊藤均, 大木由美, 石垣功; 放射線による稲藁製品の消毒殺菌, 防菌防黴, 19, p577-583(1991)
- 7) 宇田川俊一; 食品のカビ汚染と危害, (宇田川俊一編集, 幸書房, 2004) p128-134
- 8) A. . ヘレール, Y. . ヨンゲン, M. . アブス, M. . ファン・ラネケル, 大越正和, 梅津透; IBA 社工業用高電圧・高出力電子線加速器ロードトロン, 放射線と産業, 78, p27-31(1998)
- 9) Klein, D.A. ; Stress: a Factor to be considered in heterotrophic microorganism enumeration from aquatic environments., Appl. Microbiol., 27, p429-431(1974)
- 10) Ray, B. , Speck, M.L. ; Discrepancies in the enumeration of Escherichia coli., Appl. Microbiol., 25, p494-498(1973)
- 11) 太田利子, 朴鐘喆, 徐 潤, 村松芳多子, 高鳥浩介; 真菌試験における培養温度の影響, 防菌防黴, 27, p309-313(1999)
- 12) 新谷英晴; 微生物の成育に与える種々因子のバリデーションについて, 防菌防黴, 33, p669-675(2005)
- 13) Blank, G.B. , Corrigan, D ; Comparison of resistance of fungal spores to gamma and electron beam radiation., International Journal of Food Microbiology, 26, p269-277 (1995)
- 14) LebaiJuri, M. , Omar, M. , Yusof, N. ; Sensitivity of the conidia of plant pathogenic fungi to Gamma-rays, electron particles and X-ray (Bremsstrahlung) irradiation., World Journal of Microbiology, 11, p610-614 (1995)

照射食品検知のための TL 法の確立に関する研究

分担研究者 棚瀬 正和 （財）放射線利用振興協会 高崎事業所長

協力研究者 須永 博美 （財）放射線利用振興協会

実験協力者 杉 恵理子 （財）放射線利用振興協会

実験協力者 清水 隆志 （財）放射線利用振興協会

照射食品の検知法として香辛料に対応できる方法である熱発光法について、これまで進められてきた検討結果をベースとし、これをさらに具体化する目的で要素技術について検討を進めた。検討を行った主な要素は検知技術に必要な標準線量の放射線照射に関する事、測定試料である食品中に含まれる鉍物の種類や粒度に関する事、検知可能な最低線量に関する事などである。検討においてはコショウやターメリックなど各種の香辛料について鉍物の抽出実験を繰り返し行うとともに、鉍物試料単体を用いての熱発光測定等をおこなった。また、照射実験には特性等がよく整備されたガンマ線照射施設を用いた。この結果、本方法を実用化するための有用な技術情報を明らかにすることができた。

A. 研究目的

食品の殺菌、殺虫、発芽防止を目的として放射線照射を行う方法、すなわち食品照射は世界的には2001年現在、100種類以上の食品が約51ヶ国で許可されており、特に香辛料については48ヶ国という多くの国において許可されている状況にある¹⁾。しかし日本では1972年に発芽防止を目的としたバレイショの食品照射が許可されて以来30年余りにわたって許可された品目がない状態が続い

ている。このようにほとんどの食品の照射が許可されていない日本においては照射食品の流入を防ぐことが求められており、そのためには食品が放射線照射されたものかどうかを検知することが必要である。また、世界的には広く行われている香辛料の食品照射については2000年に日本スパイス協会が許可申請を行っているが、仮にこれが許可される場合においても国民がこの照射食品の利用の選択が行えるための検知技術の確立が必要条

件となると考えられる。香辛料に適用できる検知法としてはヨーロッパ標準法としても制定されている熱発光法 (TL 法) が高精度で検知できる方法として知られている。日本における TL 法の技術的確立についての検討はこれまで個々に行われてきたが、昨年度の後藤ら²⁾ による検討により基本的には確立されたと思われる。本研究は昨年度の後藤らの検討を基本として具体的に実施する場合を想定し、さらに種々の項目・要素についての検討を行うことにより技術を確立することを目的としたものである。検討を行った各項目・要素とその内容は次の通りである。

1. 標準線量の照射の精度と再現性

TL 法は食品試料から抽出した鉱物の TL 量を測定することにより照射の有無を検知するのが原理であるが、具体的にはその抽出した試料の TL 量 (Glow1) と TL 測定を行うことによって TL が消失した試料を既知線量で再照射した後に測定する TL 量 (Glow2) の比を求めて照射・非照射の判断を下すものである。この再照射における線量については、精度良く再現性のある照射を行うことが検知の信頼性を高める上で重要である。そこで、今回の検討を通じて、ガンマ線照射における吸収線量の精度及び再現性がどのようになっているかを調べる事を目的とする。

2. 鉱物の結晶化度と TL 量

石英などの結晶状態の半導体物質に

放射線が照射されると電子がトラップされ、加熱によりこれが解放され発光する (TL)³⁾。検知法を適用するには結晶質の鉱物であることが要求されるが、食品試料に付着した鉱物は産地の違いにより、非晶質の含有量が異なるものと考えられる。結晶質のものと非晶質の材料とでは実際にどの程度 TL の違いがあるかを明らかにすることを目的として、同じ二酸化ケイ素で結晶化しているものと未結晶のものをモデルとして TL 量の違いを調べた。

3. 鉱物の粒度と TL 量

同じ種類の鉱物であっても、粒子の大きさによって、同一放射線量に対して観測できる TL 量は鉱物の比表面積に起因して違いが生じると考えられる。鉱物の粒度も食品試料の産地により異なることは明らかであり、粒度の違いによる TL 量との関係を明らかにすることを目的とする。

4. 照射後の時間経過と TL 量の変化

照射検知のための TL 測定は照射後何時測定してもその強度が変わらないとすれば検知という目的からは理想であるが、経時変化は存在する。しかし定性的な検知という観点からは 1 kGy 照射試料で数ヶ月保存しても十分判別できたということが後藤らにより報告され²⁾、また香辛料の TL 法による照射検知は照射後数年経過しても可能であるという報告もある⁴⁻⁷⁾。この経時変化についての情報は TL 検知法の実施に基本的に重要であ

りこれまでに数多くの研究が行われ、鉱物の種類や保存温度、光の影響等が報告されている。ここではこれまでのデータに追加し、また照射後の経過時間が比較的短い時間の場合における定量的な値を得ることを目的として、発光のし易い鉱物としくいものについての1ヶ月程度までの期間における経時変化の検討を行った。

5、アニール温度とTL量

一般に鉱物は、加熱されると放射線照射量に関する情報が弱まったり、消えたりする。さらに常温で放置しておいても発光量が減衰する。放射線を照射した香辛料から鉱物を抽出し、そのまま熱発光量を測定すると、発光量が多すぎて測定器の上限値を越えてしまうこともあり、また、その発光量が時間減衰の激しいものであることが多い。そのためにTL測定装置で熱発光量を測定する温度の下限値よりも低い温度で一定時間試料を加熱して、発光量を安定させる。このような操作をアニールと呼ぶ。アニールを行ってから熱発光量をTL測定することが一般的に行われる。このアニール条件による熱発光量グローブの変化や適切なアニール条件を求める検討を行った。

6. 検出下限

TL法による検知は食品試料から抽出した鉱物のTL量(Glow 1)及びGlow 1を測定しTL信号の消失した試料に標準線量添加照射を行って測定したTL量(Glow2)の比(TL比)から照射・非照

