

時間経過を考慮した減衰計算に基づき、照射時間を定めた。

コショウ試料の照射は1kgの袋入りの試料を約2L容量の照射容器に入れて行った。また、分離した鉍物の再照射は、試料をガンマセルの中心位置において実施した。

#### 4) TL 測定試料の調製

試料からの鉍物分離、精製は、スキームに従う2つの方法で行った。図1-aに示す方法は、前項に示された粉末試料の一般的手順を20g試料にスケールアップしたもので、比重液としてポリタングステン酸ナトリウム( $d = 2.0$ )を用いている。この際、最初の比重液への試料懸濁の割合は変更せず4本の遠心管で処理して得られた沈殿物を1本の試験管に集め精製のステップへ移した。

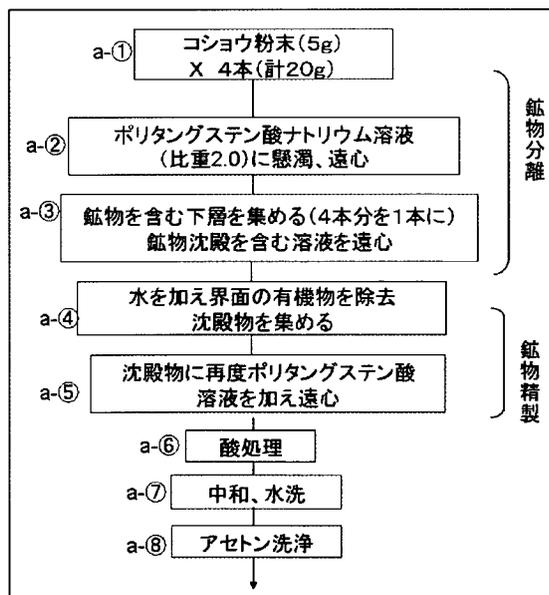


図1-a. 一般的な粉末試料の鉍物分離方法

図1-bは、今回検討した改良法の概略で、比重2.0のポリタングステン酸ナトリウム溶液より低比重の飽和タングステン酸ナトリウム溶液( $d=1.7$ )を用い、さらにアミラーゼによるデンプン消化の過程を加えている。なお、両方法ともポリタングステン酸ナトリウム溶液を沈殿物に添加して遠心分離した後の操作は基本的に同一である。

両方法により鉍物の分離、精製を行った後は、炭酸塩の除去と水洗い、アセトンを用いた水分除去を行い、TL測定に移る。

#### 5) TL 測定

本研究では、50°Cの加熱は条件をそろえるため16時間にし、発光量の積分範囲は70-400°Cとした。また、鉍物測定のための試料皿はステンレス(SUS304-

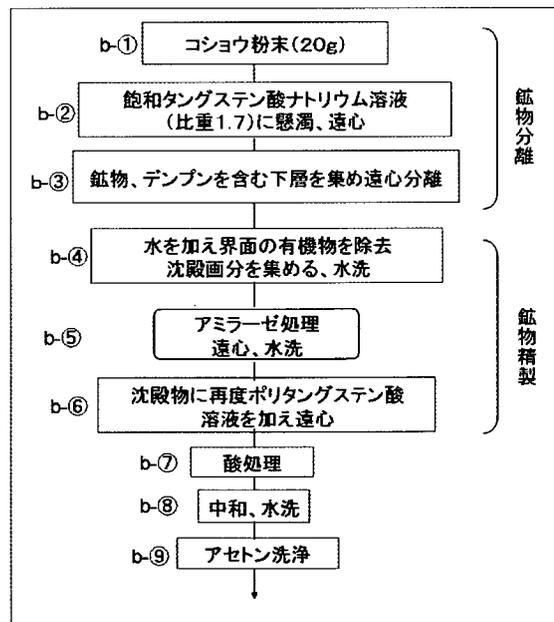


図1-b. 混入デンプンのアミラーゼ処理を取り入れた改良方法の手順の概略

2D) 製丸形 (直径 6.0mm、厚さ 0.2mm、縁の高さ 1 mm) を使用した。

TL 昇温プログラム条件は、以下の様に設定した。

測定開始 70°C 5sec

終了温度 400°C

昇温 6°C/sec

測定時間 54 秒

なお、TL 比の算出方法は以下のようになる。

TL 発光比 = Glow 1 / Glow 2

ただし、 $Glow\ 1 = Glow\ 1' - Glow\ 1''$   
B

$Glow\ 2 = Glow\ 2' - Glow\ 2''$  B

#### 6) 検出限界の検討

前述した 2 つの試料分離手順; 従来法 (a) および酵素法 (b) を、コショウ試料を用いずに 6 回ずつ実施し、Glow1 および Glow 2 の値を求め、平均値と標準偏差を求めた。これらの値からそれぞれの方法において検出限界と発光量の下限値を求めた。

3. 18 年度、棚瀬らによる研究 (研究方法)  
18 年度の棚瀬らの研究は以下のような方法で行われた。

#### (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」7) を 2 個セッ

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。照射は 1k Gy/h の線量率になる位置で 1 時間の静止照射で行った。

#### (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。

① S D A (未結晶の人工二酸化珪素 (SiO<sub>2</sub>)) 関東化学製、試薬特級、Cat.No. 37974-00、Lot. No. 704X1428、Silicon Dioxide (Quartz Form)

② S D C (結晶化している人工二酸化珪素 (SiO<sub>2</sub>)) 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 1 k Gy 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°C、昇温速度 6°C/min、終温度 490°C、測定方法は照射した試料を 50°C、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) に載せて TL 測定し、全温度範囲における発光量の積分値を求めた。

#### (3) 鉍物の粒度と 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°C 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。

#### (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  $\mu\text{m}$ の土壤試料及び、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  $\mu\text{m}$  ~ 125  $\mu\text{m}$ になるように粒度をそろえ、550°C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°C、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°C)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  $\mu\text{m}$ 土壤試料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  $\mu\text{m}$ になるよう粒度をそろえ、550°C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。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°C、40°C、50°Cとした。

#### (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壤中で粒径125  $\mu\text{m}$ 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。

#### (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(標準線量)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SiO<sub>2</sub>(JF-1)と発光しにくい試料である種子島の標準土壤を使用した。2k 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。

#### (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100 gの試料3個にそれぞれ、10 mg、30 mg、50 mg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、10

mg の添加では約 3 mg、30 mg の添加では約 10 mg、50 mg の添加では、約 30 mg 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、フェヌグリーク、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 4.5 mg 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、フェヌグリーク、セロリのホールの場合は試料 100 g 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。

(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鉱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、確実に鉱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鉱物は別に照射を行った。

