

表 7-14 グルコース 5kGy(粒度 63~250 μ m 目開き)表 7-12 スクロース (粒度 500 μ m 目開き)

No	照射量 (Gy)	g 値	g 値 (μ)	g 值 (σ)	g 値 CV%
4	0	2.036	2.036	0.001	0.037
5	0	2.036			
6	0	2.037			
10	1	2.007	2.007	0.000	0.024
23	1	2.006			
24	1	2.007			
25	2	2.007	2.007	0.000	0.014
26	2	2.006			
27	2	2.007			
28	5	2.007	2.007	0.000	0.012
29	5	2.007			
30	5	2.007			
31	10	2.007	2.006	0.000	0.006
32	10	2.006			
33	10	2.006			

表 7-13 フルクトース (粒度 250 μ m 目開き)

No	照射量 (Gy)	g 値	g 値 (μ)	g 值 (σ)	g 値 CV%
7	0	2.037	2.037	0.000	0.015
8	0	2.037			
9	0	2.036			
11	1	2.004	2.004	0.000	0.001
12	1	2.004			
13	1	2.004			
14	2	2.004	2.004	0.000	0.003
15	2	2.004			
16	2	2.004			
17	5	2.005	2.005	0.000	0.006
18	5	2.005			
19	5	2.005			
20	10	2.006	2.006	0.000	0.022
21	10	2.007			
22	10	2.006			

表 7-15 フルクトース 5kGy(粒度 500~250 μ m 目開き)

No	照射量 (Gy)	g 値	g 値 (μ)	g 值 (σ)	g 値 CV%
217	5	2.005	2.005	0.000	0.007
218	5	2.005			
219	5	2.005			
17	5	2.005	2.005	0.000	0.006
18	5	2.005			
19	5	2.005			

表 7-16 スクロース 5kGy(粒度 63~500 μ m 目開き)

No	照射量 (Gy)	g 値	g 値 (μ)	g 值 (σ)	g 值 CV%
28	5	2.007	2.007	0.000	0.012
29	5	2.007			
30	5	2.007			
220	5	2.007	2.007	0.000	0.004
221	5	2.007			
222	5	2.007			
223	5	2.007	2.007	0.000	0.001
224	5	2.007			
225	5	2.007			
226	5	2.007	2.007		

そして、これらの図 7-1～7-13 の線量とスペクトルの高さの関係については線量増加とともに明らかにスペクトルの高さ（編者注：ESR シグナル強度？）が増大することが言える。但し、図 7-1 に示すアンズについては変化が少ない結果を示した。しかし、後で述べる乾燥保存後の同試料においては線量とともにスペクトルの高さが増大している結果を見ると、この場合には乾燥処理が不十分であったことが考えられる。（編者注：実験の経過：6 ヶ月間もシリカゲル入りデシケータで乾燥したことから、試料の乾燥は十分であると考えられる。従って、ESR 装置のオペレーションに問題があると考えられる。）

また、スピリルナでは未照射のスペクトルの高さが他の健康食品と比較して高い値を示している。そして、照射量が増えても比較的スペクトルの高さが増えないことがグラフから見ることが出来る。この原因については不明である。

その他、粒度とスペクトルの高さの関係についてはスクロースについては目開きが $63 \mu\text{m}$ から、 $500 \mu\text{m}$ へ細かくなるに従い、ピークの高さが低くなる変化が見られた。

7-2 保存時間による信号強度の変化

照射後 6 日以内に第 1 回目の ESR 測定を行い、その 1 ヶ月後に同試料を再度測定した。そして、第 1 回目の測定結果と第 2 回目の測定結果を比較の為にまとめ、D. 考察の図 7-1 から図 7-16 にその関係を示す。

D. 考察

1. 鉱物の回収率を高める為の検討（添加回収実験）

昨年度と比べフェヌグリークとブラックペッパーの回収率は上昇した。これらは有機物と鉱物の分離がし易く、また炭酸塩が少な

い香辛料であり、回収技術の向上と共に、香辛料を入れた袋の洗浄に力を入れたことが有効であったと考えられる。

パプリカやターメリックは、鉱物と有機物の分離がしにくい性質の香辛料である。そのため、18 年度も 19 年度もフェヌグリークやブラックペッパーに比べ高い回収率を示している。

ターメリックにおいては、大幅に回収率が減少しているが、これは有機物の混入を目視で確認し、効果的に除去することができるようになったためと考えている。つまり、有機物を多く含んだ見かけの回収率が、純粋な鉱物だけの回収率に近づいたものと考えられる。

それに比べ、パプリカは 200% 近い高回収率のままほとんど変化していない。有機物の除去が依然不十分であると考えられるので、今後さらに検討する必要がある。

黒ゴマの場合、溶液が黒く濁り、砂と見分けが困難である。その反面、ホワイトペッパーなどの場合には砂の見分けがし易く、有機物も少ないため、作業性は良いが回収される砂の量が他の香辛料より少ない。また、カエンペッパーとローレルでは洗浄する際、浮いてしまうため作業性が悪く、他の香辛料と同様な洗浄方法では、約 3000 ml の水と 3 時間という長時間を要した。そこで、ビーカーにある程度水を入れ、その中で香辛料を灌ぐ要領で作業を行ったところ、使用する水は 2000 ml 程度で回収率も前者と劣らない回収結果が得られた。次にシナモンであるが形状が 50cm 程度の長い棒状であるため作業性が悪い。このため、袋の上から手で $15 \sim 20 \text{ cm}$ 程度に折り、洗浄する方法にした。碎く際に袋を破損するおそれがあるため作業には注意

を要する。最後にオレガノについては他には見られない程多量の沈殿物があり 2ml の塩酸を入れたところ、かなりの気泡が発生した。この反応が落着くまでにさらに、塩酸 6ml を加えた。このオレガノについてはかなり高い回収率が得られた。今後は、砂を添加しない状態で鉱物回収実験を行い、香辛料由来の鉱物量を確認する必要がある。また今回の作業については有機物や水分除去が十分に行われたように思われるが、これは回収実験であり、TL 測定において加熱をしてみなければ、有機物がない状態になったのか確認はできない。

(編者注：実験担当者に添加回収実験を実行するための知識と技術が不足しており、これらの改善を再三再四お願いした。また、TL 法手順からの意図的な逸脱もあり、残念ながら、ここに記載されている内容はほとんど意味を持っておらず、今後さらに別の機関で検討する必要がある。)

2. 標準照射の精度と再現性の向上

これまでの、月ごとに作成される線量分布表から照射試料の配置を検討する方法では作成から時間が経過した分布表は放射能の減衰から照射位置が実際の値と異なり線量の誤差が生じる原因となっていた。

今回作成した減衰補正の計算式を使用し、照射日毎に計算して照射位置を求めてことで照射の再現性向上が可能となった。

そして、研究方法 2-1 項の図 2-1 で説明した試料をテープにより箱に貼る方法では再現性に問題はないが作業効率が良くないため、写真 2-3 に示すアクリル製の専用照射台を製作した。材料にアクリルを使用した理由は γ 線の遮蔽の影響が少なく照射が可能になることである。また、今回から試料をテープで貼る

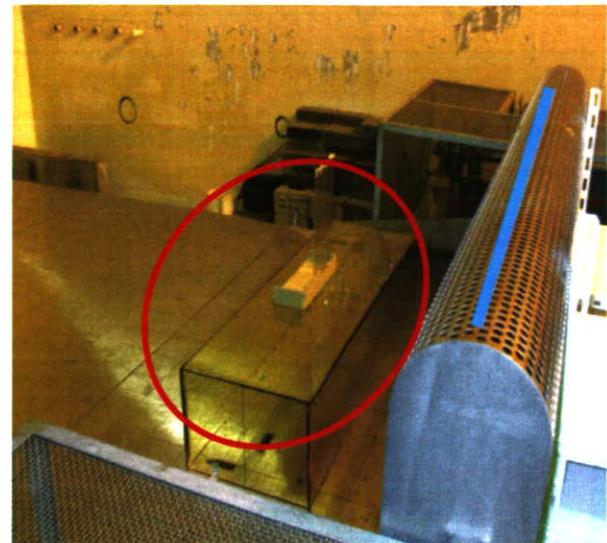


写真 2-3 アクリル照射台
写真赤枠が照射台、水色部 Co-60 線源

のではなく台の上に置くことにより作業効率も良くなった。

(編者注：図 2-6 から明らかなように、調整しても、0.02Gy の目標値からのはずれがあり、さらに、向上を目指す必要がある。誤差の生じる原因是線量測定に用いるアミノグレイにあるとも考えられる（重量偏差が大きく誤差が大きな線量計であるといわれている。）ので、他の線量計による線量管理を検討する必要があるだろう。)

3. TL 測定器の性能確認及び校正用標準試料の探索

TLD 素子に代わる試薬を模索する為に数種の試薬及び岩石試料 JG-1 や JF-1 などについて TL 測定を行った結果、標準岩石試料については、前処理をしなくても十分な発光が得られることがわかった。このように標準岩石試料については、TLD 素子を照射して繰り返し使うことよりも、手軽で、かつ、安価な点からもモニターとして利用できる可能性があると思われる。