射を判別するものである。TL測定器により測定できるTL量には下限があり、一定の線量以上の照射が行われていることが必要である。また、種類が既知の鉱物について下限線量を求めておくことはTL検知法適用の可否を予測するために有用であり、典型的な鉱物として、JF-1及び種子島土壌を選び測定を行った。

実際の食品試料の検知においてはTL比0.1が非照射・照射の判定基準値として一般的に採用されており、この条件を満たすための線量下限を求めておく必要がある。TL量は鉱物の種類により大きく変化するが、ここではブラックペッパー、パプリカ、フェヌグリーク、ターメリック、セロリについて、それぞれ抽出された鉱物の最低線量を求めることを目的とした。

7、標準線量の最適化

TL法におけるGlow2は検知を行うための物差しといえる値であり、このGlow2を生じるための吸収線量(標準線量)は正確な値の照射が可能で、また対象とする食品の種類に対応した適切な発光量となる線量である必要がある。さらにどのような鉱物が含まれているか不明の一般的な食品試料の場合(発光の異なる)どの鉱物にも適切な発光を与える線量であることが望ましい。ここでは鉱物として、JF-1と種子島土壌を例として用い、この場合の最適線量を求めることを目的とした。

8、添加回収

TL法を実施するための基本技術として、食品試料中に含まれる鉍物の抽出作業がある。この作業では少なくとも1mg以上の鉍物を抽出することが必要である。本試験法を用いることにより、安定して鉍物が抽出できる事を確認するために食品試料に鉍物を既知量添加し、抽出作業を行い回収率を確認し、試験法の信頼性を確かめた。

今回は、ブラックペッパー、パプリカ、ターメリック、フェヌグリーク、セロリのホールについて回収率を求める添加回収実験を行った。

B. 研究方法

1. 標準線量の照射の精度と再現性

鉍物の照射実験は(独)日本原子力研究開発機構・高崎量子応用研究所(原子力機構高崎研)食品照射棟第2照射室を使用し、各照射時には試料とともにアラニン線量計「アミノグレイ」を2個ずつセットして線量を求め各照射における線量の精度と再現性を求めた。「アミノグレイ」を放射線照射したときに生成するラジカル量のESRによる測定から吸収線量を求める方法は0.1~100kGyの線量について±3%の精度を有し、照射後の安定性については1kGyの場合で1年経過でも2%⁸⁾といわれ(25℃、相対湿度50%程度)、ISO/ASTM基準⁹⁾において参照線量計として位置づけられている線量測定法である。

第2照射室で用いているコバルト60線源は2,657TBq(2006.6.1現在)で長さ

45cm、直径11mmの棒状線源90本を板状にセットしたものである。照射は線源より62cm離れた1kGy/hの線量率になる位置で1時間の静止照射で行った。線量測定に用いた「アミノグレイ線量計」は日立電線社製、ESR装置は日本電子社製JER-RE2Xである。アミノグレイ線量計による測定は、高崎研が(独)産業技術総合研究所の標準放射線場で校正した電離箱式線量率計¹⁰⁾により校正した高崎研のガンマ線の場合¹¹⁾で照射して作成した「標準アミノグレイ」(0.1、0.2、0.5、0.7、1.0、2.0、5.0、7.0、10、20、50、70、100kGy)による検量線を用いて行った。アミノグレイのESRによる測定はこの「標準アミノグレイ」すべての測定を行い検量線を作成した後測定試料についての測定を行った。

2. 鉍物の結晶化度とTL量

実験には未結晶及び結晶の鉍物試料として次の2種類を使用した。

①SDA(未結晶の人工二酸化珪素(SiO₂))

関東化学製、試薬特級、Cat. No. 37974-00、Lot. No. 704X1428、Silicon Dioxide (Quartz Form)

②SDC(結晶化している人工二酸化珪素(SiO₂) 関東化学製、素材研究用 Cat.No. 37484、Lot. No. 512F1111、Silicon Dioxide HV

これらの試料に対して上記のとおり1kGyとなる放射線照射を行い、TL測定装置による熱発光量の測定を行った。本実験に用いたTL測定装置はHARSHOW社

製モデル 3500TLD 測定装置である。測定条件は初期温度 50℃、昇温速度 6℃/min、終温度 490℃、測定方法は照射した試料を 50℃、16 時間のアニールをした後約 20 時間後に、1.0 から 1.5mg を測定用ステンレス皿 (6mm φ) に乗せて TL 測定し、全温度範囲における発光量の積分値を求めた。試料の重量は超精密天秤により 1/100 mg まで秤量した。

TL 測定においては、温度が上昇してきたときに現れる試料以外からの光 (バックグラウンドノイズ) も含まれているため、1 回目の測定終了後に同じ試料に対して再度熱発光量を求め、得られた値をバックグラウンドとして 1 回目の熱発光量から差し引くことによって正味の熱発光量とした。それぞれの試料に対して 3 回の測定を実施した。

3、鉱物の粒度と TL 量

試料は、独立行政法人医薬品基盤研究所種子島圃場の表土 (種子島土壌) を 40℃ 以下で乾燥させ、これを①目開き 63 μm ~ 125 μm (以後 125 μm という。) と② 125 μm ~ 250 μm (以後 250 μm という。) の粒子になるようステンレスのふるいで分けた 2 種類である。

この試料に 1 k Gy となるガンマ線を照射した後、TL 測定を実施した。ガンマ線照射は試料をプラスチック製チューブに 1 グラム程度封入して室温で行った。照射施設、線量率等の条件及び TL 測定条件は上記と同じである。

4、照射後の時間経過と TL 量の変化

試料は①熱発光の少ないものとして、種子島の 125 μm の土壌試料及び、②熱発光の多い試料として、(独) 産業技術総合研究所の標準試料 JF-1 を 250 μm ~ 125 μm になるように粒度をそろえ、550℃ で 12 時間加熱して放冷したもの (消光標準岩石) の 2 種類とし、測定を行う 4 種の経過日数に対応し、またそれぞれ 3 回ずつの測定ができるだけの試料数を準備した。

この試料を上記の条件で 1 k Gy となるようガンマ線照射を行い、50℃、16 時間のアニールをした後 TL 測定を行った。TL 測定は照射後 2、8、15、18 日間とし、保存は遮光し冷蔵庫 (約 10℃) でおこなった。

5、アニール温度と TL 量

試料として①熱発光の少ない試料である種子島の 125 μm 土壌試料②熱発光の多い試料である産総研の標準試料 JF-1 を 125 ~ 250 μm になるよう粒度をそろえ、550℃ で 12 時間加熱後放冷したもの (消光標準岩石) の 2 種類について行った。この実験には 3 回の実験ができるよう試料を準備し、測定ごとのばらつきを調べた。

アニールは照射後ただちに試料を恒温槽に入れ 16 時間加熱するものとし、アニール温度はそれぞれ 30℃、40℃、50℃とした。

照射条件、TL 測定条件等は上記と同じである。

6、検出下限線量 (鉱物試料について)

