

BBL クリスタルG P 同定キットによる芽胞形成菌の同定ソフトの開発ー、

RADIOISOTOPES, 53, 361-368, (2004)

5) 越川富比古、新谷英晴；バイオバーデン測定の問題点, 防菌防黴誌, 26,

511-520, (1998)

6) 廣庭隆行、山本陽子、松島昌子、染川憲一、越川富比古；累加線量照射後の無菌試験で検出された放射線抵抗性の強いグラム陰性菌について, 日本防菌防黴

学会代 2 階年次大会講演要旨集, 101, (2005)

7) 伊藤均、鎌倉浩之、関田節子；生薬中の微生物分布と放射線殺菌効果, 食品照射, 34, 第 1・2 号,

16-22, (1999)

F 学会発表

越川富比古、松島昌子、廣庭隆行、宮原 誠、微生物学的放射線照射検知の LAL / GNB 法の検討、防菌日本防黴学会 第 3 4 会年次大会、2008 年 8 月、吹田。

表6 照射香辛料の生残菌の菌種のまとめ

| 香辛料 | メインの菌種 | | マイナーの菌種 | | |
|-------------|-------------------------------|-------------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|-----|
| | グラム陽性菌 | | グラム陽性菌 | グラム陰性菌 | その他 |
| オールス パイス | <i>Bacillus pumilus</i> | | <i>Bacillus megaterium</i> | | |
| | <i>Bacillus subtilis</i> | | <i>Bacillus cereus</i> | | |
| | | | <i>Bacillus circulans</i> | | |
| オルガノ | <i>Bacillus cereus</i> | | <i>B.coagulans</i> | <i>Methylobacterium</i> 属 | |
| | <i>Bacillus megaterium</i> | | <i>M.kristinae</i> | 菌種不明⇒グラム陰性(ブドウ糖非醗酵菌) | |
| | <i>Bacillus circulans</i> | | | | |
| | <i>Bacillus megaterium</i> | グラム陰性菌(ブドウ糖醗酵菌) | | <i>Micrococcus sedentarius</i> | |
| セージ | | <i>Enterobacter sakazaki</i> | | | |
| | | <i>Pantoea agglomerans</i> | | | |
| | | (<i>Enterobacter agglomerans</i>) | | | |
| | | <i>Escherichia hermannii</i> | | | |
| | <i>Bacillus subtilis</i> | | 酵母菌 | <i>Methylobacterium</i> 属 | 真菌 |
| パプリカ | <i>Bacillus licheniformis</i> | | <i>Micrococcus sedentarius</i> | ブドウ糖醗酵菌 | |
| | | | <i>Bacillus pumilus</i> | <i>Enterobacter sakazaki</i> | |
| | | | | <i>Enterobacter cloacae</i> | |
| 黒胡椒 | <i>Bacillus subtilis</i> | | <i>Bacillus megaterium</i> | | |
| | | | <i>Bacillus pumilus</i> | | |
| | | | <i>Bacillus cereus</i> | | |

TL法の適用照射食品拡大に関する研究

分担研究者 国立医薬品食品衛生研究所 宮原 誠
研究協力者 日本冷凍食品検査協会 川上宏之、竹歳史紀、関龍雄
研究協力者 日本食品分析センター 小木曾基樹

研究要旨

照射食品検知試験法として、唯一我が国で公定法となっている TL 通知法は当初 13 品目の香辛料を対象としていた。さらに適用食品を拡大するべく検討を行った。検討対象は既に通知に含まれる物あるいはそれ以外のものを合わせて、96 試料とした。入手法は世田谷及び台東地域のスーパーマーケット並びに主な香辛料メーカーから直接購入した。用いた試料数はそれぞれ中粒香辛料 13、唐辛子系香辛料 9、樹皮系香辛料 7、根菜系香辛料 9、葉物系香辛料 11、ごま系香辛料 6、微少香辛料 10、その他 5、健康食品 26 であった。96 品目中の一部の試料（25 試料）を照射して、その発光極大等を調べたところ、通常の 200℃付近に観測されかつ TL 比も 0.1 を超えた。これらことから、これらの試料が照射された場合も十分に検知できることを確かめた。

一方、鉍物が十分に採取出来ないために分析が困難であったのは、ごま類の 4 試料、微少香辛料等の 1 試料、その他の 2 試料、健康食品の 7 試料であった。

なお、この試験の結果に基づき、2007 年末に通知法に品目が追加された。

A 目的 2007 年 TL 法は通知法となり、一応の完成を見た。しかし、その適用範囲は狭く、100 種以上あると言われている香辛料の内僅かに十数種にすぎず、さらにその対象を拡大するべきであるとの声があり、その試みを行った。試料は未加工の香辛料や乾燥野菜等とし、未加工品は入手が困難であるので、世田谷地区や香辛料メーカー等で一般に入手可能な市販品とした。これを 1 k Gy 照射グループと非照射グループに分け、それぞれを実験協力者に依頼して、TL 通

知法に従い分析し、分析可能であるか、判定が確実にできるかを検証した。

食品中の残留農薬や残留動物用医薬品等の公定法作成の例に従い、上記の要領で検討した食品について、通知法に順次採用する方向で検討した。本検討で、

B 実験方法

1) 試料 世田谷区地区のスーパーマーケット、香辛料製造業者等から、必要な試料を直接買い付けた。用いた試料はつぎの通り。

中粒香辛料：オールスパイス4、黒胡椒8、白胡椒1。

唐辛子系香辛料：パプリカ6、赤唐辛子3。

樹皮系香辛料：シナモン5、カシア2。

根菜系香辛料：ガジュツ1、ターメリック2、ウコン茶1、わさび1、生姜2、切り干し大根1、ニンニク1。

薬物系香辛料：ローレル1、ジャスミン茶1、セージ1、セロリー1、どくだみ茶1、パセリ1、プーアール茶1、大麦若葉2、ウーロン茶1、ケール青汁1。

ごま系香辛料：ごま5、フェネグリーク1。

微少香辛料：オレガノ4、クミン2、コリアンダー2、セロリシード1、ケシの実1。

その他：しいたけ1、粉しいたけ1、クロレラ加工品1、コーヒー1、麦茶1。

健康食品：ガジュツ加工品2、ガルシニア2、大麦若葉加工品2、白インゲン豆2、菊花2、クコシ2、トウモロコシのひげ2、ドライフルーツ2、茶樹きのこ2、大豆イソフラボン2、マカ2、大豆2、カカオパウダー2。

合計96試料を2007年夏から秋にかけて分析を実施。必要な試料については再検査を行った。

1-2) 照射試料

以下の試料を原子燃料工業で、1 k Gy 電子線照射した。1) 切干大根 2) パプリカ① 3) 黒胡椒① 4) セージ 5) オレガノ 6) プーアール茶 7) どくだみ茶 8) ジャスミン茶 9) コーヒー 10) キムチ唐辛子 11) ニンニク (12) ウーロン茶 13) 白胡椒 14) 麦茶 15) シナモン 16) わさび 17) クロレラ加工食品 18) ケール青汁 19) ガジュツ ① 20) ウコン茶 21) 大麦若葉加工食品 ① 22) 大麦若葉加工食品 ② 23) ケシの実 24) しいたけ 25) 粉しいたけ

2) 装置 サーモ製 TLD3500 とナノグレー製 TL 2000

装置の校正：サーモ製 TLD3500 とナノグレー製 TL 2000 について、TLD 100 プレドーズを用いて校正。それぞれの温度はそれぞれ 244.2 度と 241 度であった。