また、 SiO_2 の量が多い程、発光量が大きくなる。

なるという推定（編者注：仮定？）の下に含有成分（組成）が分かっている2種類の標準岩石試料（JF-1とJG-1）を調べたが、 SiO_2 の多いJG-1よりも SiO_2 の少ないJF-1の方がTLの発光量は多いという結果が得られた。また、試薬として売られている SiO_2 （RSI）は、ピークが2つあるのに対し、標準岩石試料は、ピークが1つである。こうしたことから、 SiO_2 の発光量以外に別の物質が関わっている可能性が推測された。例えば、JG-1とJF-1を比較すると、JF-1の方が Al_2O_3 の含有量が高く、今後、 Al_2O_3 の含有量と発光の関係を調べる必要がありそうである。

4. 新規香辛料についての添加回収実験

新規の香辛料についての添加回収実験では、クミンシード、アニスシード、ベイリーブス、フェンネル、スターAnis、クローブスにおいて鉱物の適切な回収が行え、TL法が適用できる見通しが得られた。しかし、今回は、炭酸塩の存在が顕著に現れることが多かった。今回は葉類である香辛料が多く、この場合に炭酸塩が多く含まれるようである。（編者注：根拠がない。）これらの栽培には、マジョラム、ミントは、ほぼ中性の土壌を、タイムは、弱アルカリの土壌を好むとされる。その為、栽培する土壌が酸性土壌の場合は、栽培時に石灰を撒く。この石灰と抽出の際の炭酸塩の量に何らかの関係があるようと思われる。（編者注：他機関の結果を見ても、このような激しい反応を観察した例はなく、実験手順に何らかの手違いがあったと考えられる。）

5. 鉱物分離用比重液の検討

鉱物抽出過程に用いるポリタンクステン酸ナトリウム溶液と飽和タンクステン酸ナトリウム溶液を比較すると、密度がそれぞれ、2.0、

1.5となるということで、分離には前者の方が有利となる。50mlの遠心管による実験においても、その差が確認できた。（編者注：この文章は意味不明。）しかし、その場合、上部に残った有機物層では乾燥した結果硬くなってしまい、パストールピペットの破損を招く可能性さえ感じられた。また、ポリタンクステン酸ナトリウム溶液は、飽和タンクステン酸ナトリウムに比べ高価であることは言うまでもなく、数多くの処理を行う場合には大きな問題となる。経験を重ねることにより、技術的な向上が得られることにより、技術的に飽和タンクステン酸ナトリウム溶液を使ってもかなりの抽出は行えるようになる。しかし、限界もある。このため、この比重液を大量に用いる第1回目の抽出には飽和タンクステン酸ナトリウム溶液を用い、有機物と鉱物が混在している形になった第2回目以降の抽出にポリタンクステン酸ナトリウム溶液を用いる方法も経済性および高抽出率を得るために有効ではないかと思われる。

6. TL法の簡略化についての検討

今回実施した、簡略試験であるが加熱前の試料における量と加熱後の残された重量から先に述べるようにTL法の簡略法としては困難である。しかし、残ったものについて、成分を調べたり、数種類の香辛料においても同様な加熱試験を実施し残留物の割合や、鉱物が残るか、検討する必要があると思える。（編者注：蓋のない状況で高温加熱しており、残渣量は信頼できる値を与えないだろう。）

7. ESR法の検討

7-1 試料の表示される成分

試料である乾燥果実表7-17及び健康食表7-18について表示される成分をまとめた。

表 7-17 乾燥果実

品名	表示成分
マンゴー	マンゴー、砂糖、酸味料、漂白剤（亜硫酸塩）、着色料（赤 40）、植物油、香料
アンズ	アンズ、漂白剤（亜硫酸塩）
ブルーベリー	ブルーベリー、砂糖、植物油（サンフラワーオイル）
パイン	パイナップル、砂糖、酸味料、漂白剤（亜硫酸塩）
イチジク	イチジク

表 7-17 健康食品

品名	表示成分
アロエ	キダチアロエ
ウコン	ウコンエキス、デキストリン、麦芽糖、甘草抽出物、メチオニン、ショ糖脂肪酸エステル、シェラック
キトサン	キトサン、粉末還元麦芽糖、キトサンオリゴ糖、ショ糖脂肪酸エステル、菜種油種粉末
マカ	マカ、乳糖、セルロース、ショ糖エステル、ビタミン E (大豆由来)
スピルリナ	スピルリナ

7-2 照射後測定試料と保存試料の測定結果

照射した乾燥果実、健康食品及び糖類の測定は γ 線照射後 6 日以内と照射後約 1 ヶ月経過後に行った。そして、両者を比較するため同一グラフにプロット下結果を図 7-1 から図 7-16 に示した。結果は糖類については保存の前後でピークの変化は、ほとんど見られなかった。乾燥果実及び健康食品については、一部の試料を除き、大きな変化はなかった。そして、変化が現れた試料は乾燥果実の

アンズとイチジク、そして健康食品のスピルナを含む健康食品である。

アンズは照射量 1kGy と 10kGy に、イチジクは 5kGy に変化が現れた。現時点では、これらの理由については特定できていない。しかし、他の照射量については、保管の前後で差がないため、試料によるばらつきも理由として考えられる。

しかし、スピルナを含む健康食品については、ピークが全照射量域において減少しているため、生成されたラジカルが他の試料と比較して短時間で消滅するものと思われる。

その他、糖類の粒度に対する信号の変化であるがグルコースとフルクトースにおいては変化は見られなかったが、スクロースは粒が細かくなるに従い、ピークが減る傾向になった。試料は全て同じ保管状況であるため、水分量の誘電損失などは考えられないことから、粉碎による熱や摩擦が原因のラジカル消滅を考えられる。ESR 測定試料の場合、粉碎における熱や摩耗によるラジカル消滅⁷⁾、そして試料の結晶軸やラジカル分子軸と磁場の方向との角度によって異なる g 値を示す場合、多結晶や粉末のスペクトルは雑多な方向に向いた微結晶の ESR スペクトルの重ね合わせとなる⁸⁾。以上のことが要因となり、粒度によるスペクトルに違いが現れたと思われる。また、測定した粒度の設定幅も関係すると思われる。グルコースは 63 ~ 250 μ m 目開き、フルクトースは 250 と 500 μ m 目開きであるのに対し、スクロースについては 63 ~ 500 μ m 目開きの広範囲で試験を実施した。

そして、ESR スペクトルの測定結果を乾燥果実について図 7-17 から 7-21、健康食品について図 7-22 から図 7-26、そして糖類については、図 7-27 から図 7-29 に示す。