#### 4. 19 年度、棚瀬らによる研究(研究方法)

19 年度における棚瀬らの研究項目と方法は以下の通りである。

##### (1) 鉱物の回収率を高めるための検討(添加回収実験)

抽出の手順の中でどのような点に留意することにより鉱物の回収率を高めることができるかの検討を行う。本年は特に次の 2 点について注目した。まず、香辛料が入っていた袋に対するサンプリングである。2 点目は抽出段階における有機物混在の目視ができる場合に、効率的な有機物除去を行うことである。添加回収実験は各試料に 65 ~ 125 μm の篩にかけた砂（河砂：赤玉土 = 1 : 1）を一定量添加した。この砂は、有色の鉱物が多く、初めてでも目視で確認しながら抽出作業が可能である。

この砂を前回同様、粒状試料の場合は試料 100 g に砂 20mg を、粉末試料の場合には試料 5 g に砂 5 mg を添加した。抽出用比重液としてポリタングステン酸ナトリウム溶液を用いて抽出を行った。

試料は、18 年度も実施したフェヌグリーク、ブラックペッパー、パプリカ、ターメリックの他に、ホワイトペッパー、カエンペッパー、ローレル、黒ゴマ、シナモン、オレガノである。上記の実験を行い前年度のデータとの比較検討を行う。

(2) 標準線量照射の精度と再現性の向上  
照射施設は日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所 食品照射棟第 2 照射室にて実施した。試料の照射位置に関する再現性を高めるため、幅 40 cm、高さ

10 cm、奥行き 10cm のダンボール箱（後にアクリル樹脂性に変更）を照射台として用い、アラニン線量計の中心と試料輸送専用容器との中心を合わせて照射を行った。

### (3) TL 測定器の性能確認及び校正用標準試料の探索

TL 測定器を照射食品の検知に用いる場合の感度モニターに用いる試料を選定するため標準岩石試料として、JG-1（花崗閃緑岩（1967）群馬県沢入）、JF-1（長石（1985）長野県南木曾町）及びカオリナイトや白陶土として知られるカオリンの試薬、RSI 社の SiO<sub>2</sub> を用いた検討を行った。

これらの試料の TL 測定を行い、測定器の感度モニターとしての性能を調べる。表 3-1 は実験に用いた試料の一覧を示す。ここでは同じ試料名でも、照射の有無や、アニーリングの有無を変えて測定しているものもあるので、試料番号をアルファベットで示した。実験に用いた TL 測定器は Harshaw TLD3500 である。

表 3-1 実験試料一覧

試料番号	試料	照射の有無及びアニーリングの有無
A	JF-1	非照射・アニーリングなし
B	JG-1	非照射・アニーリングなし
C	JF-1	照射・アニーリング有り
D	JG-1	照射・アニーリング有り
E	カオリン	照射・アニーリング有り
F	RSI 社の SiO <sub>2</sub>	照射・アニーリング有り
G	TLD-100 H	照射・アニーリングなし

### (4) 新規香辛料についての添加回収実験

我々が、これまでに抽出実験を行っていない香辛料に対し砂を添加し、それを回収する実験を行った。対象とした香辛料は、ミント、タラゴン、タイム、マジョラム、スターアニス、アニスシード、クミンシード、クローブス、ベイリーブス、フェネルシードである。表 4-1 は各試料の状態を示す。試料はいずれも粒状試料として処理した。各試料 100 g に砂 20 mg を添加し、回収を行った。

表 4-1 添加回収実験試料

香辛料名	状態	原産国
ミント	ホール	エジプト
タラゴン	みじん切り	不明
タイム	ホール	モロッコ
マジョラム	みじん切り	エジプト
スターアニス	ホール	中国
アニスシード	ホール	スペイン
クミンシード	ホール	インド
クローブス	ホール	スリランカ
ベイリーブス	ホール	トルコ
フェネルシード	ホール	インド

### (5) 鉍物分離用比重液の検討

現在、TL 法における鉍物分離のための比重液として用いられているポリタングステン酸ナトリウム溶液（d=2.0）に代わる比重液として、安価な飽和タングステンナトリウム（d=1.5）を用いた分離実験を行い、比重液としての比較を行う。

実験はパプリカの粉末を検体とし、1

検体あたり約 5 g を使用した。添加した砂は、1 の添加回収実験で使用したものと同じである。試料 5 g に対し砂を 5 m g 添加した。飽和タングステン酸ナトリウム溶液での分離を 3 検体行い、比較の為、ポリタングステン酸ナトリウム溶液を用いた分離を 1 検体行った。使用した比重液の量は、1 回目が 25 m l、2 回目が 5 m l で共通である。又、その他薬品の量も共通である。

#### (6) TL 法の簡略化の検討

粉末香辛料を直接試料皿に載せ、TL 測定を行う場合を考え、まず予備的な試験として、TL 測定器と同じ加熱を電気炉で行い、試料の状態の変化、発煙の程度、温度などを調べる実験を行った。試験は香辛料として市販される粉末状のプリカを使用した。

実験は 3 試料 (n=3) 各約 50mg で実施した。これらの試料について含まれる水分を取り除くため、予め電気炉内において 100°C、3 時間程度加熱し、後に 490°C において 16 時間程度加熱した。

#### (7) ESR 法の検討

ESR 法の検討に用いる試料の照射はコバルト 2 棟照射施設 (2007 年 12 月 1 日現在コバルト 60 1161TBq 保有) 第 7 照射室で行った。試料の吸収線量は 1 k Gy、2 k Gy、5 k Gy、10 k Gy とした。

今回測定に使用した試料は通常市販されている乾燥果実及び健康食品、及びフルクトース、グルコース、スクロースの 3 種の糖類である。この内、乾燥果実

はマンゴー、イチジク、ブルーベリー、パイナップル、アズキの 5 種類、健康食品については、マカ、ウコン、キトサン、スピリルナ、アロエの 5 種、である。

各試料については照射線量毎に 10ml の遠心管に入れ、乾燥果実については細く短冊切りにした。但しイチジクについては硬くて短冊状に切ることができず、破片 (大きき約 1mm) を集め試料管へ入れた。ここに使用した乾燥果実は購入後、約 6 ヶ月間シリカゲルや五酸化二リンを入れたデシケータ内に乾燥保存されたものである。

健康食品については、粒状であるため、メノウの乳鉢を使用し、粉末状にすりつぶした。健康食品の粒度については各種類の網目のふるいを使用し、マカ、ウコン、キトサンを含むもの目開き 125  $\mu$  m、アロエを含むもの目開き 250  $\mu$  m、スピリルナを含むもの目開き 63  $\mu$  m に振り分けた。粉末状にすることで、測定時に試料が移動しにくいようにし、かつ試料挿入に対する信号出力の方向依存性が無視できるようにした。糖類についても同様にふるいを使用し、フルクトース、グルコースは目開き 250  $\mu$  m、スクロースは目開き 500  $\mu$  m とした。