また、ピークの確認限界は、ノイズ幅の3倍とし、ノイズ幅は最高ノイズと最低ノイズの差の2/5。あるいは、ノイズの平均値と標準偏差値の3倍の値の和とした。TL3500 と TL2000 の確認限界はそれぞれおよそ 0.08 から 0.09 nA と 0.05 nA と報告された。

3) 検査実施機関 日本食品分析センター並びに日本冷凍食品検査協会

4) 標準線量照射機関 原子燃料工業株式会社

5) 分析方法 食品安全部長通知 070002号 (2007年7月) による。鉍物の抽出回数は分析に必要な 1mg に達しないときは、合計2回までおこなう。ただし、抽出回数を増やすと 1mg になる可能性があるときは合計5回まで実施する事とした。

C 結果

検体を便宜上その大きさや、製造方法の違いにより分類した。グラフ中試料名に分析機関を区別するために、a, b を付加した。

1) 中型香辛料とその粉末試料 (< 5mm)

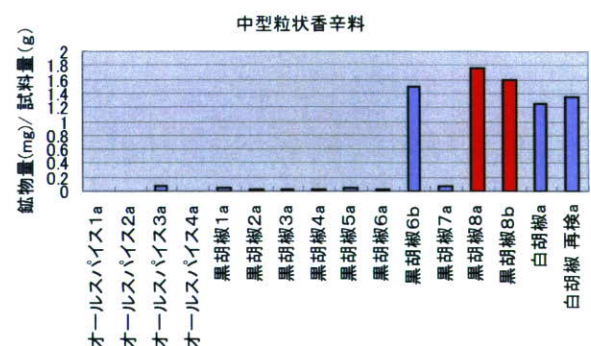


図1 中型粒状香辛料の鉍物率

この試料中で黒胡椒8と白胡椒は粉末状であった。黒胡椒8は外国で購入したものであった。

採取できた鉍物量を図1に示した。いずれの香辛料も必要量の1mg以上の鉍物が取れた。白胡椒は通知法の判定基準にてらして照射が推定された。

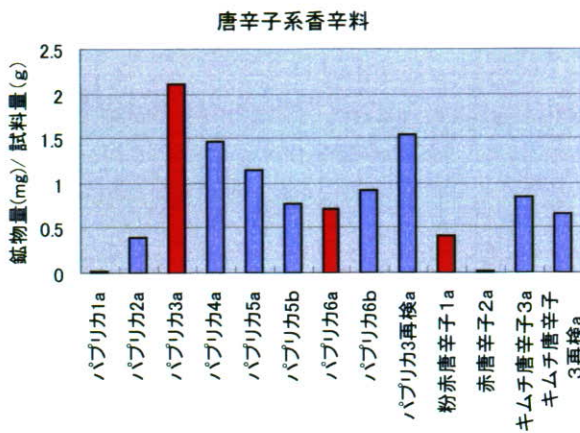


図2 唐辛子系香辛料の鉍物率

パプリカはすべて粉末状、唐辛子の1試料はホール、2銘柄は粉末のものであった。いずれの試料も国内で購入した。図2に示すように鉍物はいずれの試料においても十分に抽出できた。パプリカ3と、赤唐辛子3は通知法の判定基準にてらして、照射が推定された。

3) 樹皮系香辛料

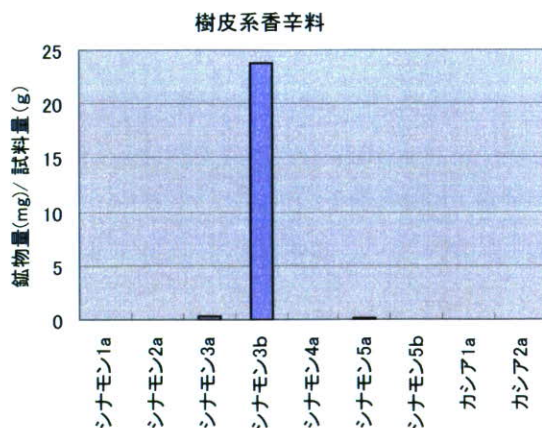


図3 樹皮系香辛料の鉍物率

この範疇に入るものはシナモンとカシアであ

る。図3に示すように、いずれの試料からも十分な鉍物量が得られた。

4) 根菜系試料

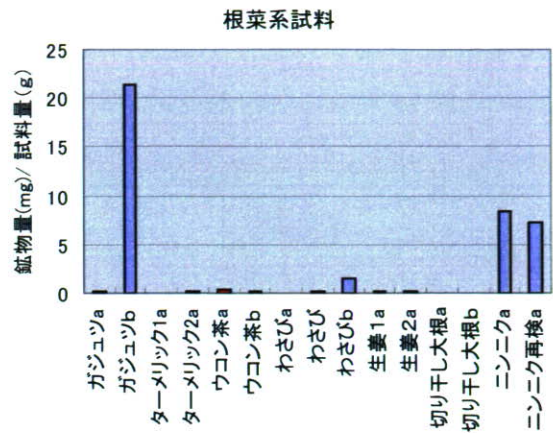


図4 根菜系香辛料の鉍物率

ガジュツ、ウコン（ターメリックと同じ）、わさび、ニンニクは粉末状、生姜、きりぼし大根はホールと細切状であった。図4に示すように、植物的には全く異なる種類のどの試料からも十分な鉍物量が得られた。これらの中から2銘柄の試料に照射が推定された。

5) 葉菜系試料

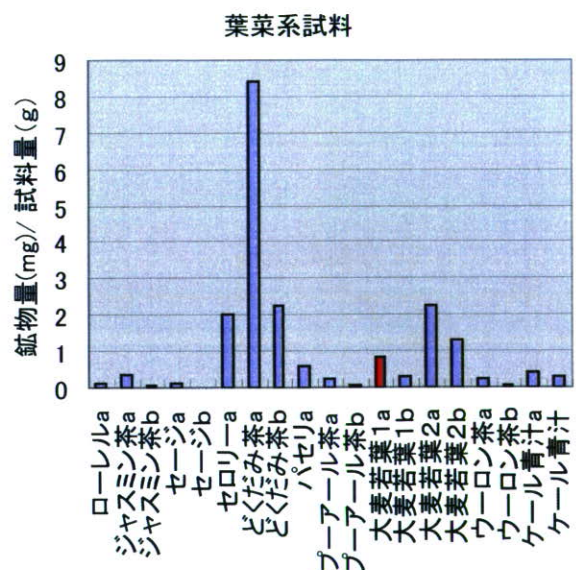


図5 葉菜系香辛料の鉍物率

ローレル、ジャスミン茶、セージ、セロリー、

どくだみ茶、パセリ、プーアル茶、ウーロン茶はホールまたは細切状で、大麦若葉 2 銘柄とケール青汁は粉末状であった。図 5 に示すように、どの試料からも十分な鉍物量が得られた。ケール試料は照射が推定された。

6) ごま類

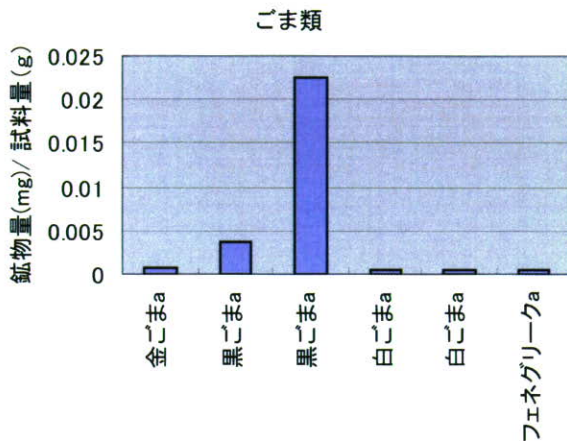


図 6 ごま系香辛料の鉍物率

フェヌグリークは子実を砕いたものなので、ごま類ではないが、加工工程にいずれも洗浄工程が含まれていることなどから、この中に入れた。6 試料のうち、鉍物が抽出できたのは 2 試料のみで、いずれも、鉍物が綺麗に除去されていた。(図 6) このような場合検知が困難である。