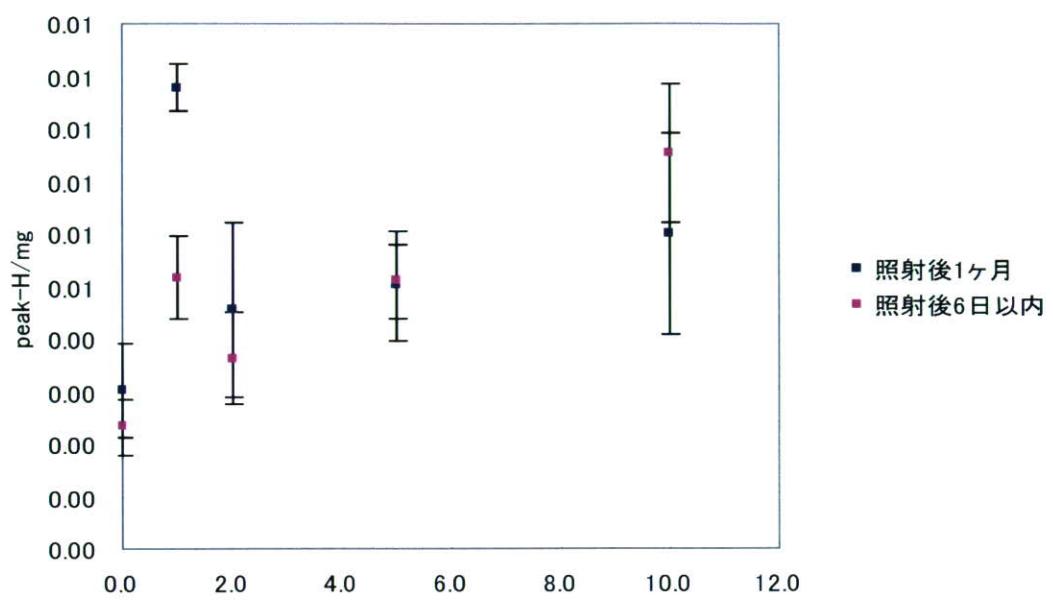


図7-1 乾燥果実アンズ

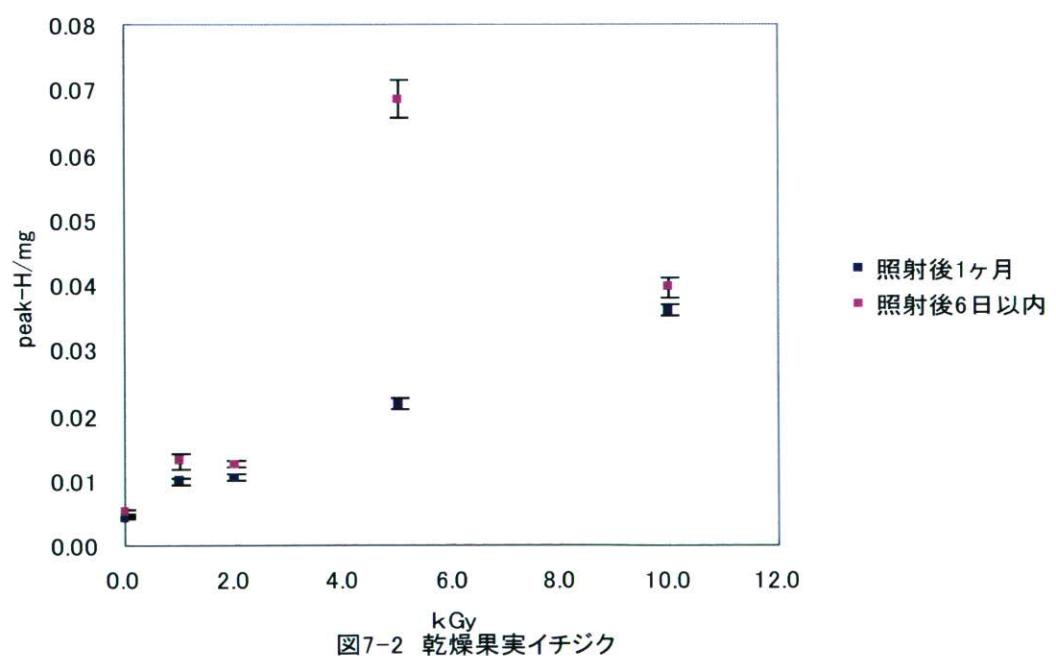


図7-2 乾燥果実イチジク

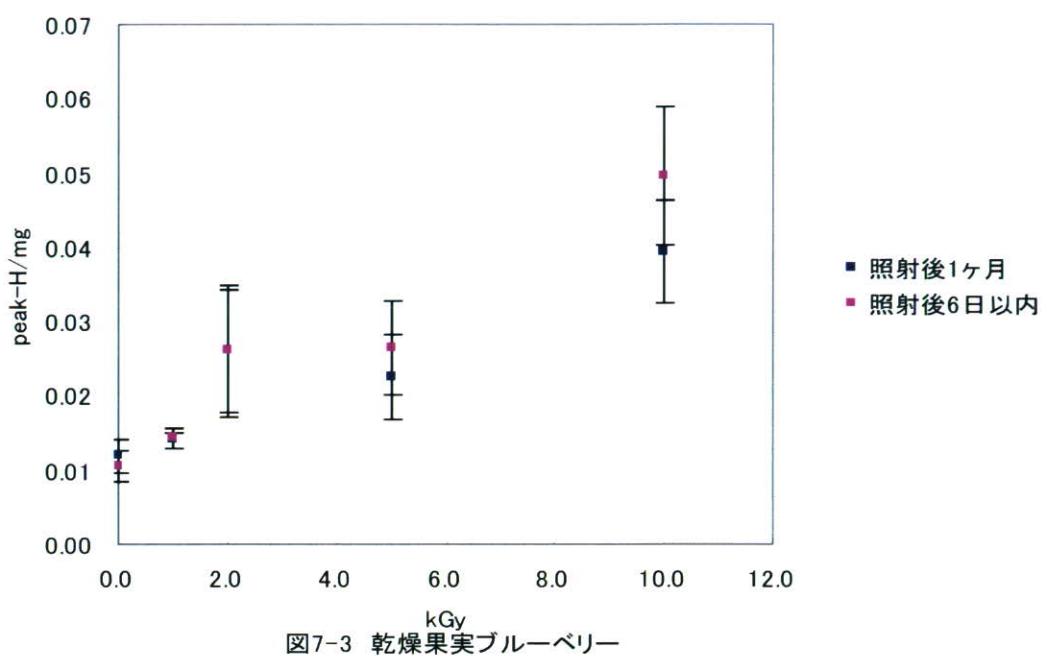


図7-3 乾燥果実ブルーベリー

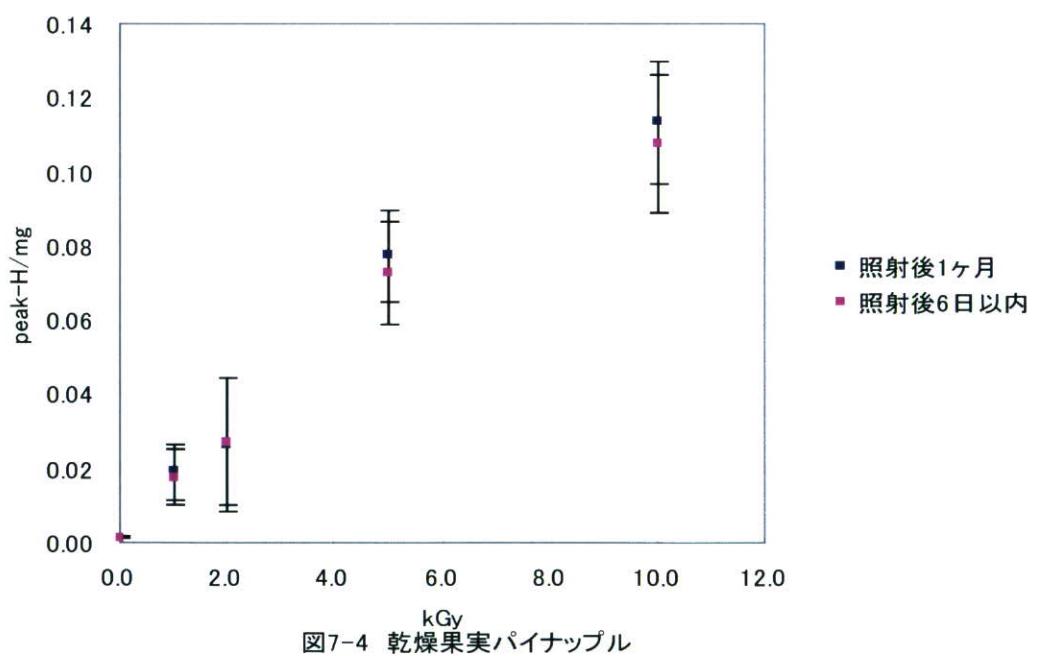


図7-4 乾燥果実パインアップル

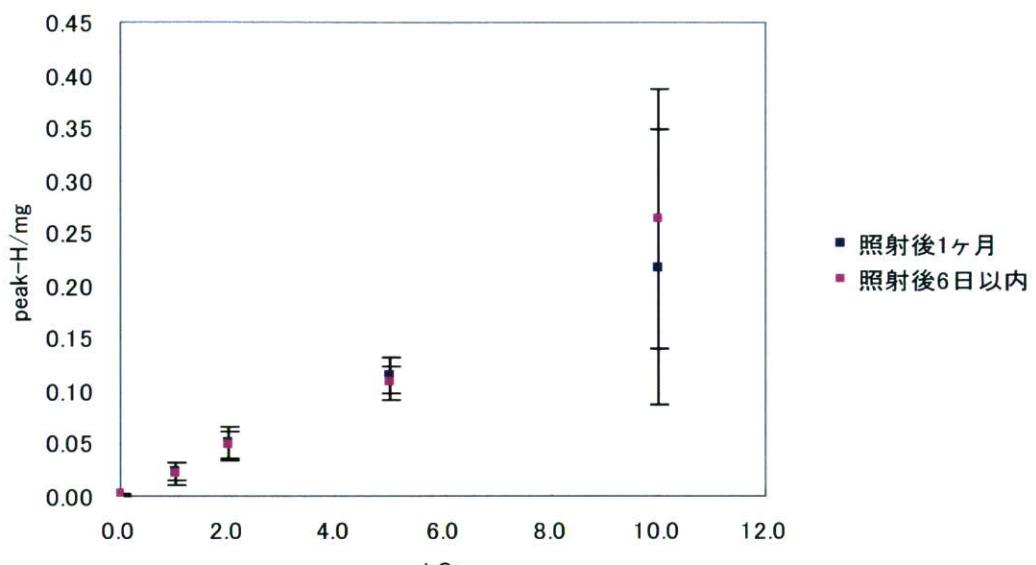


図7-5 乾燥果実マンゴー