測定には日本電子(株)製 ESR 測定装置の型式 JM-FE3 (以下 FE-3) を使用した。使用した試料管は  $\phi$  5 mm で試料測定部 100 mm が石英で残りが PYREX を付け合せになっている日本電子データム(株)製の X-Band 用 No-193 である。

$\gamma$  線照射により生成されたフリーラ

ジカルが、時間経過によりどのように減少するかを調べるため、試料をデシケータ内で保存した。試料の保存期間は約1ヶ月で保存状況はシリカゲル、五酸化二リンの入れられたデシケータ中で保存した。

### C. 研究結果

#### 1. 17年度、後藤らによる研究(研究結果)

##### (1) 各種香辛料から分離できる鉍物の確認

1mgの鉍物の分離を目標に試料の採取量を検討した。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1に示す。

表1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を示す鉍物が多かった。これとは多少形が異なるスペイン産パプリカの曲線や、330~340℃付近の発光量がやや高いマレーシア産黒コショウもあった。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皿に載せた鉍物により、発光曲線の低温側ピーク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が、発光曲線は図2や図7

表1 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		ホール	100	2.3
セロリ (種子)	インド	ホール	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

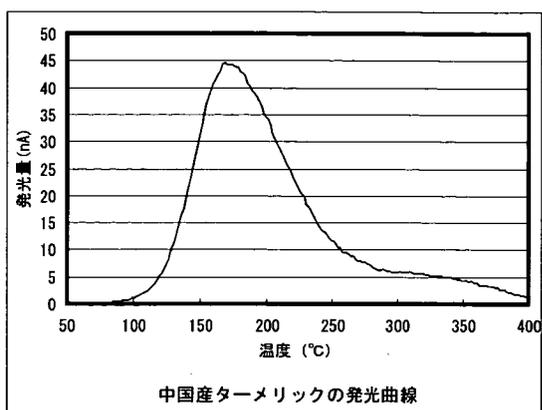


図1-1 ターメリックから分離した鉍物に $\gamma$ 線を1kGy照射したときの発光曲線

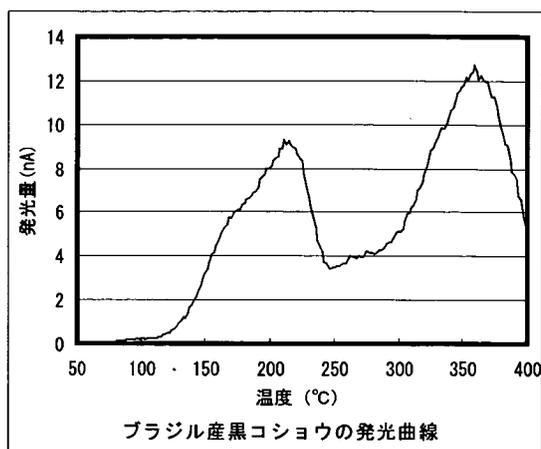


図1-4 黒コショウから分離した鉍物に $\gamma$ 線を1kGy照射したときの発光曲線

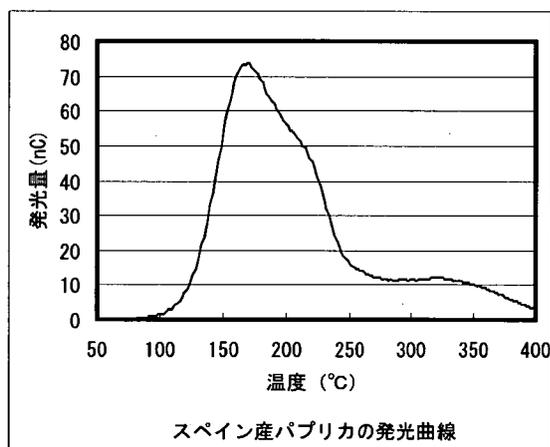


図1-2 パプリカから分離した鉍物に $\gamma$ 線を1kGy照射したときの発光曲線

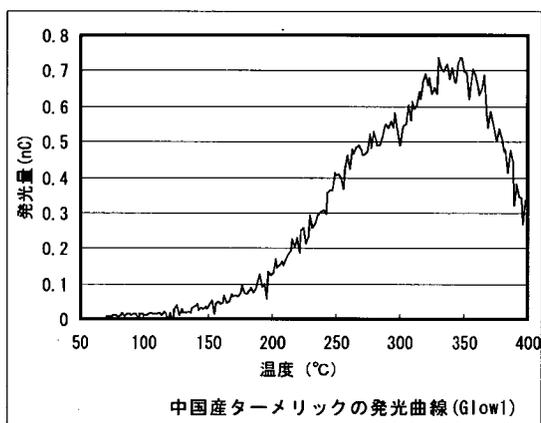


図2 照射されていない試料から分離した鉍物の発光曲線

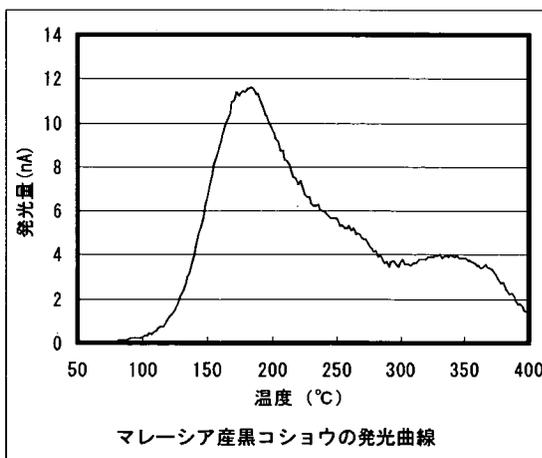


図1-3 黒コショウから分離した鉍物に $\gamma$ 線を1kGy照射したときの発光曲線

のように300～350°C付近の発光量が高くなった。

また、表1に示す香辛料から鉍物を分離して測定した発光量 (Glow 1) 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。

破線は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。

## (2) 鉍物の添加回収

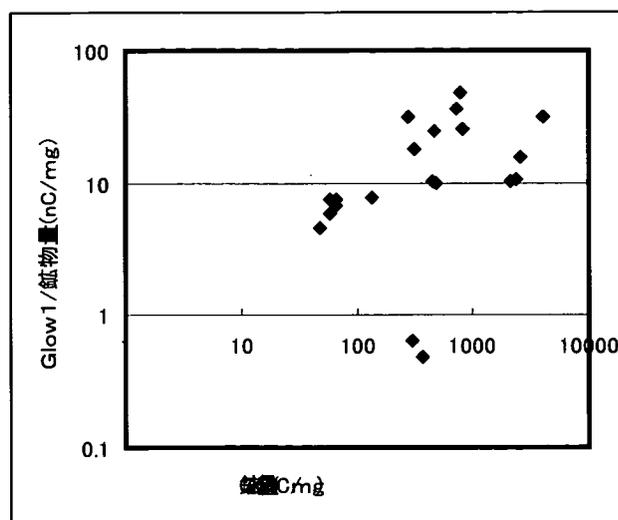


図3、香辛料から分離した鉍物の発光量 (nC/mg)