試料として、TL発生量の多い物質であるJF-1と少ない物質である種子島土壌で粒径125 μ m以下の試料を選定した。この試料をガンマ線により10Gy、100Gy、1k Gyとなる照射を行い、各試料のTL測定から検出下限を求めた。照射は10Gyについては原子力機構・高崎研食品棟第1照射室の線量率12Gy/hの場で52分間、100Gyは食品棟第2照射室の1.22 k Gy/hの場で6分間そして1 k Gyは線量率1.05 k Gy/hで1時間照射をそれぞれ室温で行った。この場合の線量は10Gyの場合を除き同時に照射した「アミノグレイ」線量計から求めた。そして、その後、TL測定を行い、放射線照射に基づくTL信号として検知できるか、グローカーブの形に基づいて検討を行った。

食品の照射検知における線量下限については9. に示す。

7 標準線量の最適化(TL比への影響)

香辛料の滅菌処理のための照射は一般的に10 k Gy程度の吸収線量となるが、ここでは照射後の長い時間経過に伴うTL量の減衰や、照射・非照射試料を混ぜ合わせてある場合等を想定して2 k Gyという低めの吸収線量を設定し、この場合の適切な再照射線量を求めた。実験試料として発光しやすい試料である天然のSiO₂(JF-1)と発光しにくい試料である種子島の標準土壌を使用した。1k Gyとなる照射を行った後、50°Cで16時間アニールしGlow1を測定した。その後、再照射線量1kGy、0.5 k Gy、

0.25kGyの3種類の照射を行い、Glow2を測定した。これよりTL比を求め、最適と考えられる再照射の線量について検討した。TL比は上記のようにGlow1/Glow2であり、最初の線量と、再照射した線量の差が小さいほど両者の値は一致することになりTL比は1に近づくが、鉱物の種類による吸収線量と発光量との関係の相違、発光しやすい鉱物としにくい鉱物でのTL比の違い、及び発光しやすい鉱物における発光測定量の飽和に関する観点等から検討を行った。

8, 添加回収

各種の香辛料に対する添加回収率の測定を行う予備的な実験としてブラックペッパーについて既知量の砂を添加して回収率を調べた。ブラックペッパー100gの試料3個にそれぞれ、10mg、30mg、50mgの砂を添加し、各試料について別人が抽出作業を行った結果、10mgの添加では約3mg、30mgの添加では約10mg、50mgの添加では、約30mg回収できた。

この結果を踏まえ、ブラックペッパー、ターメリック、フェヌグreek、セロリのホール及びパプリカについての回収率を実験的に求めた。添加量は、TL測定3回分の試料量である4.5mg程度の回収ができると見積もられる量として設定し、ブラックペッパー、ターメリック、フェヌグreek、セロリのホールの場合には試料100gに対し20mgの砂(光りにくい鉱物である赤玉土:光りやすい鉱物である川砂=1:1)を添加し、また、

抽出がしにくく、抽出物中の有機物の量が多くなる傾向があるパプリカの粉末の場合には添加量を増やし、5 g に対して 5mg の砂を添加した。抽出実験は各試料について 5 回ずつ行った。抽出手順を章末に示す。

9. 食品の照射検知における線量下限
食品試料についてはブラックペッパー、パプリカ、フェヌグリーク、ターメリック、セロリの各食品試料について、抽出作業を行い、これにより回収した鉍物試料についての検出下限を求めた。今回の実験では各食品試料 100g に対し 20mg の砂（赤玉土：川砂 = 1 : 1）を添加し、確実に鉍物が抽出できる試料とした。照射を行った線量は約 0.25、0.5 及び 1k Gy とした。この場合、食品試料と添加する鉍物は別に照射を行った。鉍物の照射は試料を約 10 mg ずつ 1.5 ml のマイクロチューブに入れて行った。Glow2 を求めるための照射は 1 k Gy とした。食品試料から鉍物を抽出する方法については後藤により与えられた方法を基本とした。この方法については、この「研究方法」の章末に示す。

抽出手順と TL 測定

(1) 抽出手順

①所要機器

超音波浴

恒温槽

遠心分離機

運転条件：1000 G、2 分間

遠沈管攪拌器

②. 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 に溶かす。

炭酸カリウム：試薬特級

1mol/l 塩酸

1mol/l アンモニア水

アセトン：試薬特級

水（蒸留水）

鉍物分離用メッシュ

目開き 125 μm

ナイロン

試料皿（ステンレス製）

底面が TL 測定装置のヒータに密着する大きさとする。

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。

③試料の調製

(1-1) 鉍物の分離（粒状検体の場合）
検体約 100 g を 300 ~ 1000 ml のビーカー（検体の容積の 2 倍程度）に入れ、水 200 ~ 500 ml（検体が十分浸る程度）を加え超音波浴に 15 分入れる。目開 125 μm のナイロンメッシュを篩の枠に取り付ける。その後、別の 500 ~ 1000ml ビーカーで水などを受け、ナイロン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、ビーカーの器壁の

付着物も洗ビンの水で流しながら加える。さらにナイロンメッシュ上の有機物も洗びんの水でよく洗う。

ビーカーの水を15分間静置し、上澄みをデカンテーション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をゆっくりと傾け、序々に水を捨てる。途中で止めると、沈殿物が舞い上がるので、一度で水を捨てる。途中で沈殿物が舞い上がってしまった場合は、再度(5~10分程度)静止させた後、デカンテーションをする。

ビーカー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、ビーカーに鉍物が残るので、遠沈管の上でビーカーを傾けて洗ビンの水で洗い流す。一度で集めきれないときは、遠心分離し、上澄みを捨て、残りの沈殿物を集める。これを遠心分離後、上澄みを捨て、15mlの遠沈管に沈殿物を移し、遠心分離後、上澄みを捨てる。ポリタングステン酸ナトリウム溶液5ml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1) 検体約2~5g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5mlを2回に分け、遠沈管の底からスポ

イトで一気に吸い取り、15mlの遠沈管に移し、遠心分離し、上澄みをスポイトで取り除いておく。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。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5mlを2回に分け、遠沈管の底からスポイトで一気に吸い取り、先の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。

(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を加えて行う。最終の遠沈管の溶液を捨て、数mlの水に鉍物を攪拌して、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、鉍物を残す。(飽和炭酸カリウム溶液を使用した場合は、水洗いを更に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。塩酸を加えるときは、1滴加えて激しく発泡するようであれば数回水洗いを繰り返す。これを遠心分離した後、水を捨て、鉍物を残す。)

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

2mlの水で静かに遠沈管の器壁を洗うよ

うに加え、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、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。この時点で、沈殿物の大部分は鉍物になる。

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、鉍物を残す。器壁についた有機物は湿らせたティッシュで拭き取る。

次に、数mlの水に鉍物を攪拌して、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、鉍物を残す。再度、水を加え、この操作を1回繰り返す。

(3) 炭酸塩の除去と水洗い

1mol/l塩酸2mlを加え鉍物を攪拌する。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、鉍物を残し、アセトンをパスツールピペットで吸い取り、捨てる。このとき、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、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、アセトンで加えて遠心分離する。

(2) TL測定手順

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490℃

昇温スピード：6℃/秒

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。試料皿に載った鉍物が少ないようであれば、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。

鉍物を乗せた試料皿の重量 W_1 (mg)を測定しておく。このときの試料のみの重さ W_1 (mg) - W_0 (mg)が1.0～1.5mgになるようにする。

熱発光測定装置の加熱板が50℃以下になっている事を確認し、その上に鉍物を

載せた試料皿を置き、発光を測定する。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、発光を再度測定し、この発光量を Glow 1' B とする。