7) 微量香辛料 (<5mm)

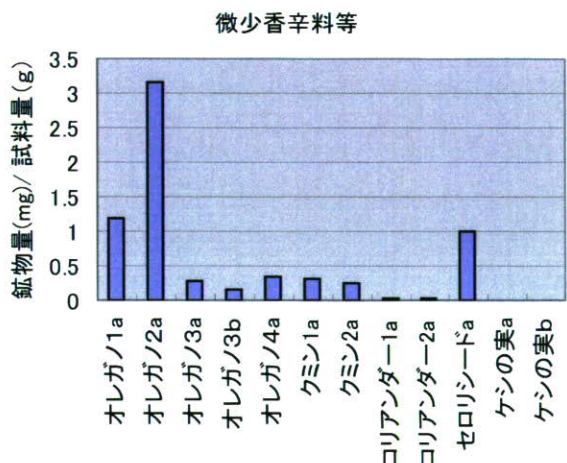


図 7 微量香辛料 (<5mm) の鉍物率

このカテゴリーの香辛料は粒度が小さく、抽出時困難が伴う場合が少なくない。しかし、ケシの実を除いて、その他の試料は十分な鉍物量が得られた。(図 7)

8) その他

クロレラ、コーヒーからは不十分な量の鉍物しか得られず、検知は困難であった。しかし、椎茸や麦茶などは検知可能な鉍物量が得られた。

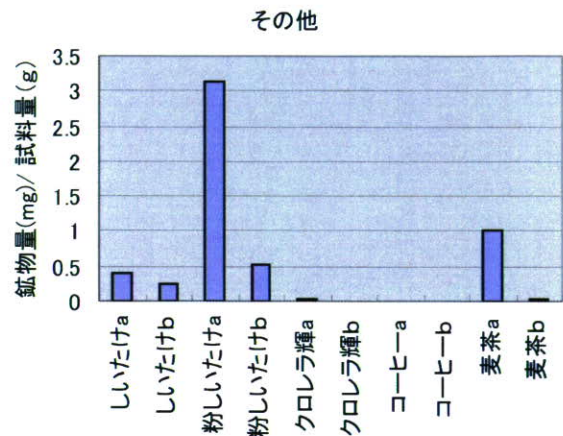


図 8 その他の香辛料 (<5mm) の鉍物率

9) 健康食品

図 9 に示すように、このカテゴリーの食品は加工品が多く、抽出が困難なものが多かった。白インゲン豆 1、ドライフルーツ 1、ドライフルーツ 2、大豆イソフラボン 1、大豆イソフラボン 2、大豆 2、カカオパウダー 2 からは全く鉍物が抽出できず TL 法の対象にならなかった。また、大麦若葉やカカオパウダーのように試料による鉍物量の違いが目立った。

10) 非照射試料のまとめ (Lab a)

Lab a の報告をまとめると香辛料 55 品目中 50 品目について 1mg 以上の鉍物が得られた。その内、TLD-100 の T1 (°C) を下回ったものは 5 品目あり、8 品目の TL 発光比が 0.1 を超えた。健康食

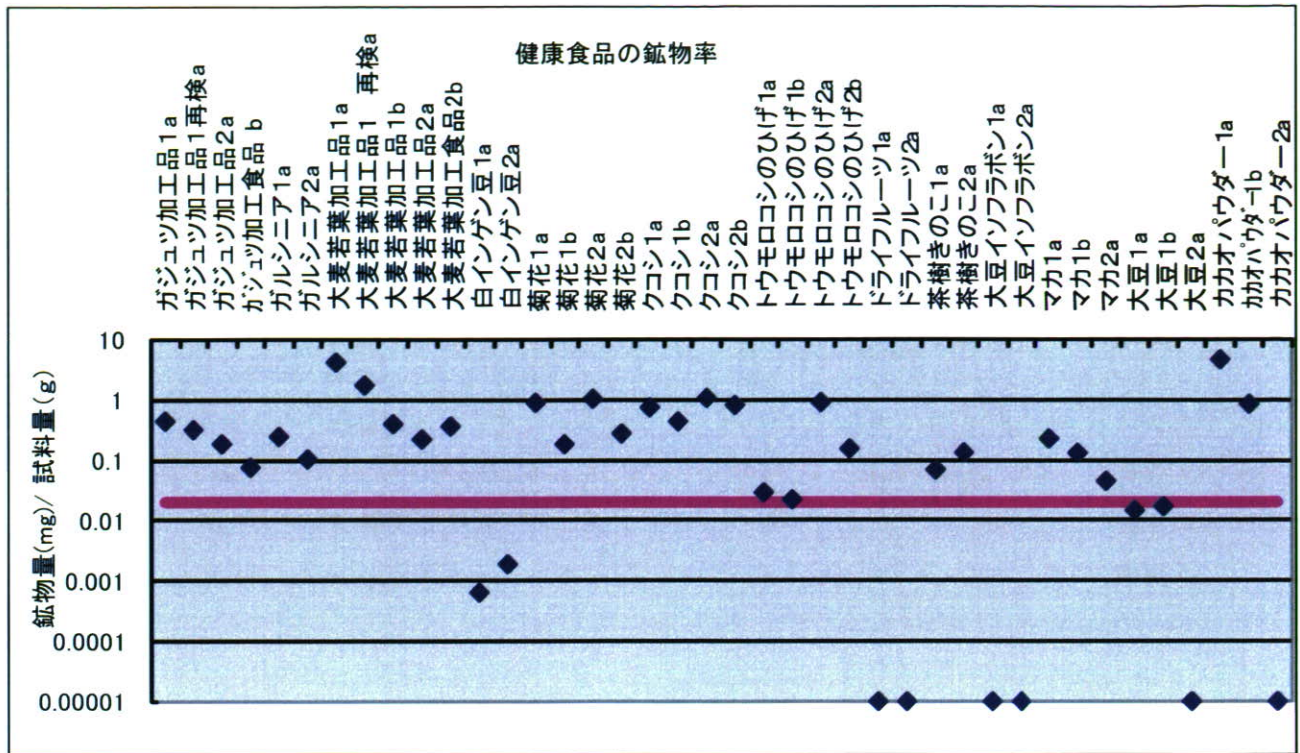


図9 健康食品 (<5mm) の鉱物率

品：41品目中32品目について1mg以上の鉱物が得られた。その内、T1 (°C) がTLD-100のT1 (°C)を下回ったものは3品目であり、これについてはTL発光比が0.1を超えていた(表1)。今回、香辛料、健康食品について、TL法での分析を行ったところ、通知の適用外の品目について、今回、多くの品目において鉱物を回収し、測定が可能であった。

試験法の再現性においても再検の成績からも十分であることが分かる。ただ、大麦若葉は再検では陰性の値を与えているが、試料の不均一性を原因とする不一致である。

1 1) 照射試料の試験 (Lab b)