約 30mg の鉍物を添加した照射黒コショウから TL 測定手順によって分離できた鉍物量を表 2 に示す。この結果、黒コショウから分離できる鉍物量は 1.1 ~ 31.3mg と変動した。

した黒コショウ 100g に非照射土壌 (75 ~ 173  $\mu$ m) 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 3 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 発光比が一番小さい試料を発光曲線の例として図 4 に示す。

表 2 黒コショウ 100g からの分離した鉍物量

(単位 : mg)

No	最大値	最小値	平均値	標準偏差
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

上記表 2 と同一ロットの 5.4 k Gy 照射

表 3 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
標準偏差	0.92	12.23	37	0.14

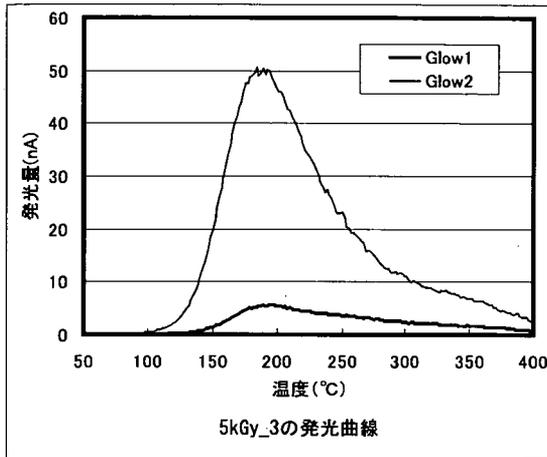


図4 試料3のTL測定が発光曲線  
Glow1において190°C付近に発光極大が認められた。

### (3) 試料皿の形状

分離した鉱物のTL測定を行うとき、試料皿が不可欠であるので試料皿の形状を検討した。試料皿の熱容量によって発光極大の温度が変化することが予想されたので、素材・厚さの異なる試料皿(正方形: 5.9mm角、縁なし)に0.5Gy照射したTLD素子(平均:5.9mg)を乗せ測定した。本研究で使用したステンレス製の試料皿に載せて測定したときの発光曲線を図5に示す。このときのピーク(V)の温度は平均232.1°C、標準偏差3.4°C、ピーク(VI)の温度は平均297.2°C、標準偏差5.6°Cであった(10回数測定)。発光強度が一番強いピーク(V)の温度を表4-1~4-3に示す。ピーク(V)の温度はステンレス製の試料皿(縁なし)を使用した場合は、厚さの違いによるピーク温度変化が大きいですが、アルミニウム製ではほとんど変化しなかった。TLD素子を直接TL測定装置のヒータに乗せて測定したときのピーク温度を表6-4

に示す。

試料皿の材質によって発光量に違いが認められた。素子1個あたりの発光量はアルミニウム製で約2,000nC、ステンレス製で約1,650nC、銅製で約1,550nCであった。また、銅製の試料皿は測定後、酸化し変色していた。

ヨーロッパ標準法8)で推奨されている積分の温度範囲はTLD100のピーク温度から求める。この範囲はピークVとVIの温度差:ISを求め、ピークVの温度からISを引いた温度からピークVの温度までである。このように算出した積分の温度範囲は167~232°Cであった。

表4-1 TLD素子のピーク温度の比

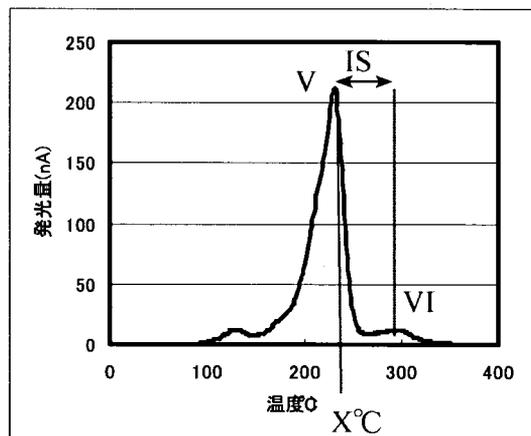


図5 TLD素子の発光曲線  
ステンレス製試料皿(円型)に0.5Gy照射したTLD100を載せ、測定した。

較 (ステンレス製、TLD 100)

\* : 丸型、縁の高さ 1 mm

厚さ (mm)	発光極大 (°C)		試料皿重量 (mg)	
	平均	SD	平均	SD
0.1	230.4	2.8	27.49	0.04
0.2	230.8	2.3	54.28	0.07
0.5	236.8	4.4	134.27	0.17
1.0	237.0	3.7	267.94	0.43
0.2 *	232.6	4.1	62.71	0.09

表 4-2 TLD素子のピーク温度の比較 (アルミニウム製、TLD 100)

\* : 丸型、縁の高さ 1 mm

厚さ (mm)	発光極大 (°C)		試料皿重量 (mg)	
	平均	SD	平均	SD
0.1	229.0	3.2	9.01	0.12
0.2	227.0	3.2	17.75	0.03
0.5	229.8	3.8	46.42	0.07
1.0	229.0	2.2	90.57	0.08
0.2 *	230.6	3.9	20.75	0.05

表 4-3 TLD素子のピーク温度の比較

(銅製、TLD 100)

厚さ (mm)	発光極大 (°C)		試料皿重量 (mg)	
	平均	SD	平均	SD
0.1	228.4	4.4	32.99	0.04
0.2	229.0	4.6	61.71	0.19
0.5	230.4	3.7	149.84	0.13
1.0	241.6	3.4	303.92	0.33

表 4-4 TLD素子のピーク温度 (°C)

	平均	SD
直接測定 1	224.0	2.8
直接測定 2	224.6	2.11

TLD測定時に試料皿が深いと蛍光の計測

に影響が出ることが予想された。ヨーロッパ標準法には試料皿については円盤状または浅いカップと記されている。そこでアルミニウム製の縁の高さが異なる3種類の試料皿でTLD素子を測定した発光量を表 5-1 に示す。5 kGy 照射した黄砂をそれぞれの試料皿に載せて測定したときのTL発光比を表 5-2 に示す。

表 5-1 試料皿の縁の高さの発光量への影響 (アルミニウム製)