鉍物を試料皿に載せたまま照射（1 k Gy）し、遮光して、50℃に保った恒温槽に入れ1晩放置する。

熱ルミネセンス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)

$$W = W_1 - W_0$$

$$\text{TL 発光比} = \text{Glow 1} / \text{Glow 2}$$

ただし、

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

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

v. 放射線照射の判定

① TL 発光比が 0.1 以上である。② グローカーブのピークトップの温度、形

照射施設

ガンマ線（コバルト 60）照射施設：原子力機構・高崎研・食品照射棟第 2 照射室（2006 年 6 月 1 日現在 2,657 T B q、長さ 45 cm、直径 11 mm の棒状線源を 90 本使用）

C 研究結果

1. 標準線量の照射の精度と再現性

表 1 照射線量測定結果

	アラニン線量計測定結果	
	(k Gy)	
1 回目	1.05	1.08
2 回目	1.08	1.08
3 回目	1.09	1.07
4 回目	1.07	1.07
5 回目	1.11	1.08
6 回目	1.07	1.07
7 回目	1.06	1.06
8 回目	1.05	1.05
9 回目	0.90	0.94
10 回目	0.89	0.92
11 回目	0.92	0.95
12 回目	0.92	0.91
13 回目	0.93	0.94
14 回目	0.92	0.92
15 回目	0.95	0.97
16 回目	0.99	1.01
17 回目	0.98	1.00
18 回目	1.01	1.03
19 回目	1.00	1.00
20 回目	0.97	0.98
21 回目	0.98	0.99
22 回目	0.98	0.96
23 回目	0.96	0.96
24 回目	0.97	0.98
25 回目	0.98	0.97
26 回目	0.97	0.96
平均	0.99	
標準偏差		0.06
変動係数%		5.84

ガンマ線照射を伴う実験は 6 月 12 日から 12 月 20 日までの間にわたり行われ、このうち目標線量 1 kGy の場合の合計 26 回の照射実験について線量の精度、再現性を確認するための測定も行った。この場合の実験で得られたアミノグレイ線量計による吸収線量測定結果を表 1 に示す。各照射では 2 個のアミノグレイをセットして測定を行い、1 kGy の目標線量に対し、平均 0.99 kGy、標準偏差 0.06

kGy という値が得られた。

この結果、線量の精度、再現性について満足できる値が得られたといえる。

2. 結晶化度と TL

未結晶の二酸化珪素と結晶化している二酸化珪素を 1 kGy 照射し、TL 装置で測定した発光量測定結果を図 1 に示す。

この結果、結晶化している二酸化珪素では未結晶の二酸化珪素のおよそ 30 倍の発光量があり、また良い再現性を示し

た。

結晶化している二酸化珪素、結晶化していない二酸化珪素についての 1 回目の測定及び測定後そのまま冷却した状態での 2 回目の測定のグローカーブをそれぞれ図 2～図 3 に示す。そして結晶化していない二酸化珪素についてグローカーブを図 4 に示す。図 2 の結晶化している二酸化珪素のグローカーブでは 65 チャンネル付近にピークがあり、30～50 チャンネル付近にわたり肩のあるカーブが観測されている。図に示されているように横軸のチャンネル番号は TL 測定温度を示しており、50 チャンネルはおよそ 165℃に、65 チャンネルは 200℃に対応する。また、200 チャンネル付近で急峻な上昇を示す成分については、測定して加熱した試料の 2 回目の測定結果である図 3 にも観測される。これは装置固有の信号で、この温度領域になると常に光が発生するか、あ

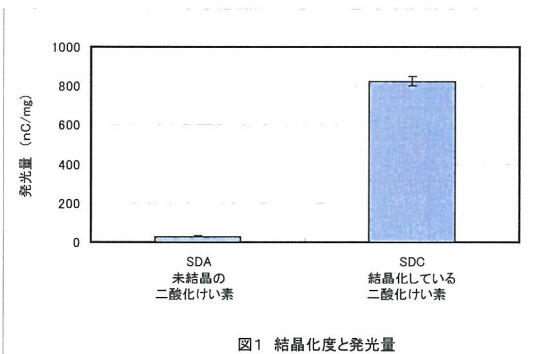


図1 結晶化度と発光量

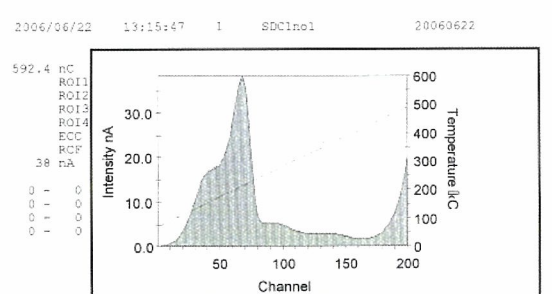


図2 結晶化している二酸化珪素の発光量の一例

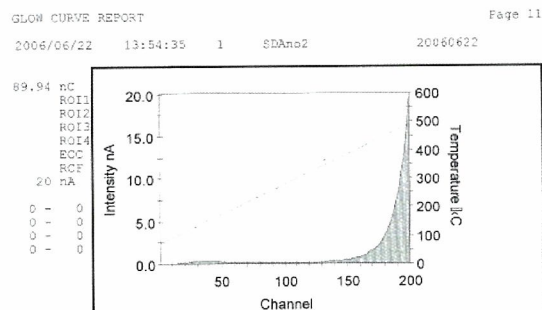


図4 未結晶の二酸化珪素の発光量の一例

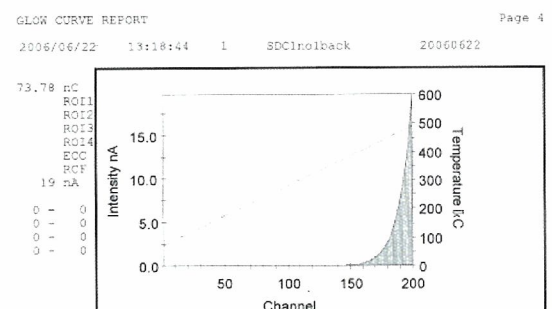


図3 結晶化している二酸化珪素のバックノイズの一例

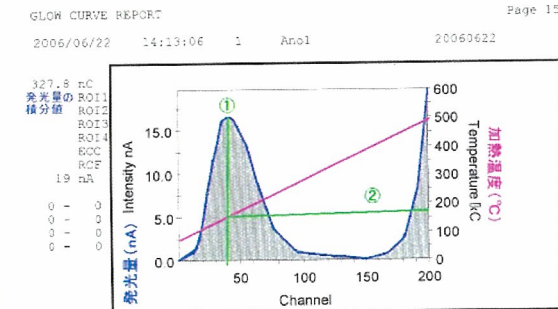


図5 グローカーブの見方

るいは光検出系から電気出力信号が発生してしまうバックグラウンドノイズとして扱うことにする。

また結晶化していない（未結晶）二酸化珪素の測定結果である図4では上記のバックグラウンドノイズは現れるが、照射されている試料であるにも拘らず照射によるグローは観測されていない。このように同じ酸化ケイ素でも結晶化しているものとしていないものとはTL量において大きな違いがあることがわかる。

ここで、TL量または発光量とは、試料測定をしたグローカーブの積分値から同試料の2回目の測定のグローカーブの積分値（バックグラウンドノイズ）を差し引いた値として示している。単位は発光量に対応させnC、または試料の量で規格化する場合にはnC/mg等で表す。なお、図5は「グローカーブの見方」として、本TL測定器により得られる一般的なグローカーブの解説図である。上記のように横軸はチャンネル番号を表し、これは①の直線が横切るX軸のチャンネル番号が②で示す図中右側のY軸の加熱温度に対応すること、図中左側のY軸は発光強度に対応した電流の値（nA）を表示していることを示す。