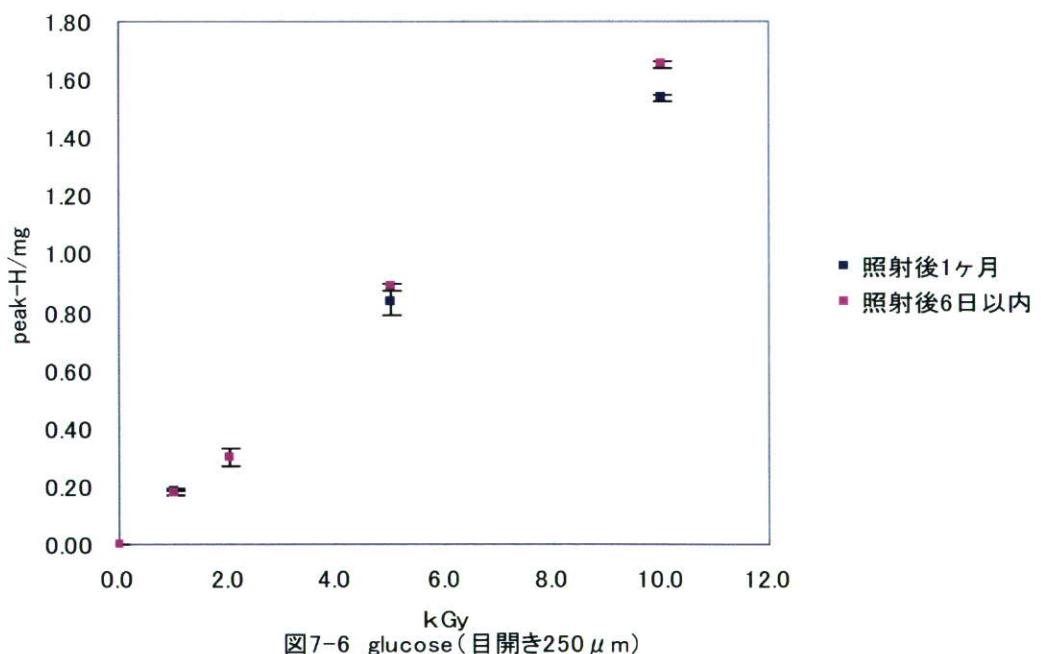
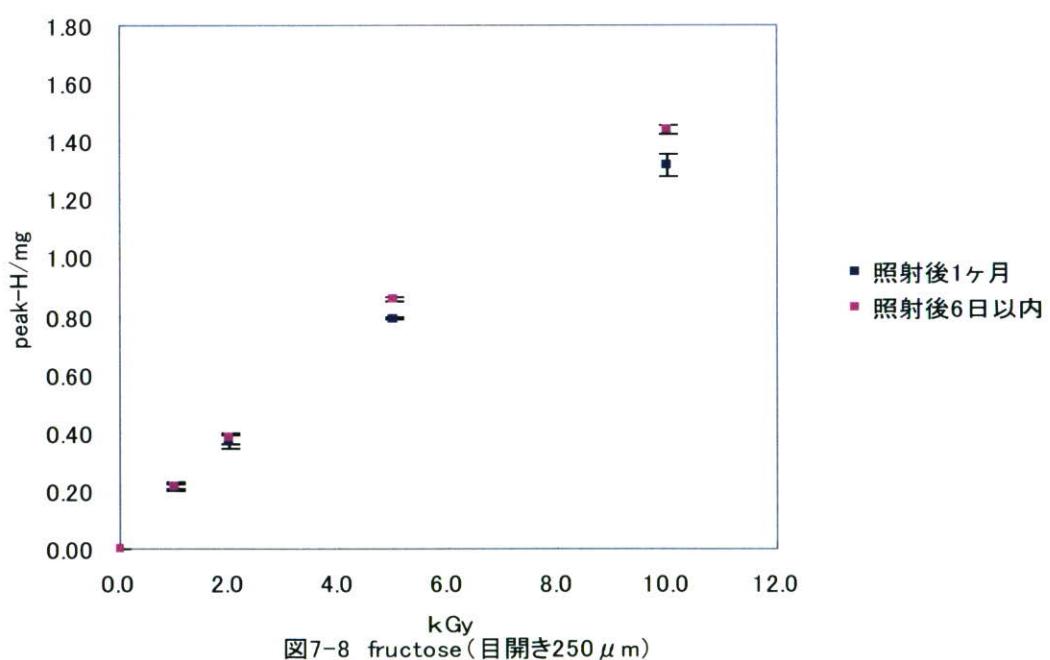
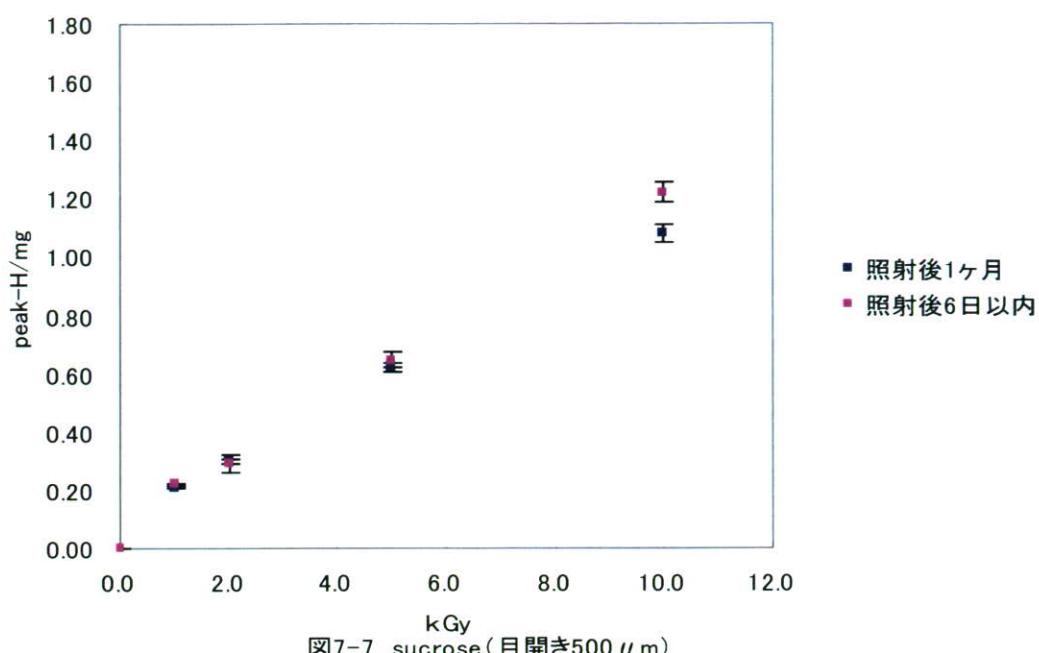


図7-6 glucose(目開き $250\mu\text{m}$)



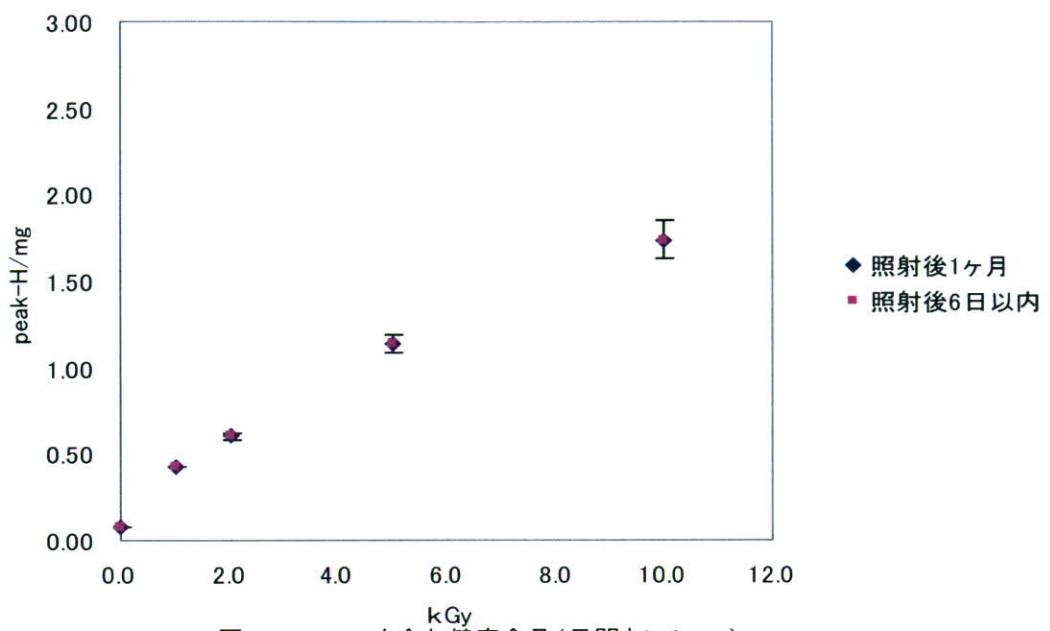


図7-9 アロエを含む健康食品(目開き $250\ \mu m$)

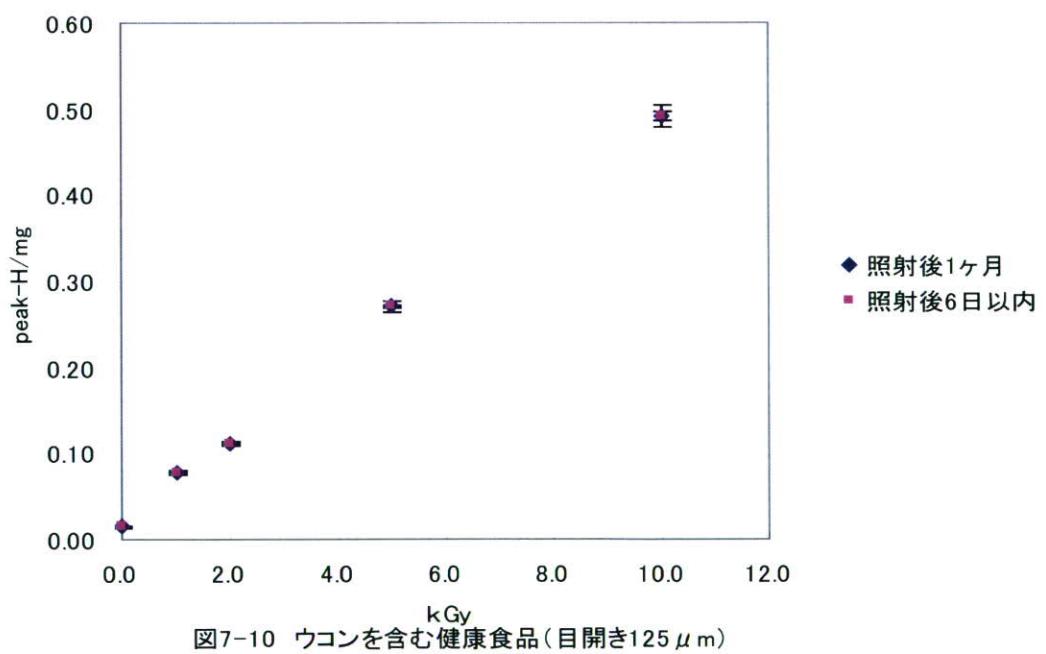


図7-10 ウコンを含む健康食品(目開き $125\ \mu m$)