上記1) から9) までは市販のままの試料を分析した結果を示した。さらに、これらの一部分の試料を1 k G y照射し、それらの鉱物が発光を示すか確認した。

あらかじめ放射線を照射された試料25種類のうち、重量測定可能な鉱物量が得られたものは

表 1

| 試料 | 温度 | TL 発光比 | 最終重量 |
|-------------|-----|--------|------|
| | °C | | mg |
| | T1 | TL | FW |
| パプリカ 3 | 205 | 0.956 | 0.79 |
| パプリカ 3再検 | 205 | 0.905 | 1.21 |
| わさび | 190 | 0.364 | 1.24 |
| わさび 再検 | 196 | 0.482 | 1.19 |
| キムチ唐辛子 3 | 196 | 1.503 | 1.36 |
| キムチ唐辛子 3再検 | 192 | 1.810 | 1.27 |
| 白胡椒 | 209 | 1.781 | 1.28 |
| 白胡椒 1再検 | 207 | 1.513 | 1.32 |
| ニンニク | 190 | 1.225 | 1.22 |
| ニンニク 1再検 | 187 | 1.159 | 1.32 |
| ケール青汁 | 205 | 1.453 | 1.22 |
| ケール青汁 1再検 | 200 | 1.634 | 1.38 |
| ガジュツ加工品 1 | 211 | 1.157 | 1.23 |
| ガジュツ加工品 1再検 | 207 | 0.815 | 1.17 |
| 大麦若葉加工品 1 | 194 | 3.278 | 1.25 |
| 大麦若葉加工品 1再検 | 303 | 0.018 | 0.90 |

21 試料であった。コーヒー、クロレラ加工品、ケール青汁、ケシの実の 4 試料からは十分な鉍物量が得られなかった。しかし、そのうちの 2 つ（シナモン及びわさび）は G' W2 の量が 0.5mg を大きく下回っていたことから、測定が成立しなかった。TL 測定 の条件が成立しかつ放射線照射の評価が可能であったものは 19 試料であった。これらの試料は いずれも発光曲線の極大温度が TLD100 のそれよりも低くかつ TL 比が 0.1 を超えていることから、放射線照射された試料であることを確認することができた。

一方、非照射 16 試料のうち測定可能な鉍物量が得られたものは 13 試料であった。また、残りの 3 つに関しても複数回の操作を行うことにより、測定可能な鉍物量が得られる可能性が考えられた。なお、市販 16 試料のうち、2 試料について、発光曲線の極大温度が TLD100 のそれよりも低くかつ TL 比が 0.1 を超えていた。

同機関の評価をおこなうため次の非照射試料を同時に分析した。26) ガジュツ② 27) ガジュツ③ 28) 大麦若葉加工食品③ 29) 大麦若葉加工食品④ 30) 菊花① 31) 菊花② 32) クコシ 33) クコ

の実粉末 34) トウモロコシ① 35) トウモロコシ② 36) マカ加工食品 37) 黒大豆 38) カカオパウダー 39) パプリカ② 40) シナモン 41) 黒胡椒②

1 2) 測定機種 の 同 等 性

2 試料のポジティブコントロールはナノグレー製 TL-2000 およびサーモ製 TLD3500 のいずれによる測定においても、陽性が確認され、それぞれの測定器について、放射線照射の検知に支障をきたす事実は確認されなかったという。

Lab a における T2 の室内再現性をみると極めて良好で、元試験と再試験との間で、T2 の相関は良かった。

一方、Lab a と Lab b の同じ試料について、T2 を測定した T2 の実験室間の再現性を見ると何らの相関は見られなかった。これはどちらかの測定に問題があると考えられた。

そこでそれぞれの Lab の温度の度数分布をとり比較した (図 1 2)。これによると Lab a、の度数は 180°C 付近に 1 つの山を持つ分布を持つのに、Lab b は 150°C 付近と 180°C 付近に二つのピークを持っており、Lab b の測定に何らかの問題

T2 の実験室内 (Lab a) の再現性 $y = 0.733x + 44.927$
 $R^2 = 0.6914$

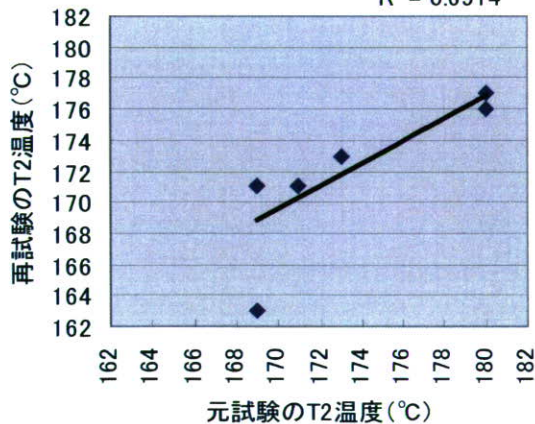


図 1 0 T2 の室内の再現性 (Lab a)

T2 の実験室間 (Lab a と Lab b) の再現性

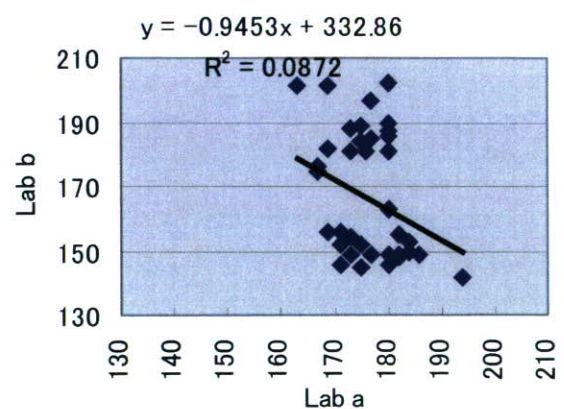


図 1 1 T2 の室間の再現性 (Lab a と b)

TL3500VsTL2000

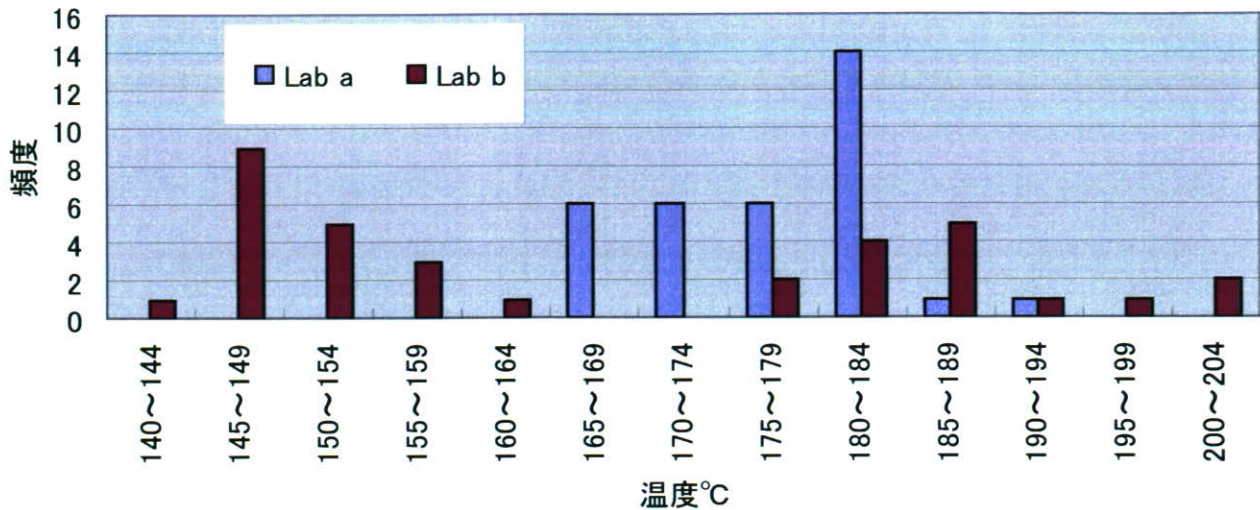


図12 各LabにおけるT2の度数分布

Lab aはTLD3500、Lab bはTL2000による測定を行った。

があったことが明らかである。

D 考察

本TL法の実用性を検証する目的で市場の香辛料を中心とする食品を対象として、非照射試料と1 k Gy照射試料を分析した。基本的に、有機物の少ない鉱物を十分な量を確保することが出来れば、検知が可能であることが、分かっている。そこで、鉱物量とその純度（強熱減量）でTL測定が可能かどうかを判断した。費用対効果の関係から、理想的なコラボは不要で、2つのラボで十分な結果が得られたとき、その試料についてTL法の対象に加えるとの方針を立てた。