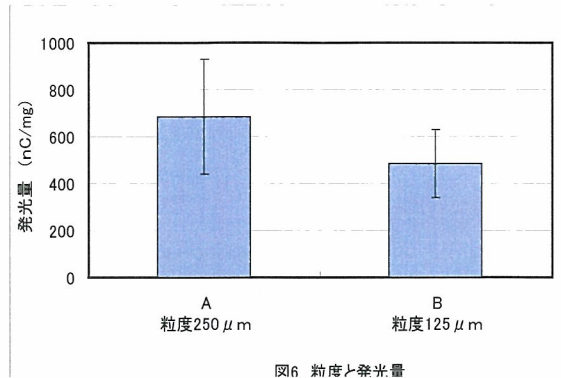


図6 粒度と発光量

3. 鉱物の粒度とTL量

粒度が125 μmと250 μmの種子島の土壌を1 k Gy照射しTL装置で測定したTL量の比較結果を図6に示す。また図7は250 μmの照射試料を測定したグローカーブを、図8は125 μmの照射試料のグローカーブを示す。グローカーブにおいては両者とも200チャンネル付近に急峻な立ち上がりを示すバックグラウンドノイズが観測され、特に125 μm試料の場合では放射線照射による発光成分に対する割合が大きくなっている。

図6に示された発光量はバックグラウンドノイズの分を差し引いた値となっている。この結果では粒度が大きい方は小さいものに比べ約1.5倍の発光量となった。また、このグローカーブの形についてはどちらも40チャンネル付近にピーク

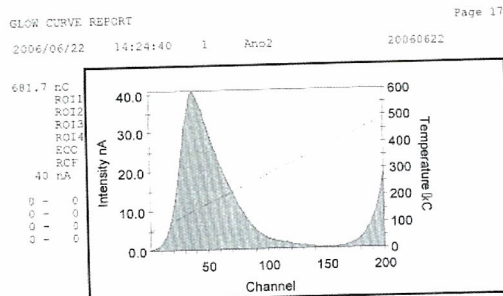


図7 粒度250 μmのグローカーブの一例

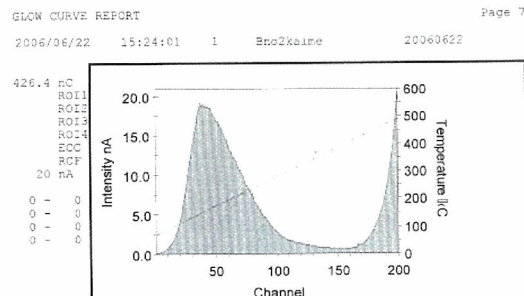


図8 粒度125 μmのグローカーブの一例

のある単純なカーブが照射に対応した成分であることがわかる。

4. 照射後の経時変化と TL 量

JF-1 についての照射後 1 日から 15 日経過までの試料についての発光量の測定結果を図 9 に、そして種子島土壌についての 1 日から 18 日経過までの試料についての結果を図 10 に示す。両者は発光量において大きく異なるが、時間経過による減衰は 15 日間の値では 10% 程度で

きな値ではない状態を示すことがわかる。しかし、発光量の少ない試料ではデータのばらつきが大きくなる。

また、図 11 ~ 14 は JF-1 試料についての照射後 1 日経過、3 日経過、10 日経過、15 日経過のグローカーブを示す。この結果では TL 強度にわずかな変化があるが、カーブの形について経時変化は認められない。