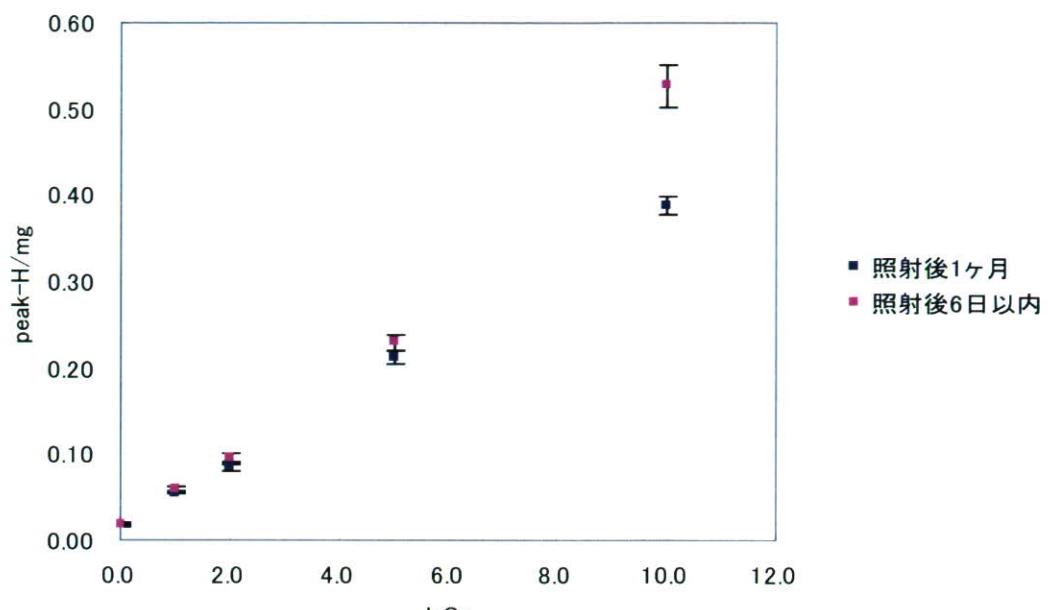


図7-11 キトサンを含む健康食品(目開き $125\mu\text{m}$)

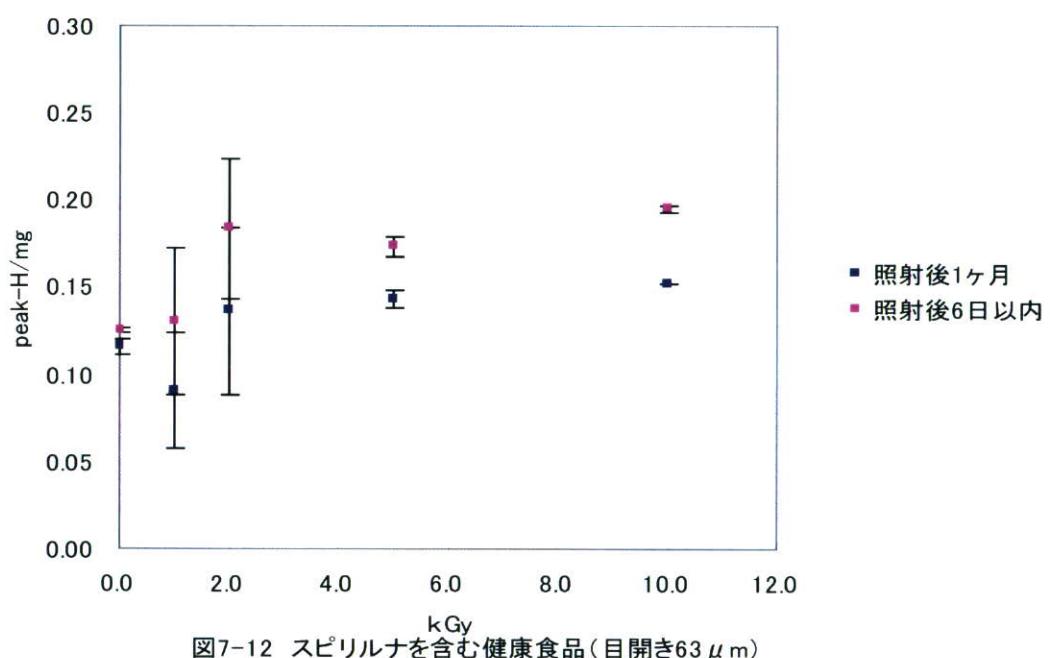


図7-12 スピリルナを含む健康食品(目開き $63\mu\text{m}$)

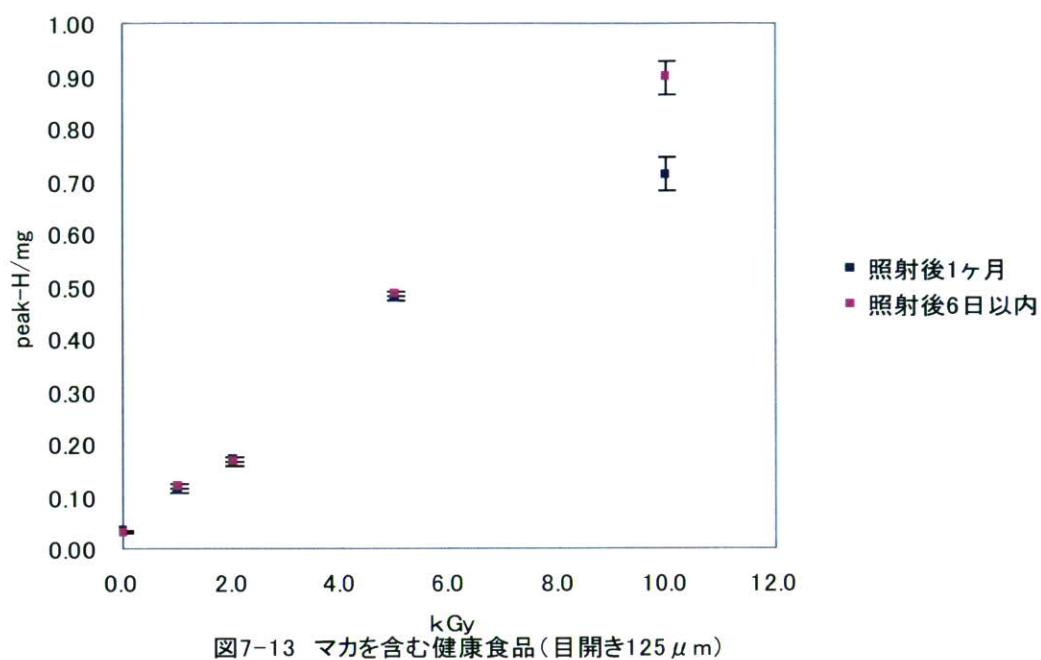


図7-13 マ力を含む健康食品(目開き $125\mu\text{m}$)