0.5Gy 照射したTLD100 を載せて測定した。

- A) 厚さ 0.2mm
- B) 直径約 6mm、厚さ 0.2mm
- C) 直径約 4.5mm、厚さ 0.1mm (示差熱計用セル)

縁の高さ (mm)	発光量 (nC)		試料皿重量 (mg)	
	平均	SD	平均	SD
0.0 A)	2170	67.8	17.68	0.06
1 B)	2113	139.4	20.67	0.03
2.6 C)	2432	25.1	15.45	0.03

表 5-2 試料皿の縁の高さのTL発光比への影響 (アルミニウム製)

比較試料 : 5 kGy 照射した黄砂 A ~ C)  
試料皿は表 7-1 に同じ。

縁の高さ (mm)	TL発光比	
	平均	SD
0.0 A)	1.38	0.13
1 B)	1.41	0.06
2.6 C)	1.62	0.06

(4) 照射試料の経時変化

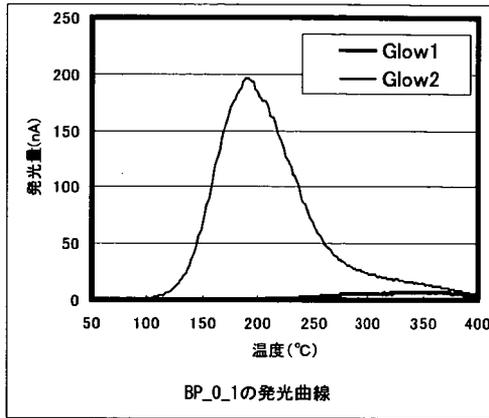


図6-1 発光曲線（黒コショウ）対照

照射した黒コショウとターメリックは段ボール箱に入れ、光が当たらないようにして、実験室内に保管した。一部は2cmほどの厚さでポリ袋に入れ、蛍光灯の下に数ヶ月間置いた。このときの明るさは照度計（トプコム製 IM-2D）で測定したところ昼間約 250 ルックス、夜間約 140 ルックスであった。試料皿に乗せた

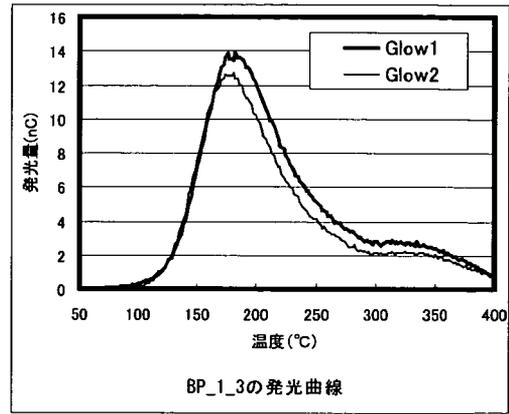


図6-2 発光曲線（黒コショウ）1.1 k Gy 照射1ヶ月後

鉍物の量は黒コショウで1.05～3.81mg、ターメリックで0.81～2.63mgであった。

発光曲線の代表例を図6-1および6-2に示す。各試料から分離した鉍物の TL 発光比を表6-1および6-2に示す。Glow1 の発光量は照射試料と非照射試料では異なるので、鉍物重量あたりの発光量を表7-1および7-2に示す。

表6-1 TL発光比（黒コショウ）

保存条件	対照		1.1 k Gy		5.4 k Gy	
	平均	S D	平均	S D	平均	S D
1ヶ月後（暗所）	0.04	0.01	1.19	0.10	2.35	0.09
3ヶ月後（暗所）	—	—	1.01	0.03	2.13	0.20
3ヶ月後（明所*）	0.04	0.01	0.92	0.19	1.94	0.24

\* 2ヶ月間、蛍光灯の光を暴露

表6-2 TL発光比（ターメリック）

条件	対照		1.1 k Gy		5.8 k Gy	
	平均	S D	平均	S D	平均	S D
A	0.04					
(**)	0.01					
(**)	1.19	0.08	3.09	0.05		
B	—	—	1.07	0.08	2.70	0.20
C	0.02	0.01	0.76	0.08	2.17	0.30

A: 1ヵ月後（暗所）、B: 4ヶ月後（暗所）、C: 4ヶ月後（うち3ヶ月間、蛍光灯の光を暴露）

\*\* 測定回数：4

表 7- 1 鉍物重量あたりの発光量

黒コショウ、Glow1 単位：nC/mg

条件	対照		1.1 k Gy		5.4 k Gy	
	平均	S D	平均	S D	平均	S D
A	28.34	12.22	130.0	42.64	243.1	69.74
D	—	—	137.7	40.43	203.2	46.78
E	31.04	17.85	91.52	76.70	216.7	59.06

A：1ヶ月後（暗所）、D：3ヶ月後（暗所）、E：3ヶ月後（うち明所2ヶ月間、蛍光灯の光を暴露）

表 7- 2 鉍物重量あたりの発光量

ターメリック、Glow1 単位：nC/mg

条件	対照		1.1 k Gy		5.8 k Gy	
	平均	S D	平均	S D	平均	S D
A	8.32					
(**)	11.99					
(**)	200.2	77.59	1069	482.5		
B	—	—	701.5	194.9	1190	190.5
C	17.65	8.47	368.1	145.7	1045	672.6

条件は表 6- 2 に同じ。

表 8 Glow1・照射と Glow2 測定の間隔

測定期間 (A→B)	黒コショウ (*)		ターメリック (**)	
	平均	S D	平均	S D
直後	1.05	0.09	0.62	0.07
1週間後	1.08	0.04	0.75	0.08

\* 1.1kGy 照射 4ヶ月後に測定

\*\* 1.1kGy 照射 4ヶ月後に測定、うち3ヶ月は蛍光灯のもとに置いた

照射試料の Glow1 において、発光極大は1ヶ月後では180℃前後、数ヶ月後では190℃前後になった。

T L測定において、鉍物を分離後、A「50℃で一晩加熱→Glow1の測定→照射→50℃で一晩加熱」とB「Glow2の測定」と二つの工程に分け、AとBの間隔を変えて測定した結果を表8に示す。

(5) 混合実験

5.4kGy 照射した黒コショウを非照射黒コショウに混合したものから鉍物を分離した結果を表9に示す。混合した非照射黒コショウと5.4kGy 照射した黒コショウの発光曲線を図7と図8に示す。表9において「S：肩あり」とした発光曲線（図9-1）は190～220℃付近に肩を示す。「P：発光極大あり」としたもの（図10-1、11-1）は190～200℃付近に発光極大（ピーク）を示す。5.4kGy 照