超簡易コラボとはいえそれぞれのラボの品位を評価しておく必要がある。表2にLab aとbで同時に分析した試料について、まとめた。

非照射試料については、委託した分析会社aの技術は高く、鉱物量の少ない試料からも丁寧に試験を試みているために、鉱物を収集できる食品の種類は広がった。また、抽出した鉱物の純度も高く、良好な結果を得ている。

しかし、同じような試料を試みても、照射試料を担当した機関bは、技量が十分でないのか、強

熱減量が大きく、かつ、他の機関で分析可能であった試料についても、分析不可としている。とくにシナモン及びわさびは他の機関aでは十分な試料量が得られ、分析可能であった。さらに、ケール青汁、ガジュツ②、マカ加工品、シナモンの4試料については、機関aで分析可能であった。このようなことから、この二つの機関には大きく技術的に優劣があり、必ずしも両方の機関において、満足すべきデータが得られなくても、十分に本TL法が適用可能である場合があると判断した。このため、最終的には、一方の機関で分析した試料すべてをもう一方の機関に分析を依頼しなかった。

以上見てきたように、鉱物が十分に採集することが可能であれば、その後の判定は容易であり、機関による差違は生じないと考えられる。判定基準に曖昧な点がないことから、このような結果が得られた。これとは別に、必要な量の鉱物を集められるか、否かはその機関の技術力に依存するところが大きいと考えられる。

それぞれの機関の試験の関する評価項目として、最終試料量、鉱物残存率、T1、T2並びに

表2 各機関の結果比較

| 試料名 | 最終重量 (mg) | | 残存率 (%) | | T1℃ | | T2℃ | | TL 発光比 | |
|-----------------|-----------|------|---------|----|-----|-----|-----|-----|--------|--------|
| | a | b | a | b | a | b | a | b | a | b |
| Lab | | | | | | | | | | |
| わさび | 1.24 | 0.11 | 93 | 10 | 190 | 231 | 180 | 181 | 0.364 | 2.567 |
| わさび WA001 再検 | 1.19 | - | 94 | - | 196 | - | 176 | - | 0.482 | - |
| シナモン | 1.27 | 0.27 | 86 | 20 | 327 | 189 | 180 | 163 | 0.015 | 4.008 |
| ジャスミン茶 | 1.03 | 0.94 | 75 | 90 | 318 | 195 | 194 | 142 | 0.040 | 0.381 |
| プーアール茶 | 1.17 | 0.55 | 94 | 55 | 312 | 187 | 169 | 182 | 0.042 | 0.664 |
| どくだみ茶 | 1.11 | 1.01 | 91 | 71 | 322 | 186 | 173 | 181 | 0.029 | 0.652 |
| ウーロン茶 | 1.05 | 0.58 | 89 | 46 | 285 | 195 | 177 | 197 | 0.025 | 0.582 |
| 麦茶 | 1.26 | 0.91 | 90 | 91 | 358 | 186 | 182 | 148 | 0.009 | 0.282 |
| キムチ唐辛子 | 1.36 | 0.89 | 94 | 85 | 196 | 188 | 171 | 146 | 1.503 | 1.040 |
| キムチ唐辛子 RP002 再検 | 1.27 | - | 96 | - | 192 | - | 171 | - | 1.810 | - |
| 白胡椒 | 1.28 | 0.81 | 98 | 68 | 209 | 239 | 169 | 201 | 1.781 | 3.142 |
| 白胡椒 WP001 再検 | 1.32 | - | 96 | - | 207 | - | 163 | - | 1.513 | - |
| ニンニク | 1.22 | 1.01 | 95 | 78 | 190 | 182 | 173 | 188 | 1.225 | 1.232 |
| ニンニク GA001 再検 | 1.32 | - | 94 | - | 187 | - | 173 | - | 1.159 | - |
| 切り干し大根 | 1.27 | 0.89 | 93 | 89 | 347 | 191 | 171 | 152 | 0.011 | 0.861 |
| 粉しいたけ | 1.11 | 1.05 | 93 | 81 | 276 | 191 | 175 | 184 | 0.024 | 0.682 |
| しいたけ | 1.23 | 0.6 | 94 | 59 | 280 | 198 | 180 | 187 | 0.039 | 0.413 |
| 大麦若葉 | 1.09 | 0.46 | 89 | 46 | 337 | 194 | 180 | 186 | 0.022 | 0.572 |
| 大麦若葉 | 1.15 | 0.63 | 92 | 61 | 362 | 205 | 175 | 189 | 0.019 | 1.063 |
| ガジュツ | 1.1 | 0.71 | 88 | 60 | 272 | 204 | 180 | 202 | 0.057 | 2.305 |
| ケール青汁 | 1.22 | 0 | 88 | - | 205 | - | 173 | - | 1.453 | - |
| ケール青汁 KA001 再検 | 1.38 | - | 98 | - | 200 | - | 171 | - | 1.634 | - |
| ウコン茶 | 0.98 | 0.84 | 78 | 81 | 396 | 175 | 167 | 176 | 0.008 | 0.662 |
| 黒胡椒 | 0.79 | 0.08 | 73 | 7 | 318 | 195 | 167 | 175 | 0.011 | 1.728 |
| パプリカ | 1.43 | 1.03 | 97 | 97 | 287 | 190 | 173 | 149 | 0.006 | 0.433 |
| オレガノ | 1.33 | 0.67 | 97 | 58 | 278 | 197 | 180 | 190 | 0.009 | 0.720 |
| セージ | 1.12 | 0.7 | 93 | 65 | 400 | 197 | 177 | 185 | 0.014 | 0.453 |
| ガジュツ加工食品 1 | 1.32 | 0.97 | 93 | 91 | 211 | 229 | 169 | 156 | 1.157 | 0.552 |
| ガジュツ加工食品 1 再検 | 1.31 | - | 89 | - | 207 | - | 171 | - | 0.815 | - |
| 大麦若葉加工食品 1 | 1.17 | 0.72 | 80 | 71 | 194 | 206 | 180 | 149 | 3.312 | 1.304 |
| 大麦若葉加工食品 1 再検 | 1.35 | - | 92 | - | 194 | - | 177 | - | 3.278 | - |
| ガジュツ加工食品 1 | 1.23 | 0.97 | 93 | 91 | 211 | 229 | 169 | 156 | 1.157 | 0.551 |
| ガジュツ加工食品 1 再検 | 1.17 | - | 89 | - | 207 | - | 171 | - | 0.815 | - |
| 大麦若葉加工食品 2 | 0.9 | 0.67 | 83 | 66 | 303 | * | 182 | 155 | 0.018 | 0.011 |
| ガジュツ加工食品 2 | 1.12 | 0 | 85 | - | 399 | - | 184 | - | 0.040 | - |
| 大麦若葉加工食品 1 | 0.94 | 0.72 | 80 | 71 | 194 | 206 | 180 | 149 | 3.312 | 1.303 |
| 大麦若葉加工食品 1 再検 | 1.25 | - | 93 | - | 194 | - | 177 | - | 3.278 | - |
| 菊花 1 | 1.25 | 0.9 | 90 | 80 | 358 | * | 184 | 150 | 0.010 | 0.007 |
| 菊花 2 | 1.02 | 1.09 | 93 | 87 | 345 | * | 182 | 149 | 0.054 | 0.020 |
| クコシ 1 | 0.91 | 1.01 | 84 | 86 | 395 | * | 175 | 145 | 0.010 | 0.0051 |
| クコシ 2 | 1.04 | 0.88 | 85 | 83 | 400 | * | 180 | 146 | 0.007 | 0.0052 |
| トウモロコシのひげ 1 | 0.99 | 0.52 | 89 | 51 | 345 | * | 186 | 149 | 0.035 | 0.0207 |
| トウモロコシのひげ 2 | 1.1 | 0.92 | 90 | 77 | 352 | * | 175 | 152 | 0.021 | 0.0093 |
| マカ 1 | 1.03 | 0 | 82 | - | 396 | - | 176 | - | 0.025 | - |
| 大豆 1 | 0.98 | 0.77 | 95 | 77 | 346 | * | 184 | 153 | 0.022 | 0.0168 |
| カカオパウダー 1 | 1.33 | 0.92 | 91 | 78 | 322 | * | 173 | 154 | 0.012 | 0.0072 |