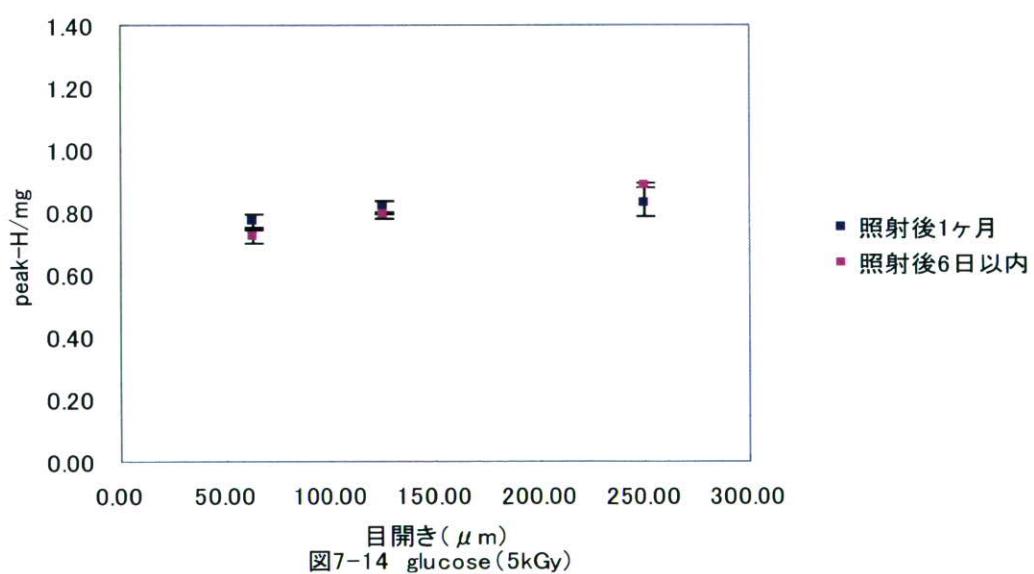
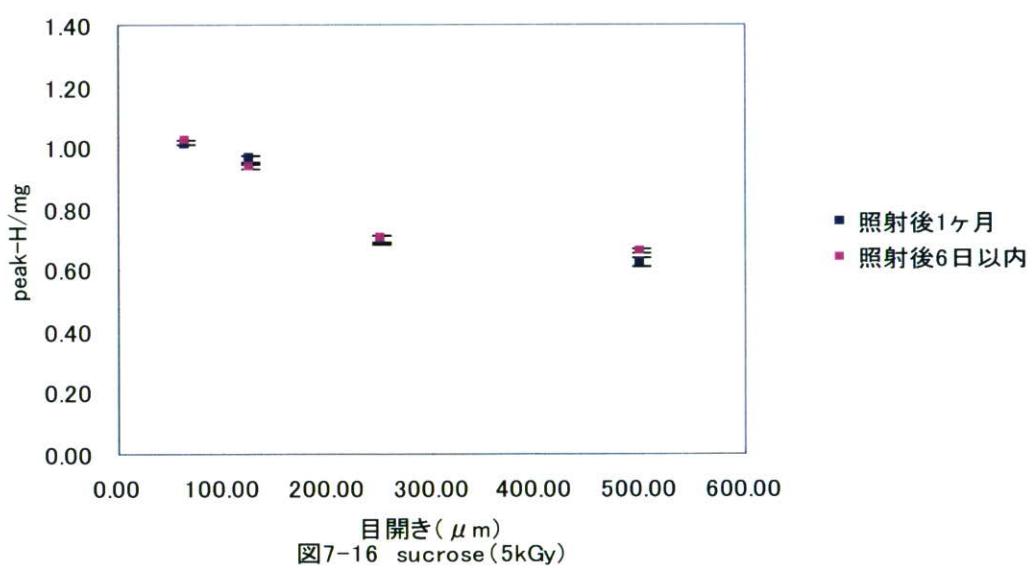
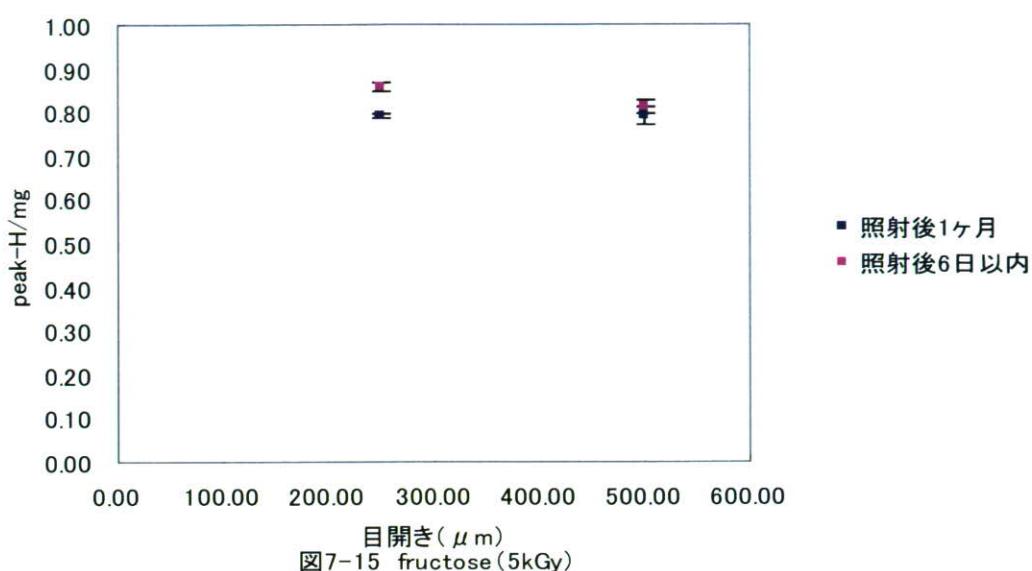


図7-14 glucose(5kGy)



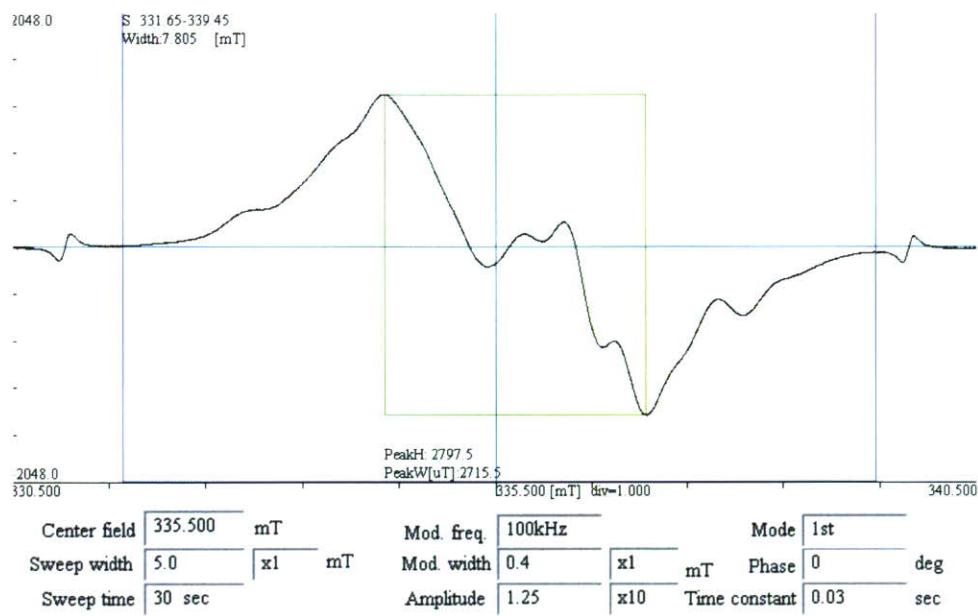


図 7-17 乾燥果実 アロエ (照射量 10 k Gy)

編者注：このスペクトルは図 7-26 と明らかに異なり、同じ試料の ESR ではない。7-17 か 7-26 のいずれかが誤りと考えられる。この 7-17 はシュークロースのスペクトル（図 7-29 参照）に酷似している。

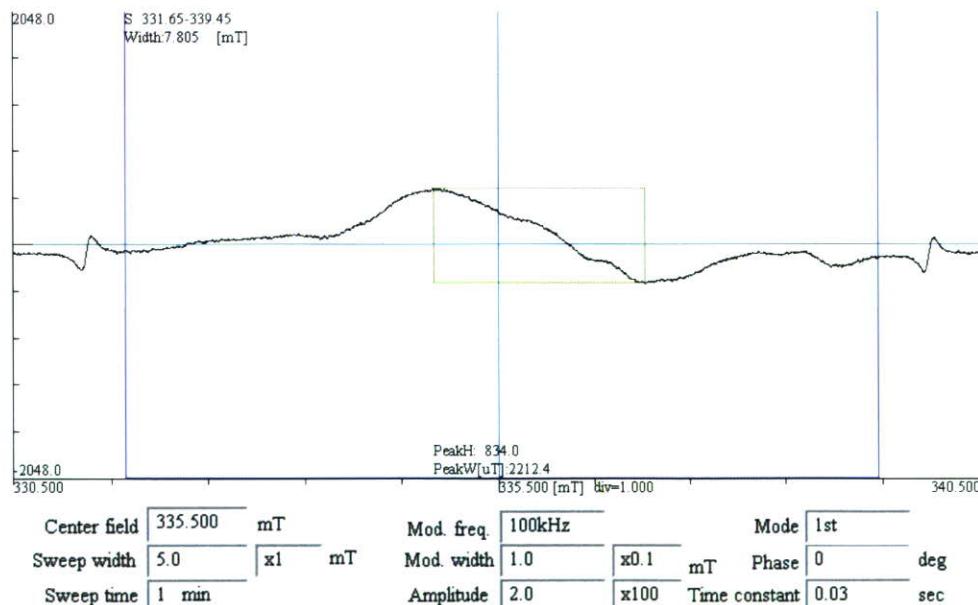


図 7-18 乾燥果実 イチジク (照射量 10 k Gy)

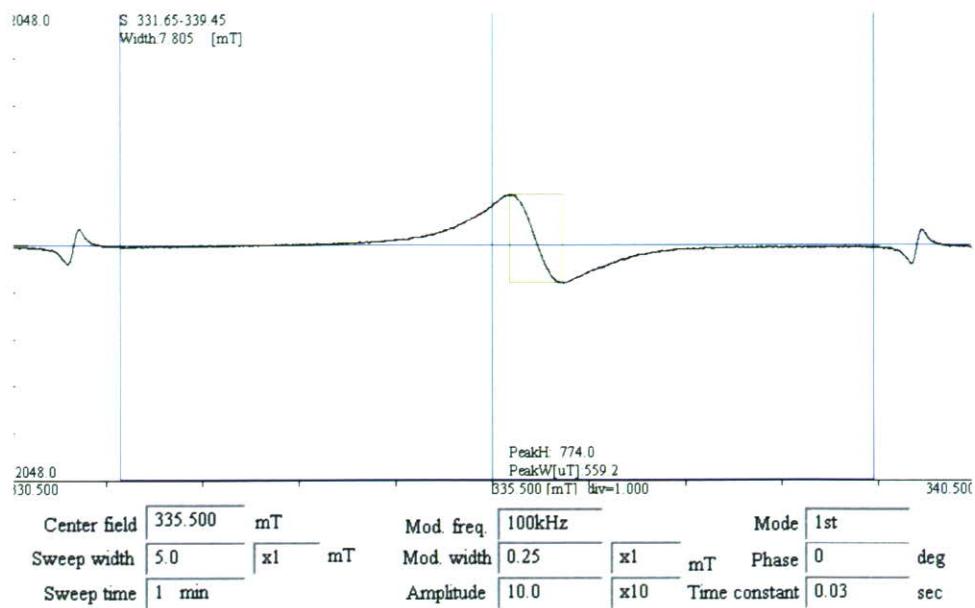


図 7-19 乾燥果実 ブルーベリー (照射量 10 k Gy)