図 15 ~ 18 は種子島土壌についての照

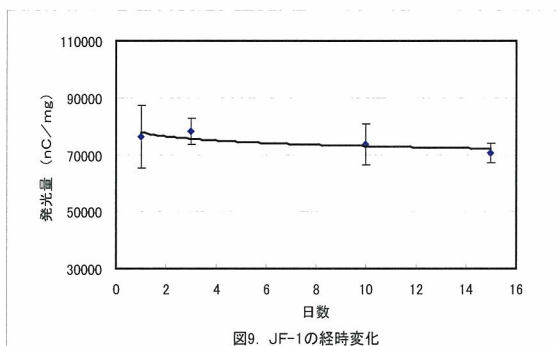


図9. JF-1の経時変化

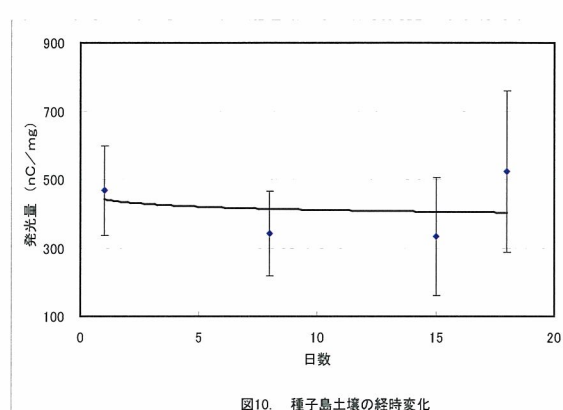


図10. 種子島土壌の経時変化

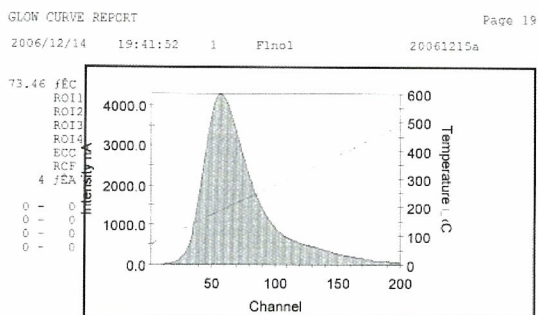


図11. JF-1 1日経過後グローカーブの一例

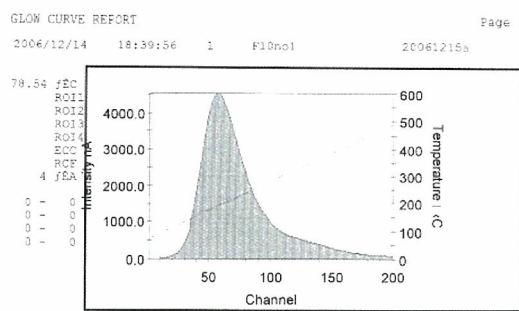


図13. JF-1 10日経過後のグローカーブの一例

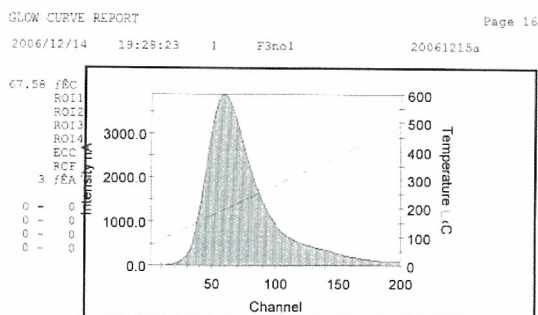


図12. JF-1 3日経過後のグローカーブの一例

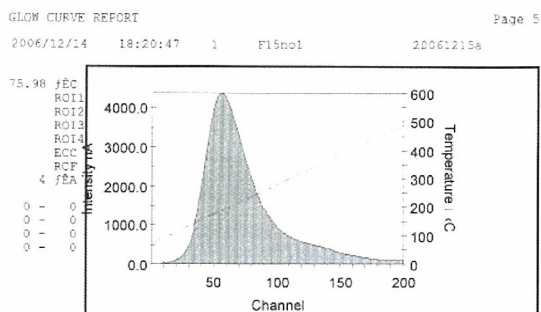


図14. JF-1 15日経過後のグローカーブの一例

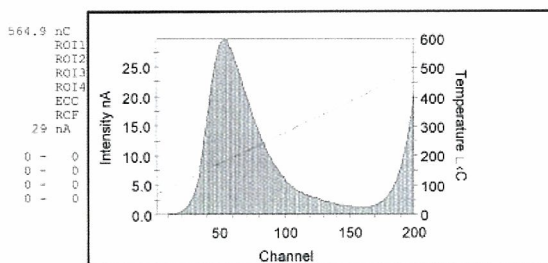


図15. 種子島土壌の1日経過後のグローカーブの一例

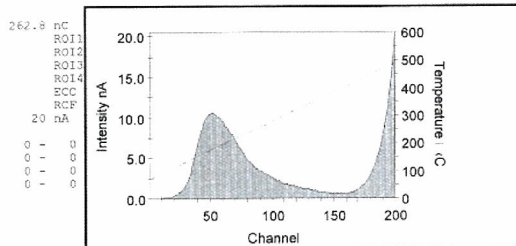


図17 種子島土壌の15日経過後のグローカーブの一例

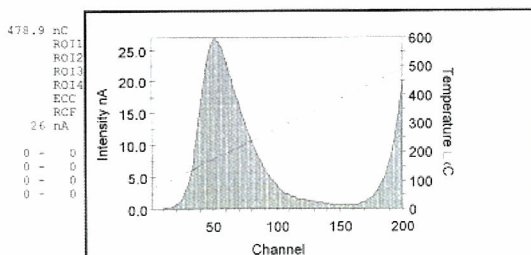


図16 種子島土壌の8日経過後のグローカーブの一例

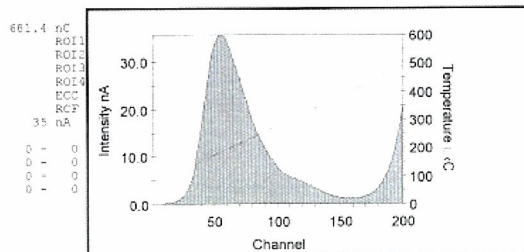


図18 種子島土壌の18日経過後のグローカーブの一例

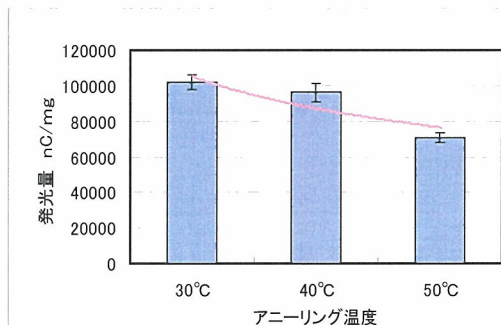


図19. アニール温度と発光量(JF-1)

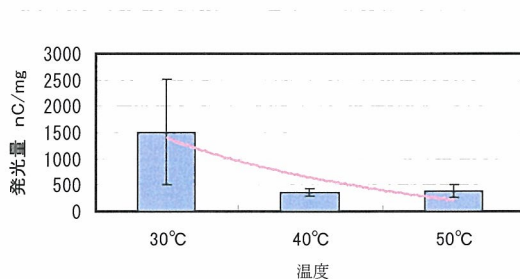


図20. アニール温度と発光量(種子島)

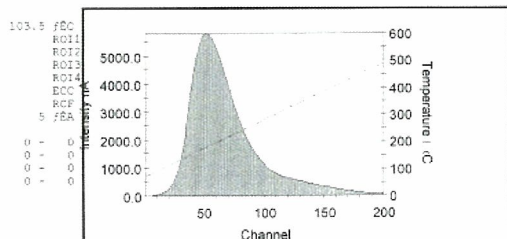


図21 アニール温度40°CにおけるJF-1のグローカーブ

射後1日経過、3日経過、10日経過、15日経過のグローカーブを示す。この結果もTL強度にわずかな差異があるが、カーブの形についての経時変化は認められない。

5. アニール温度とTL量

JF-1及び種子島土壌について30°C、40°C、50°Cでアニールした場合の発光量の変化をそれぞれ図19及び図20に示す。この結果、アニール温度30°Cから50°Cへ上昇するとともに発光量が減少してい

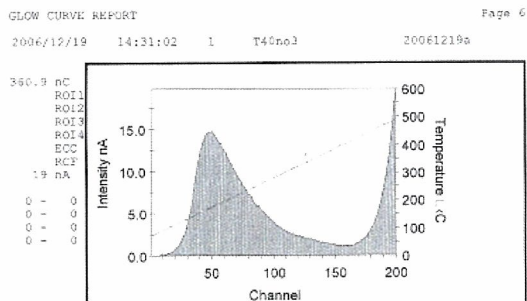


図22 アニール温度40°Cにおける種子島土壌のグローカーブ

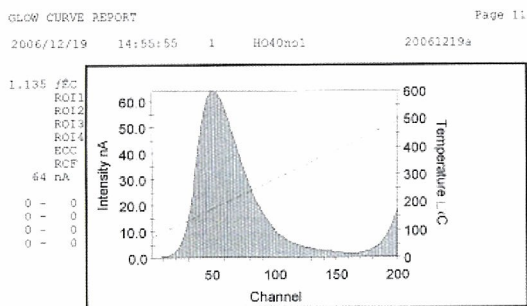


図24 アニール温度40°Cにおける放振協1号のグローカーブ

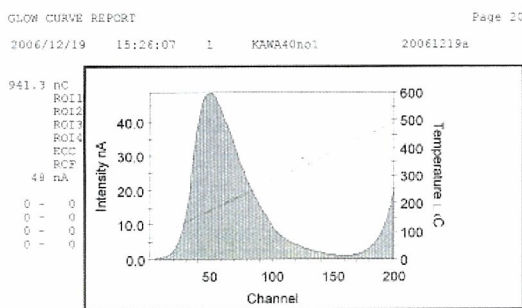


図23 アニール温度40°Cにおける川砂のグローカーブ

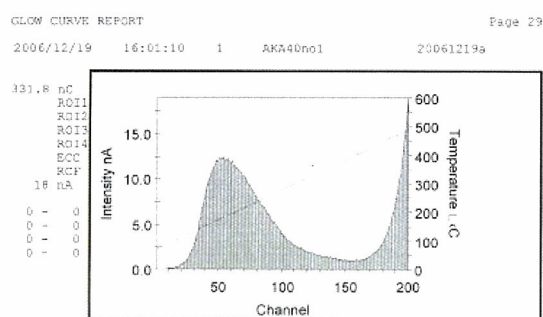


図25 アニール温度40°Cにおける赤玉土のグローカーブ

くことがわかる。しかし、両試料の場合においてアニール温度が50°Cの場合は30°Cや40°Cの場合に比べ各3回の測定における発光量のばらつきが減少していることが分かる。