*明確なピークなし

TL比を比較した。Lab aの最終鉍物量、残存鉍物量とも良好であった。

TL測定機の同等性の検証はT2の比較をおこない、TL測定器の同等性検証を試みたが、それぞれの試験機関の技量が同じとは言えず、明確な結論は得られなかった。Lab bについては、やや不良で、場合によっては照射・非照射の判断が出来ないときがあった。しかし、全般的には大きな問題がなく、T2の大きなぶれにつながる要素は見あたらない。ただ、加熱減量が大きいものもあるので、若干のT2の温度低下につながった可能性は否定できない。

一方、TLD100を用いた発光極大の比較では、TL2000の温度は240℃付近で、TLD3500では230℃付近であり、大きな差は無い。

T2温度の大きなずれは測定機種間の問題も考えられた。実機を検証しないと何ともいえないが、① TL2000の温度上昇が直線的でなく再現性に乏

しい。② TL2000の加熱プレートに温度ムラが大きく、再現性に乏しい。③熱線カットフィルター等の相違による発光極大の差等が考えられた。

いずれにしても、Lab bのデータに検討の余地が有る。

E 結論

本TL法を用いる事により、ここで取り上げた香辛料、乾燥野菜、その他の食品の多くから、十分な鉍物量を採取可能であり、同法記載の判断基準により適切判断できる事が明らかになった。

F 学会発表

川上宏之、竹歳史紀、関龍雄、宮原 誠 TL法による香辛料および健康食品の照射判別
第94回日本食品衛生学会学術講演会（平成19年10月26日、静岡県立大学）

A 機関から提出された資料

別紙 2 - 2

TLD 日常点検表

| 1) | | | | | | | | | | |
|-------------|--------|------------|-------------|------------------|---------------|-----------|-------------|------|-----|----|
| 製造者名 | Thermo | | 形式 | HARSHAW TLD 3500 | | | 機体番号 | | | |
| 管理番号 | 設置場所 | | | 設置年月日 | | | 2006年8月7日 | | | |
| 2) | | | | | | | | | | |
| 年月日 | 番号 | 暖気運転 ○× | PMT 温度 ℃ | 高圧電圧 V | PMT ノイズ nC | 参照光 nC | B ノイズ nC | 実施担当 | 確認者 | 備考 |
| 2007年7月27日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.57831 | 157.93 | 34.314 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.72413 | 156.54 | 46.706 | * | * | - |
| | 3 | ○ | 15 | 809 | 0.82425 | 156.51 | 48.248 | * | * | - |
| 2007年7月28日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.36206 | 158.54 | 34.946 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.59344 | 158.44 | 33.495 | * | * | - |
| | 3 | ○ | 15 | 809 | 0.43806 | 152.63 | 32.410 | * | * | - |
| | 4 | ○ | 15 | 809 | 0.39131 | 151.55 | 33.296 | * | * | - |
| 2007年8月2日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.84987 | 159.02 | 38.323 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.90431 | 158.25 | 37.549 | * | * | - |
| | 3 | ○ | 15 | 809 | 0.69590 | 158.99 | 41.205 | * | * | - |
| | 4 | ○ | 15 | 809 | 0.84100 | 157.98 | 42.702 | * | * | - |
| | 5 | ○ | 15 | 809 | 0.83019 | 157.90 | 46.574 | * | * | - |
| | 6 | ○ | 15 | 809 | 0.86444 | 157.69 | 44.109 | * | * | - |
| | 7 | ○ | 15 | 809 | 0.81069 | 156.80 | 44.670 | * | * | - |
| 2007年8月3日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.83669 | 158.62 | 42.942 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.89594 | 158.96 | 40.919 | * | * | - |
| | 3 | ○ | 15 | 809 | 0.83919 | 158.21 | 40.675 | * | * | - |
| | 4 | ○ | 15 | 809 | 0.70669 | 157.65 | 38.537 | * | * | - |
| 2007年8月4日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.68831 | 159.29 | 38.078 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.90087 | 157.63 | 42.294 | * | * | - |
| | 3 | ○ | 15 | 809 | 0.89138 | 157.88 | 49.614 | * | * | - |
| | 4 | ○ | 15 | 809 | 0.96131 | 150.39 | 44.309 | * | * | - |
| | 5 | ○ | 15 | 809 | 0.98256 | 157.88 | 42.020 | * | * | - |
| 2007年8月10日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.54125 | 157.71 | 37.702 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.60769 | 157.59 | 41.597 | * | * | - |
| 2007年8月15日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.26631 | 159.42 | 37.795 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.77538 | 158.46 | 38.797 | * | * | - |
| | 3 | ○ | 15 | 809 | 0.47169 | 155.56 | 36.787 | * | * | - |
| | 4 | ○ | 15 | 809 | 0.79287 | 154.45 | 35.523 | * | * | - |
| 2007年8月24日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.30781 | 159.10 | 38.320 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.40019 | 148.27 | 33.461 | * | * | - |
| 2007年8月29日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.19944 | 159.21 | 34.169 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.34212 | 156.47 | 36.210 | * | * | - |
| 2007年8月31日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.16238 | 158.99 | 35.438 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.18069 | 157.46 | 34.761 | * | * | - |
| | 3 | ○ | 15 | 809 | 0.21225 | 158.05 | 35.011 | * | * | - |
| | 4 | ○ | 15 | 809 | 0.21625 | 157.24 | 34.766 | * | * | - |
| | 5 | ○ | 15 | 809 | 0.21587 | 157.00 | 35.619 | * | * | - |
| | 6 | ○ | 15 | 809 | 0.23594 | 157.14 | 34.921 | * | * | - |
| 2007年9月14日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.20625 | 158.82 | 37.686 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.23606 | 155.65 | 33.454 | * | * | - |
| | 3 | ○ | 15 | 809 | 0.27669 | 155.08 | 34.745 | * | * | - |
| 2007年9月21日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.10638 | 156.29 | 33.771 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.1245 | 154.99 | 34.257 | * | * | - |
| | 3 | ○ | 15 | 809 | 0.14569 | 155.34 | 34.382 | * | * | - |
| | 4 | ○ | 15 | 809 | 0.14762 | 154.72 | 34.351 | * | * | - |
| | 5 | ○ | 15 | 809 | 0.21469 | 146.28 | 33.470 | * | * | - |
| 2007年10月9日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.16131 | 159.48 | 33.845 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.17075 | 155.44 | 32.64 | * | * | - |
| | 3 | ○ | 15 | 809 | 0.24381 | 151.02 | 32.171 | * | * | - |
| | 4 | ○ | 15 | 809 | 0.25056 | 150.31 | 32.169 | * | * | - |
| | 5 | ○ | 15 | 809 | 0.25587 | 149.23 | 31.916 | * | * | - |
| 2007年10月11日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.13056 | 158.50 | 32.253 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.16081 | 150.46 | 31.956 | * | * | - |
| 2007年10月17日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.25119 | 158.34 | 31.574 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.22975 | 155.79 | 30.791 | * | * | - |
| | 3 | ○ | 15 | 809 | 0.20944 | 148.73 | 29.873 | * | * | - |
| 2007年10月18日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.12019 | 158.64 | 32.572 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.14981 | 157.80 | 30.770 | * | * | - |
| | 3 | ○ | 15 | 809 | 0.15119 | 157.67 | 31.808 | * | * | - |
| | 4 | ○ | 15 | 809 | 0.11794 | 157.59 | 32.668 | * | * | - |
| | 5 | ○ | 15 | 809 | 0.1505 | 157.70 | 32.408 | * | * | - |
| | 6 | ○ | 15 | 809 | 0.14787 | 156.85 | 32.24 | * | * | - |
| 2007年10月23日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.093938 | 158.55 | 32.205 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.10669 | 158.26 | 30.762 | * | * | - |
| | 3 | ○ | 15 | 809 | 0.21506 | 152.98 | 30.415 | * | * | - |
| 2007年11月1日 | 1 | ○ | 15 | 809 | 0.0072062 | 158.97 | 31.377 | * | * | - |
| | 2 | ○ | 15 | 809 | 0.105812 | 158.12 | 31.156 | * | * | - |
| | 3 | ○ | 15 | 809 | 0.23931 | 157.86 | 31.803 | * | * | - |
| | 4 | ○ | 15 | 809 | 0.20819 | 157.60 | 31.453 | * | * | - |
| | 5 | ○ | 15 | 809 | 0.19506 | 157.28 | 31.592 | * | * | - |