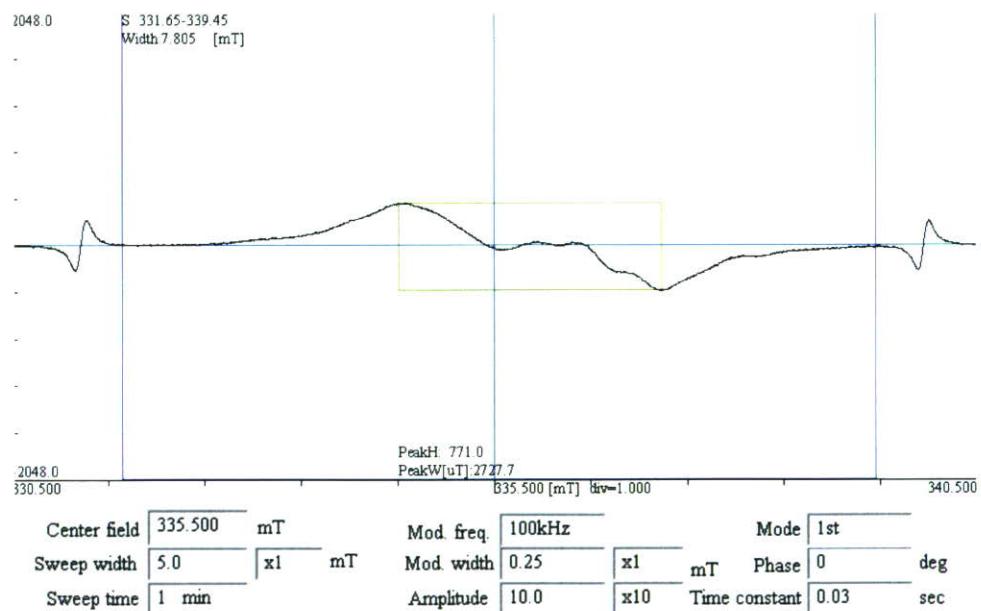


図 7-20 乾燥果実 パイナップル (照射量 10 k Gy)

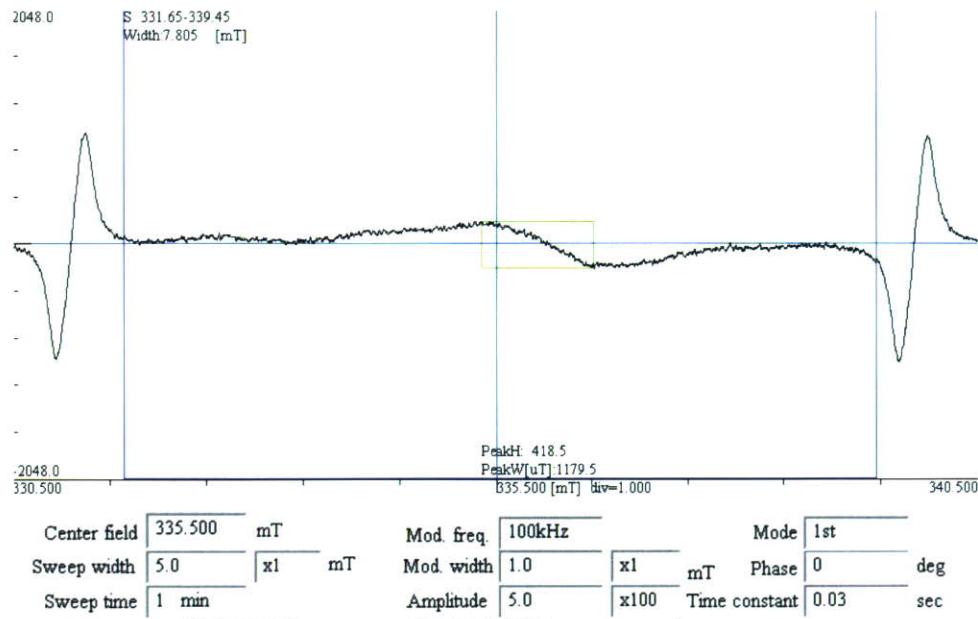


図 7-21 乾燥果実 アンズ (照射量 10 k Gy)

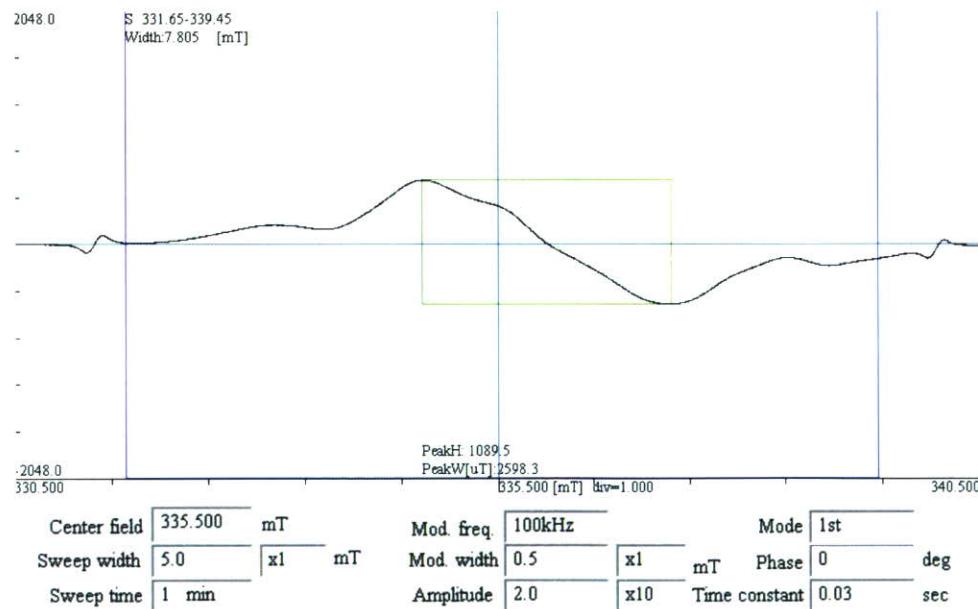


図 7-22 健康食品 マカ 125 μm 目開き (照射量 10 k Gy)

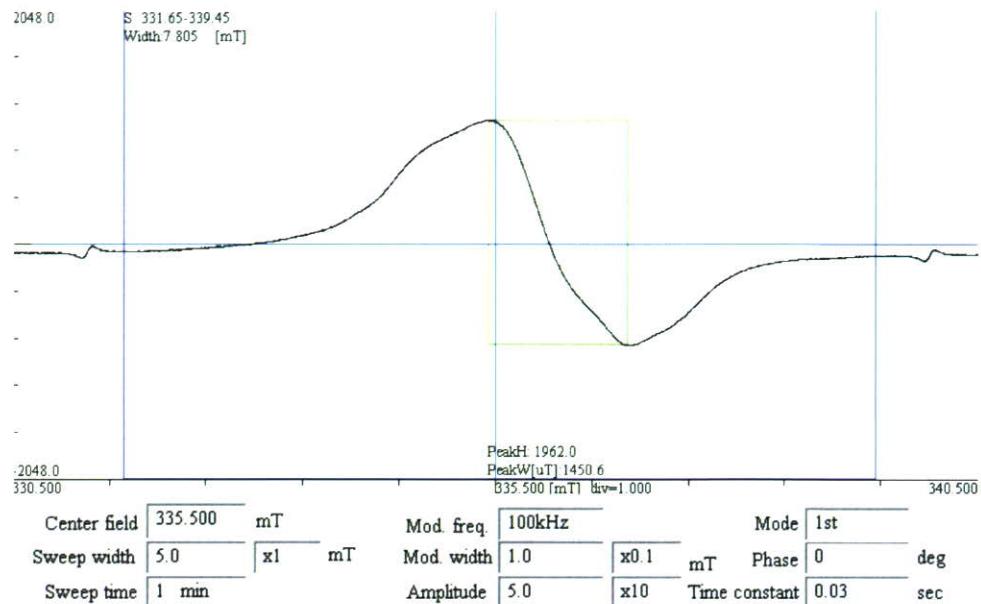


図 7-23 健康食品 ウコン 125 μ m 目開き (照射量 10 k Gy)