表 9 T L 発光比および発光曲線の形

割合	試料 1	試料 2	試料 3	試料 4	試料 5
2%	0.053 S	0.104	0.070 S	0.070	0.070 S
5%	0.106 P	0.030	0.052 S	0.060 P	0.069
10%	0.117 S	0.019 P	0.130	0.060	0.148 P
20%	0.198 P	0.393 P	0.172 P	0.159 P	0.160 P

割合は試料 100g 中の 5. 4kGy 照射した黒コショウの割合をしめす。

P: 発光曲線に発光極大あり

S: 発光曲線に肩あり

射した黒コショウを 20% 混合した試料では 5 回の実験において、すべてに発光極大が認められた。

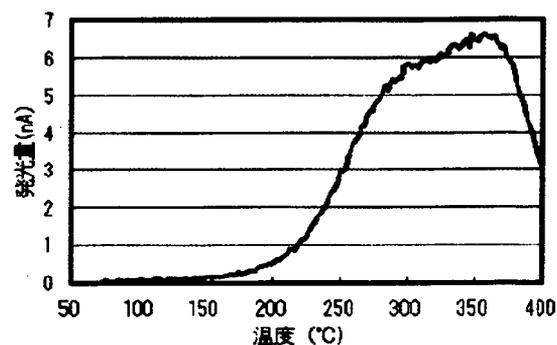
図 7 から図 12-2 において、上の図は Glow 1 の発光曲線の特長が分かり区表示し下の図は Glow1 と Glow2 の相対強度が分かるように重ねて表示した。

照射・非照射の混合割合が同じでも発光曲線に差があったので、照射試料の影響

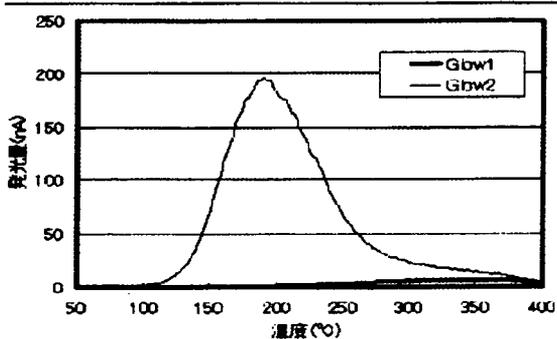
が大きもの（肩やピークが認められるもの）と影響が小さいものの例を図 9- 1 から 12- 2 に示した。

(6) 高温加熱処理による T L 発光への影響

5kGy 照射した黄砂を 150℃ および 180℃ で加熱処理した結果を表 10- 1、10- 2 に示す。150℃ および 180℃ で処理したとき、ピーク温度がほぼ同じであれ

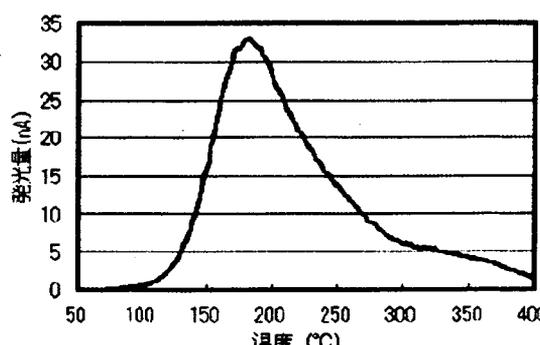


BP\_0\_1G1の発光曲線(Glow1)

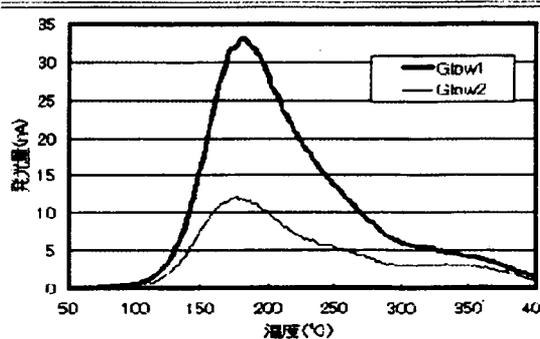


BP\_0\_1の発光曲線

図 7、非照射黒コショウの発光曲線



BP\_5\_1G1の発光曲線(Glow1)



BP\_5\_1の発光曲線

図 8、5. 4kGy 照射黒コショウの発光曲線

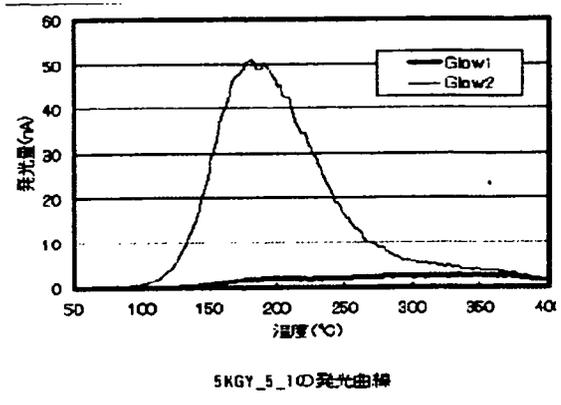
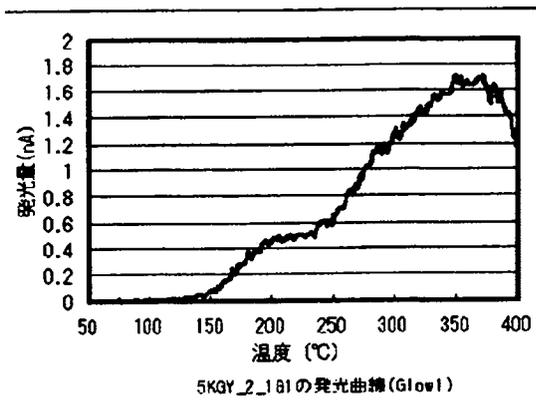


図9-1 5.4kGy 照射した黒コショウを2%混合  
(照射試料の影響が大きい例) 200~220°C付近に肩が認められる

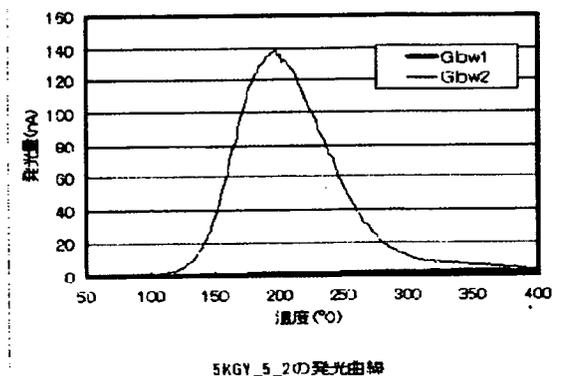
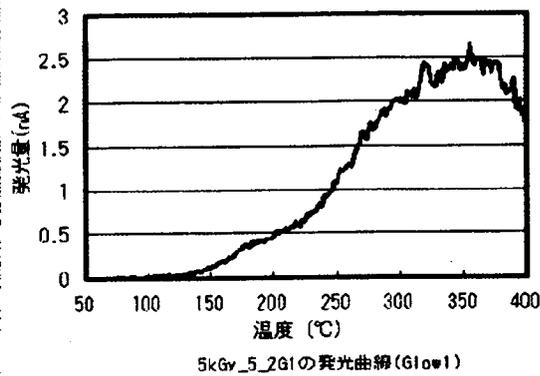