別紙 2-3

天秤仕業点検表

1)

| | | | | | | |
|------|----------------|------|--------|---------|--|--------|
| 製造者名 | METTLER TOLEDO | | 形式名 | XS205DU | | 機体番号 |
| 管理番号 | | 設置場所 | | | | |
| 秤量 | 220g | 目量 | | 表示最小値 | | 0.01mg |
| 最小表示 | | 風袋範囲 | 0-220g | | | |
| | | 定期整備 | | 有効期限 | | |

2)

| 年月日 | 暖気運転 | 水準器の状態 | 皿の状態 | 再現性 | 指示値 (g)*1 | 温度 (°C) *2 | 実施担当 | 確認者 | 備考 |
|-------------|------|--------|------|-----|-----------|------------|------|-----|----|
| 2007年7月13日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00102 | 24.5 | * | * | - |
| 2007年7月14日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 23.2 | * | * | - |
| 2007年7月20日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 23.7 | * | * | - |
| 2007年7月21日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00101 | 23.5 | * | * | - |
| 2007年7月26日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00099 | 23.7 | * | * | - |
| 2007年7月27日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00102 | 25.3 | * | * | - |
| 2007年7月28日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00102 | 24.1 | * | * | - |
| 2007年7月31日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00102 | 23.9 | * | * | - |
| 2007年8月2日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 23.2 | * | * | - |
| 2007年8月3日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00101 | 23.6 | * | * | - |
| 2007年8月4日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 22.9 | * | * | - |
| 2007年8月10日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 22.6 | * | * | - |
| 2007年8月13日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 22.4 | * | * | - |
| 2007年8月15日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 24.2 | * | * | - |
| 2007年8月23日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00099 | 23.8 | * | * | - |
| 2007年8月24日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00101 | 24.8 | * | * | - |
| 2007年8月28日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00101 | 24.7 | * | * | - |
| 2007年8月29日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00102 | 24.0 | * | * | - |
| 2007年8月31日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00101 | 24.3 | * | * | - |
| 2007年9月12日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00101 | 23.4 | * | * | - |
| 2007年9月14日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 23.4 | * | * | - |
| 2007年9月21日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 25.0 | * | * | - |
| 2007年10月1日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 23.6 | * | * | - |
| 2007年10月2日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 23.5 | * | * | - |
| 2007年10月4日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 24.5 | * | * | - |
| 2007年10月9日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00101 | 23.5 | * | * | - |
| 2007年10月10日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00101 | 24.1 | * | * | - |
| 2007年10月11日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 23.7 | * | * | - |
| 2007年10月15日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00099 | 23.7 | * | * | - |
| 2007年10月16日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00101 | 23.2 | * | * | - |
| 2007年10月17日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 24.4 | * | * | - |
| 2007年10月18日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 23.8 | * | * | - |
| 2007年10月22日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00101 | 23.8 | * | * | - |
| 2007年10月23日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 24.0 | * | * | - |
| 2007年11月1日 | ○ | ○ | ○ | ○ | 0.00100 | 24.4 | * | * | - |

* 1 1mg の標準分銅を秤量した値である。

* 2 気温

別紙 2 - 4 発光量の下限值

粒状試料用前処理 空試験 G1 ノイズ (温度範囲 : 190 ~ 210°C)

| 最小発光強度 | 最大発光強度 | 最大 - 最小 | N | 平均 N | 標準偏差 | N の 3 倍 | |
|--------|--------|---------|--------|-----------------|--------|---------|-----------|
| | nC | nC | nC | (最大 - 最小) × 2/5 | | | (発光量の下限值) |
| 1 | 0.0137 | 0.0839 | 0.0702 | 0.0281 | 0.0302 | 0.0331 | 0.0906 |
| 2 | 0.0147 | 0.0538 | 0.0391 | 0.0156 | | | |
| 3 | 0.0129 | 0.0439 | 0.0310 | 0.0124 | | | |
| 4 | 0.0121 | 0.2314 | 0.2193 | 0.0877 | | | |
| 5 | 0.0109 | 0.0288 | 0.0179 | 0.0072 | | | |

粉末状試料用前処理 空試験 G1 ノイズ (温度範囲 : 190 ~ 210°C)