図19及び図20におけるアニール温度40°Cの場合のグローカーブを図21、22に示す。また参考としてグローカーブの形について比較を行うため、40°Cでアニールした、川砂、赤玉土、放振協1号のグローカーブを図23～25に示す。

6. 発光観測のための線量下限（鉱物単体）

JF-1についてのTL測定器により与えられた線量と発光量との関係を図26に、種子島土壌についての結果を図27に示す。これらの関係は一応直線的にプロットされるが、この結果より線量下限を

求めることはできない。次にJF-1についての10Gy、100Gy及び1000Gyの吸収線量の場合のグローカーブをそれぞれ図28、29、30に示す。さらに種子島土壌について測定結果をそれぞれ図31、32、33に示す。これらの結果より、TL測定器に示される発光量とグローカーブとの対応を調べることができる。吸収線量10GyのJF-1では90チャンネル(250°C)付近に最大のピークがあり、130チャンネル及び40チャンネル付近に肩のあるカーブとなっている。これが、吸収線量100Gyの場合には50チャンネル付近に最大のピークが現れ、90チャンネル付近は肩となり、さらに130チャンネルの肩はほぼ消失したカーブとなる。この結果、JF-1の放射線照射によるピークはこの50チャンネル付近に生

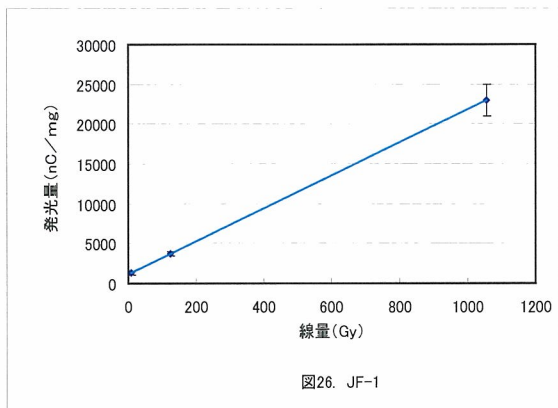


図26. JF-1

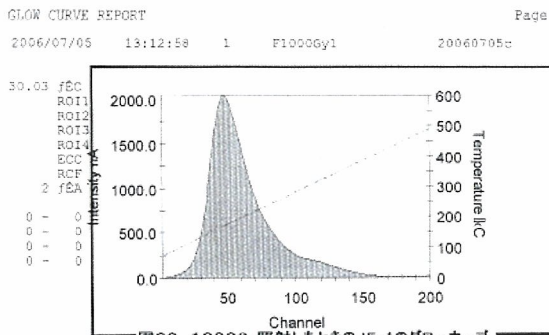


図30 100Gy照射したときのJF-1のグローカーブ

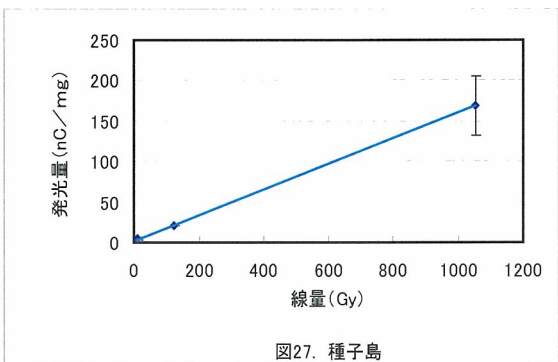


図27. 種子島

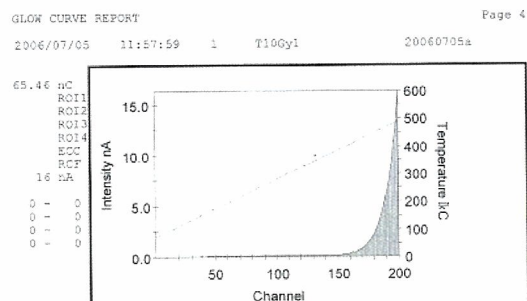


図31 10Gy照射したときの種子島土壌のグローカーブ

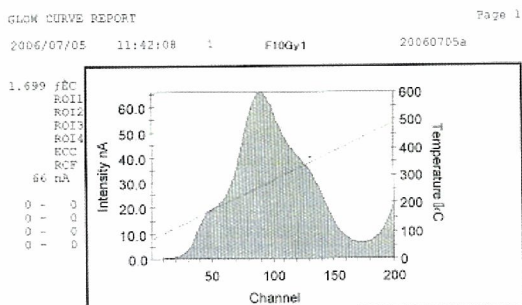


図28 10Gy照射したJF-1のグローカーブ

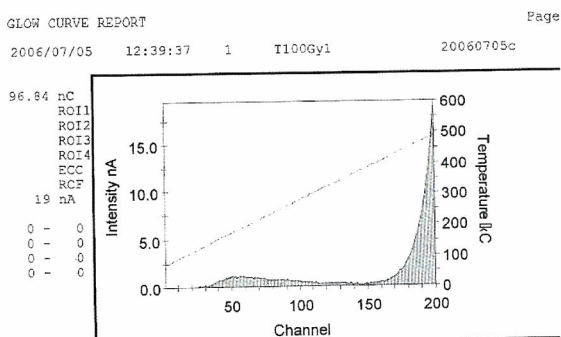


図32 100Gy照射したときの種子島土壌のグローカーブ

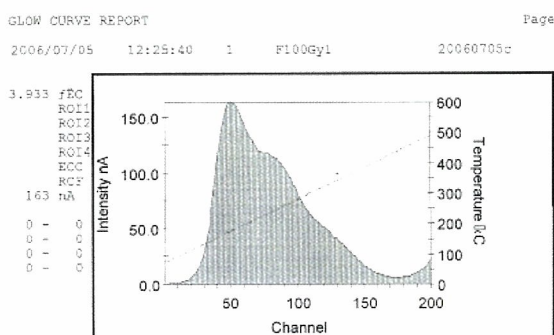


図29 100Gy照射したJF-1のグローカーブ

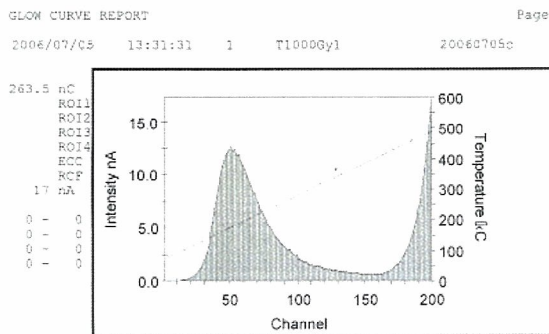


図33 1000Gy照射したときの種子島土壌のグローカーブ

じるものであることが推察される。さらに、1000Gyのグローカーブではこの50チャンネルのピークのみとなり、これが放射線照射に対応する発光であることが分かる。本TL測定器による測定は発光のピークが自動的に画面のフルスケールになるように設定してあるので、このようにグローカーブの形を観察するためには都合が良い。一方、種子島土壌の場合には10Gy照射試料ではバックグラウンドノイズが現れているのみで、100Gyの試料で50チャンネル付近にピークのある発光がわずかに現れ、これが放射線照射に対応するものであることが推定される。

そして1000Gy照射試料ではこの50チャンネル付近のピークが大きくなり、バックグラウンドノイズとそのピークの高さにおいて同程度となることが分かる。上記の結果、JF-1では100Gy程度が、そして種子島土壌では1000Gy程度が放射線照射に対応した発光を観測するための最小線量といえる。