図9-2 5.4kGy 照射した黒コショウを2%割合で未照射の試料に混合  
(照射試料の影響が小さい例)

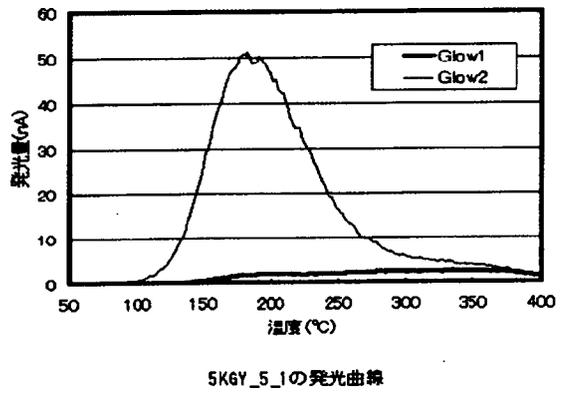
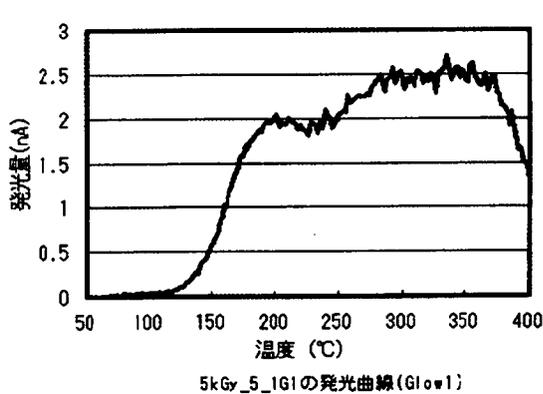


図10-1 5.4kGy 照射した黒コショウを5%混合(照射試料の影響が大きい例)

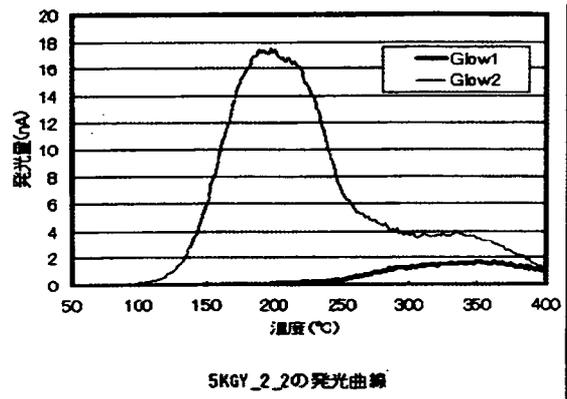
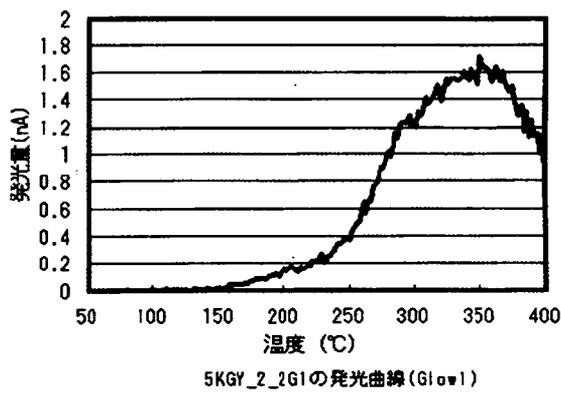


図 10- 2 5. 4kGy 照射した黒コショウを 5%混合 (照射試料の影響が小さい例)

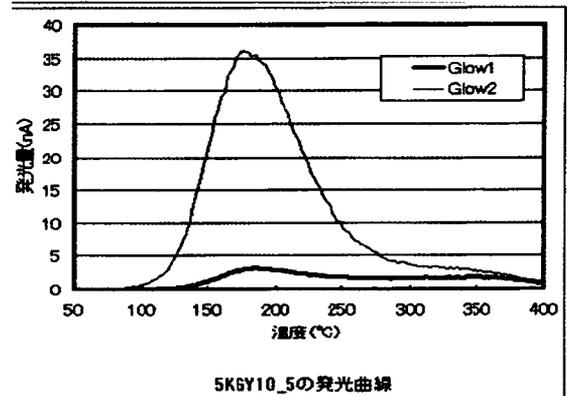
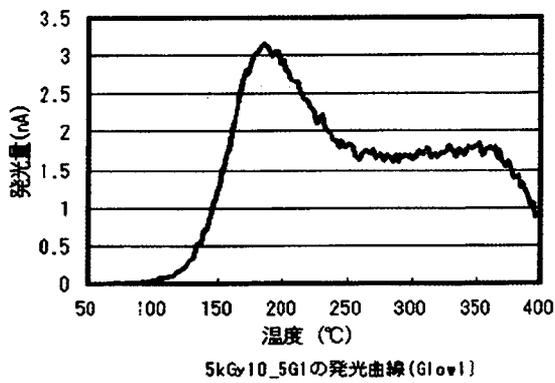


図 11- 1 5. 4kGy 照射した黒コショウを 10%混合 (照射試料の影響が大きい例)