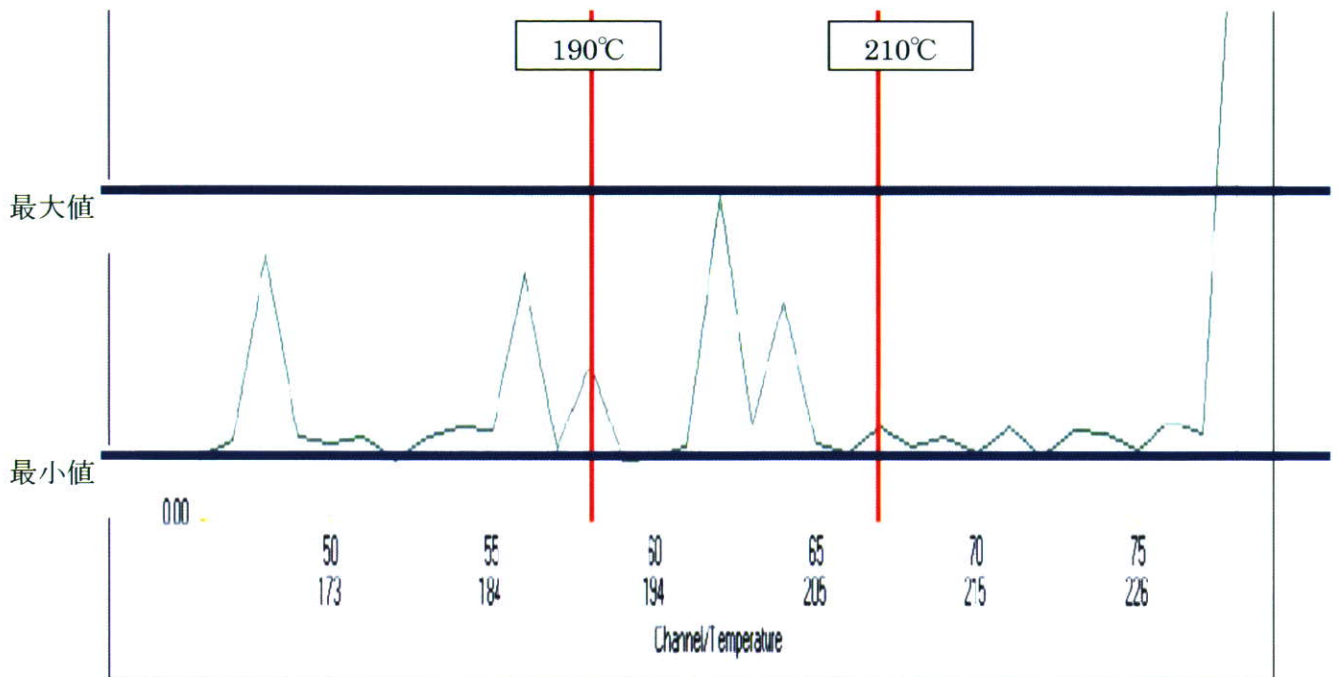
| | 最小発光強度 | 最大発光強度 | 最大 - 最小 | N | 平均 N | 標準偏差 | N の 3 倍 |
|---|--------|--------|---------|-----------------|--------|--------|-----------|
| | nC | nC | nC | (最大 - 最小) × 2/5 | | | (発光量の下限值) |
| 1 | 0.0129 | 0.0706 | 0.0577 | 0.0231 | 0.0252 | 0.0273 | 0.0755 |
| 2 | 0.0057 | 0.0109 | 0.0052 | 0.0021 | | | |
| 3 | 0.0141 | 0.1927 | 0.1786 | 0.0714 | | | |
| 4 | 0.0157 | 0.0674 | 0.0517 | 0.0207 | | | |
| 5 | 0.0088 | 0.0300 | 0.0212 | 0.0085 | | | |

N : ベースラインのレンジ (最大値 - 最小値) の 2/5 倍として算出

(経験的にノイズの最大値と最小値との幅は、およそ標準偏差の 5 倍となるため、その幅の 2/5 をノイズ幅 (N) とした。)

別紙 2-4

空試験 G1 ノイズ (N) の算出



$$N : (\text{最大値} - \text{最小値}) \times 2 / 5$$

ベースラインのレンジ (最大値-最小値) の 2 / 5 倍として算出した

(経験的にノイズの最大値と最小値との幅は、およそ標準偏差の 5 倍となるため、その幅の

2/5 をノイズ幅 (N) とする。)

別紙 2-5 TLD100 の測定結果

| # | T1 (°C) |
|------------|---------|
| 1 | 243 |
| 2 | 243 |
| 3 | 245 |
| 4 | 242 |
| 5 | 240 |
| 6 | 243 |
| 7 | 249 |
| 8 | 245 |
| 9 | 249 |
| 10 | 243 |
| 平均 | 244.2 |
| 標準偏差 | 2.90 |
| 相対標準偏差×100 | 1.2 |

TLD100 は Control Number 121604 (4.5
× 0.6mm) を使用した。

B 機関から提出された資料

別表 1

ナノグレー製 TL2000 による TLD100 の測定結果のまとめ

試行数 5 回で測定した。結果を下表にまとめた。

| 試行回数 | 極大温度 | 試料量 | G' 1 | B1 | 測定日 |
|------|------|------|---------|-------|------------|
| | °C | mg | nC | nC | |
| 1 | 247 | 5.93 | 4573.47 | 13.29 | 2007/10/23 |
| 2 | 250 | 5.73 | 4366.37 | 25.62 | 2007/11/22 |
| 3 | 243 | 5.82 | 4789.30 | 19.26 | 2007/11/22 |
| 4 | 234 | 5.97 | 4898.67 | 21.09 | 2007/11/22 |
| 5 | 232 | 5.81 | 4757.94 | 18.36 | 2007/11/22 |

極大温度の平均 : 241.2°C

極大温度の標準偏差 : 7.08°C

極大温度の相対標準偏差 : 3.28%

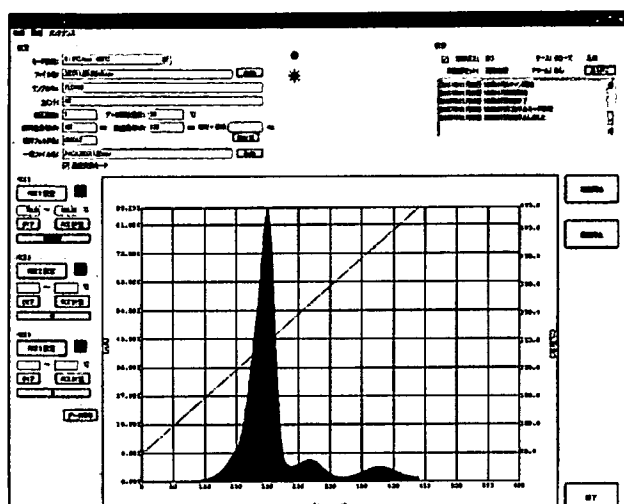


図 1 TLD100 の発光パターン

断熱フィルターの通過帯域が異なるために、サーモ社の TLD 3500 と異なるパターンを示した。

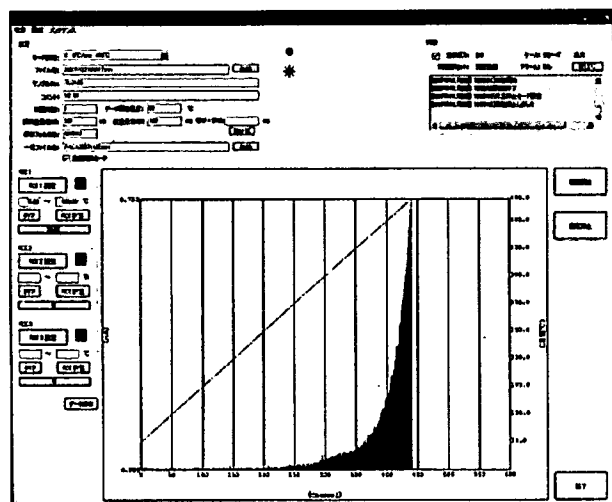


図 2 TLD100 のバックグラウンド発光パターン

サーモ社の TLD 3500 より、若干のノイズレベルが高い。