7. 標準線量の最適化

2 k Gyとなるガンマ線照射を行い、Glow1を求めたJF-1及び種子島土壌について、0.25 k Gy、0.5 k Gy及び1 k

Gyの再照射を行いGlow2をもとめ、それぞれの試料についてTL比を求めた結果を図34に示す。この図で上の曲線はJF-1を下曲線が種子島土壌の結果を示す。上記のように、Glow1を与えた線量は2 k Gyであるので、0.25 ~ 1 k Gy照射した試料の発光量が線量に比例すれば、TL比はそれぞれ8、4、2となるはずであるが、両者ともそれよりも小さい値を示した。特に種子島土壌の場合の方が低い値を示している。

各試料についてのGlow2の測定結果を図35 ~ 40に示す。これらの測定結果より、JF-1の場合は、0.25 k Gy、0.5 k Gy、1.0 k Gyの各測定試料において50チャンネル付近にピークのある単純なグ

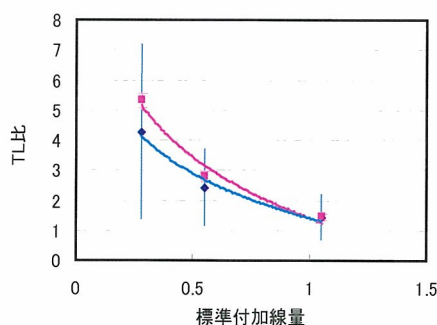


図34. 標準付加線量とTL比

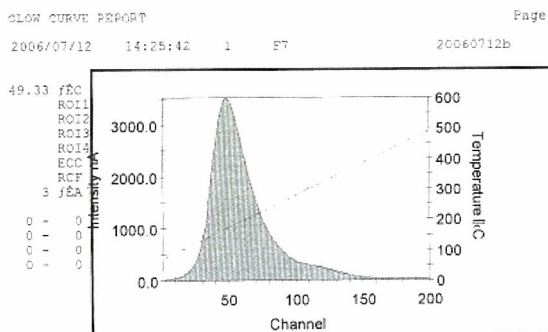


図35 0.25kGy照射したときのJF-1のグローカーブ

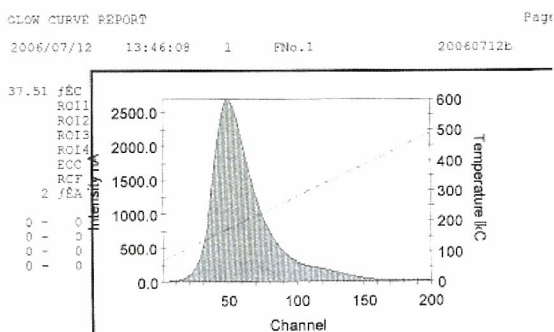


図37 1kGy照射したときのJF-1のグローカーブ

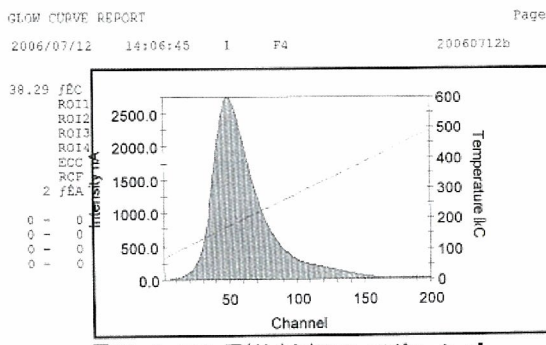


図36 0.5kGy照射したときのJF-1のグローカーブ

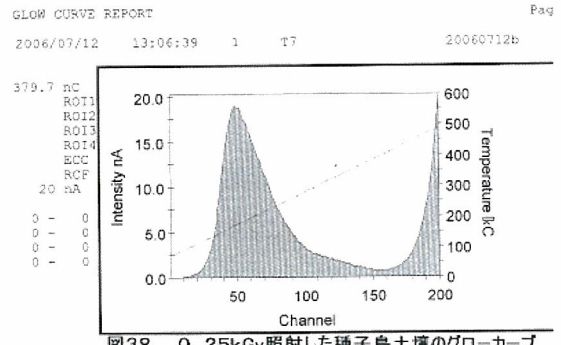


図38 0.25kGy照射した種子島土壤のグローカーブ

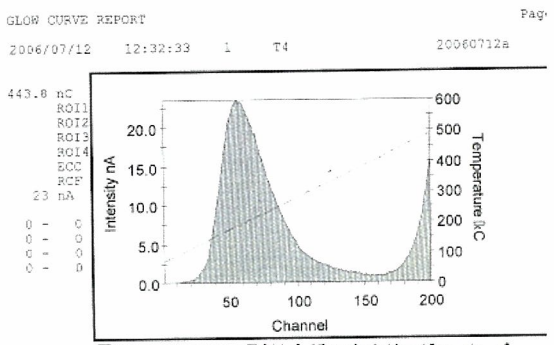


図39 0.5kGy照射した種子島土壤のグローカーブ

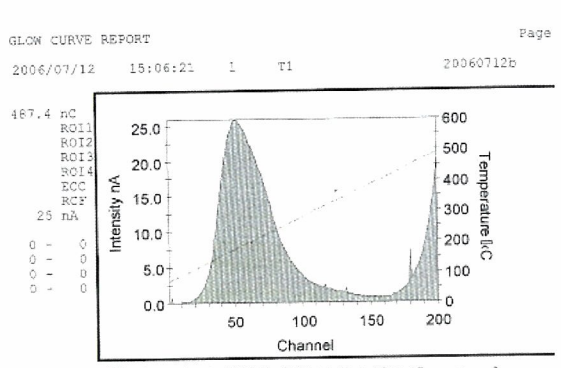


図40 1kGy照射した種子島土壤のグローカーブ

ローカーブが得られ、これは照射による発光であり、ノイズレベルは無視できるほど小さい。この結果、JF-1においてはいずれも添加照射のための線量として適切と思われる。また、種子島土壤の場合は0.25 k Gy ~ 1 k Gy 試料の各測定においてはバックグラウンドノイズが無視できない程度に大きいことがわかる。これについてはこれを測定した後に再度測定を行うことにより得られるバックグラウンドノイズを差し引くことにより正味の発光を決定することができるので、原理的にはGlow2として用いることができる。

しかし、真のノイズの値については最初の測定における値が不明である要素もあり、検知を行うための基盤である

Glow2としては十分な性能とはいえない。実際に、この線量領域の試料のTL量の測定においては個体間のばら付きが大きい。

8. 添加回収

予備的な実験として実施したブラックペッパーに放振協1号砂（赤玉土：川砂 = 1：1）を添加し、上記で示した抽出回収を行った結果を図41に示す。ここ

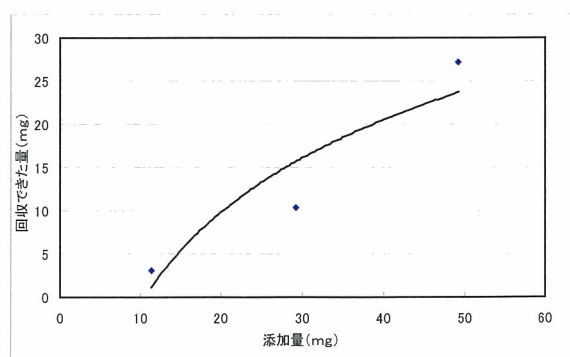


図41. 添加量と回収量