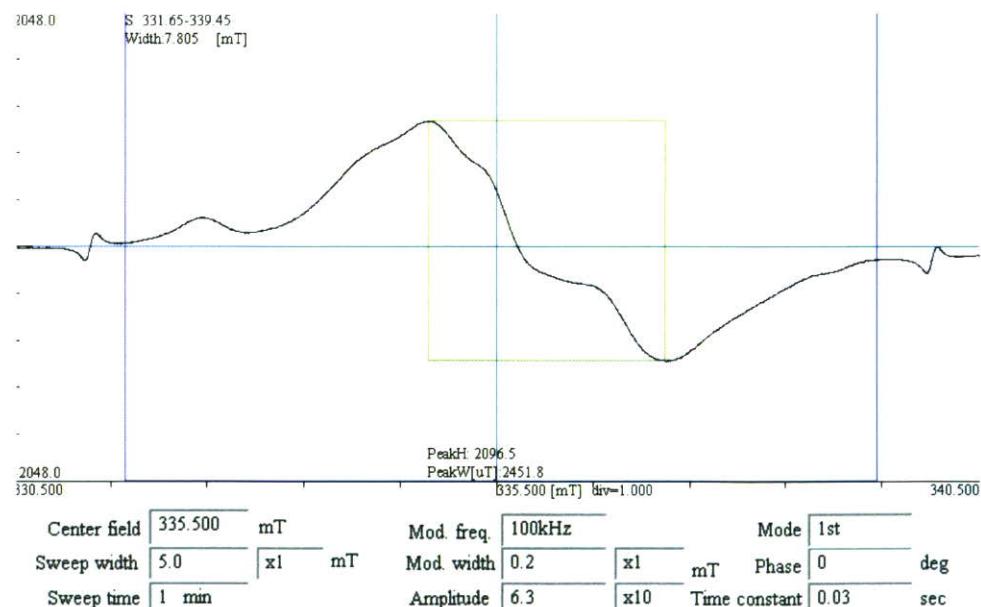
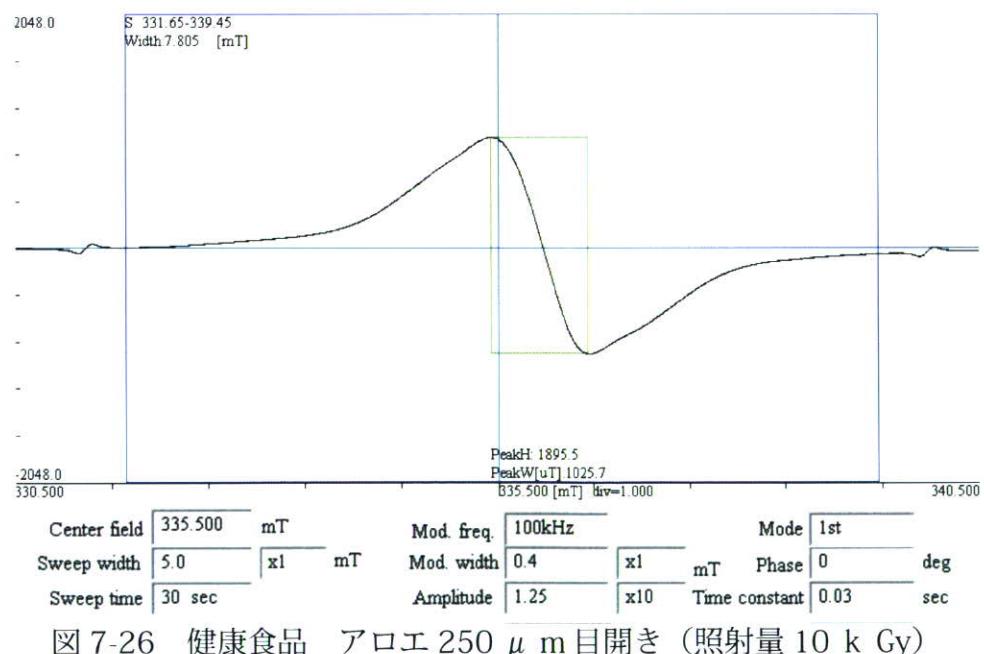
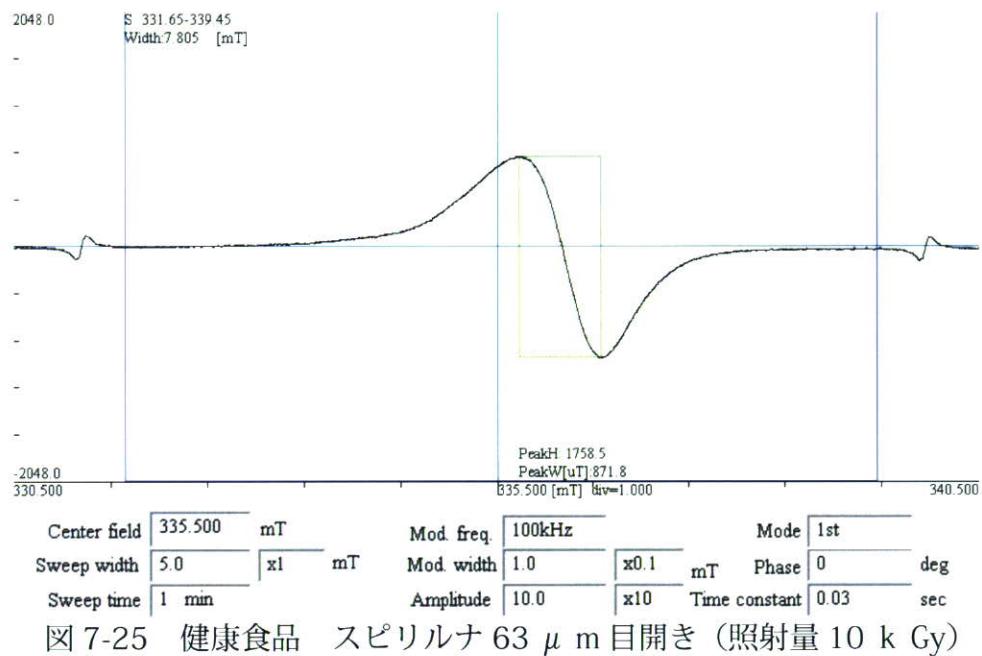


図 7-24 健康食品 キトサン 125 μ m 目開き (照射量 10 k Gy)



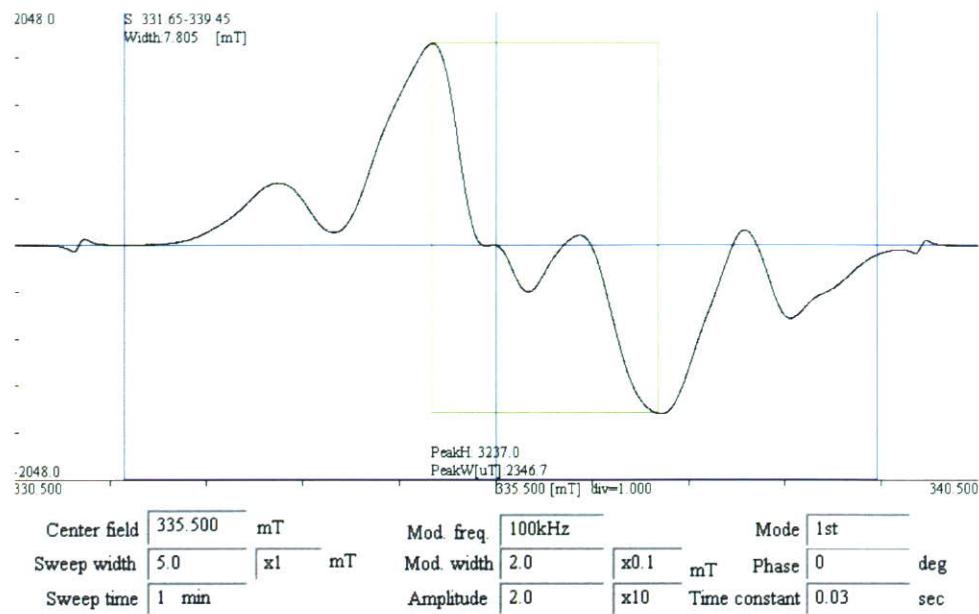


図 7-27 糖類フルクトース 250 μ m 目開き (照射量 10 k Gy)

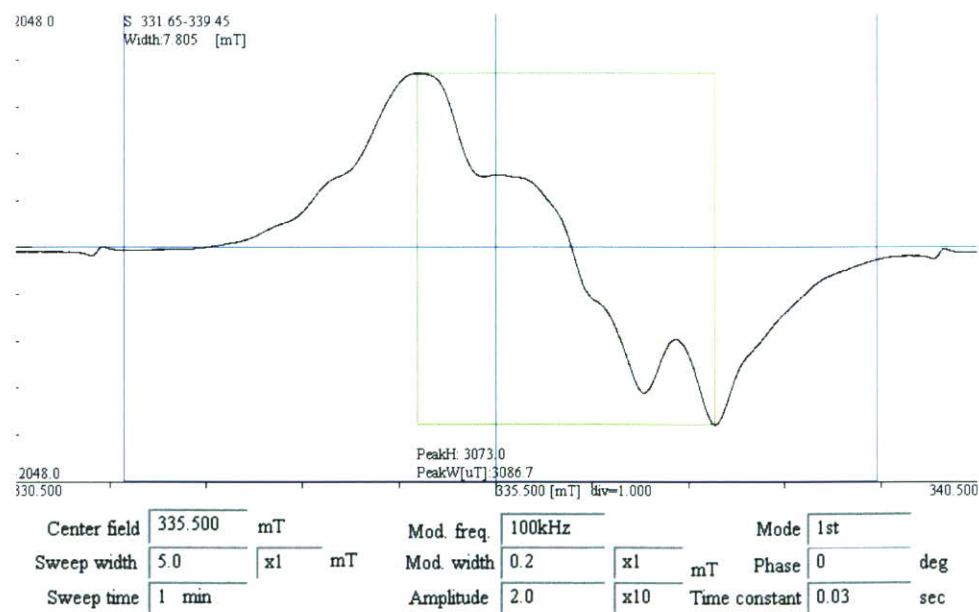


図 7-28 糖類グルコース 250 μ m 目開き (照射量 10 k Gy)