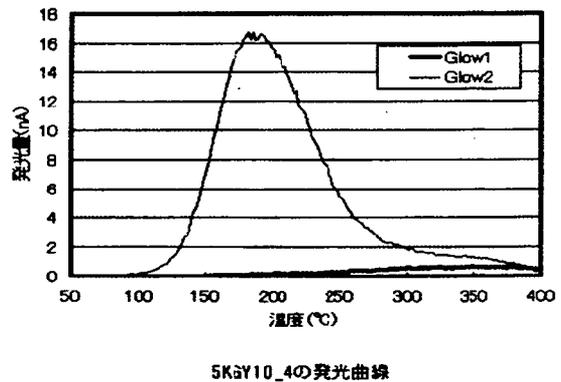
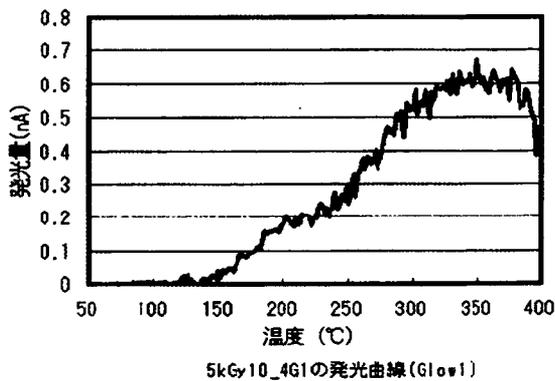
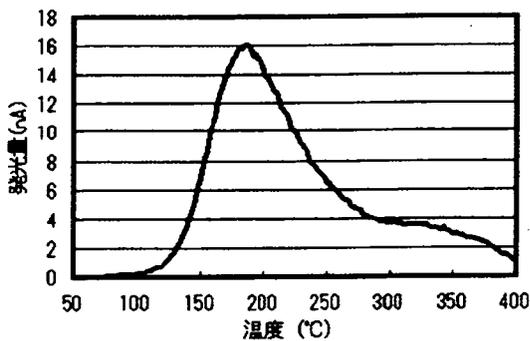
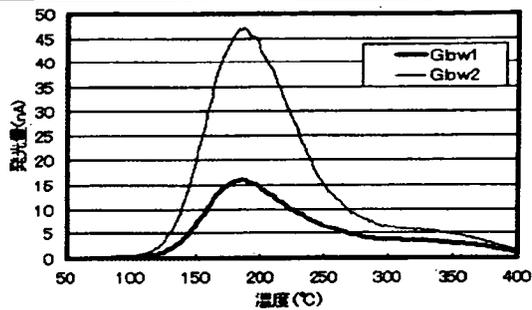


図 11- 2 5. 4kGy 照射した黒コショウを 10%混合 (照射試料の影響が小さい例)

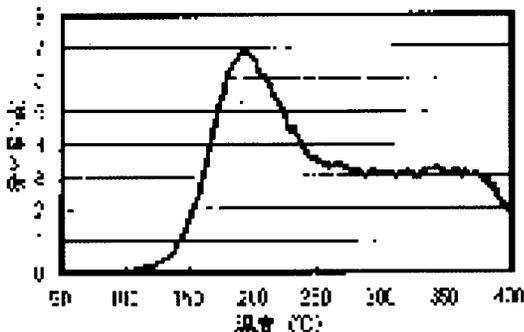


BP\_20\_2G1の発光曲線(Glow1)

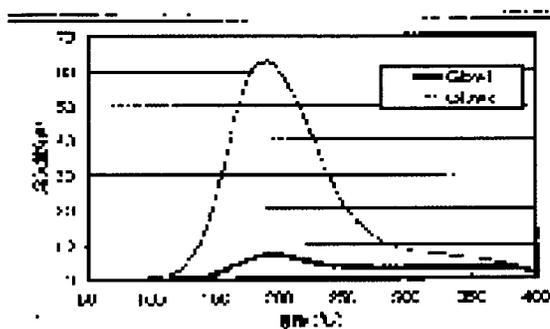


BP\_20\_2の発光曲線

図 12- 1 5.4kGy 照射した黒コショウを 20%混合 (TL 発光比が大きい例)



BP\_20\_2G1の発光曲線(Glow1)



BP\_20\_2の発光曲線

図 12- 2 5.4kGy 照射した黒コショウを 20%混合 (TL 発光比が小さい例)

ば、発光曲線も同じような形を示した。  
180°Cで加熱処理した例を図 13- 1 ~  
13- 8 に示す。

表 10- 1 TL 発光比とピーク温度  
(加熱温度：180°C)

加熱時 間 (分)	T L 発 光 比		ピーク 温 度 (°C)	
	平均	S D	平均	S D
0	1.71	0.20	181	1.6
0.17	0.99	0.14	224	5.1
0.5(*)	0.77	0.08	249	4.4
1	0.73	0.21	256	5.3
2	0.64	0.10	261	3.2
8	0.45	0.09	273	4.1
30	0.49	0.12	302	17.4
60	0.36	0.12	334	3.3

測定回数：6、\*測定回数：5

表 10- 2、TL 発光比とピーク温度  
(加熱温度：150°C)

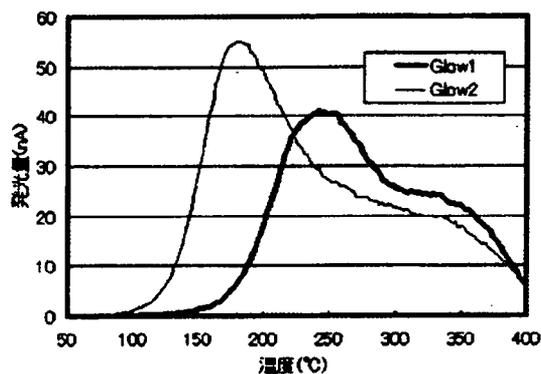
加熱時 間 (分)	T L 発光比		ピーク温度 (°C)	
	平均	S D	平均	S D
0	1.52	0.06	182.2	2.3
4	0.74	0.03	233.8	11.5
8	0.58	0.12	248.8	1.8
15	0.63	0.03	252.2	0.5
30	0.54	0.02	257.2	2.7
60	0.46	0.04	264.0	3.5
120	0.43	0.01	272.6	6.4
240	0.35	0.06	277.4	2.7

(7) 再照射線量の影響

TL 発光比は Glow1/Glow 2 で計算する  
が、Glow2 は再照射線量が大きくなれば

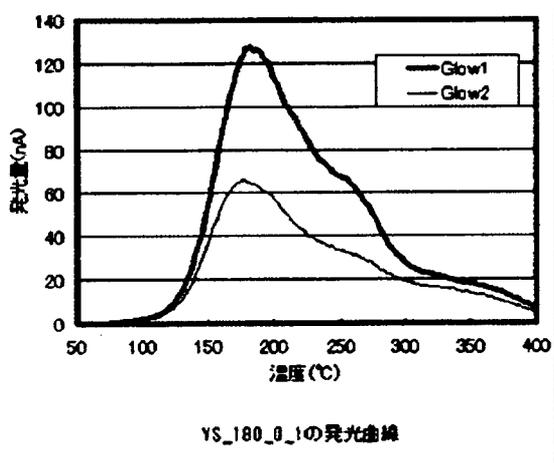
大きい発光量になる。5kGy 照射した黄砂の再照射線量と TL 発光比を図 14 に示す。

発光量の積分範囲を変えて、算出した値を表 11 に示す。本研究では、積分範囲を 70-400℃とし、Glow1, Glow2 は 2 回ずつ測定し、熱影響の分を除いて計算した。ヨーロッパ標準法に例示されている温度範囲 150-250℃、推奨されている TLD100 のピーク温度から算出した 167-232℃でそれぞれ積分した。



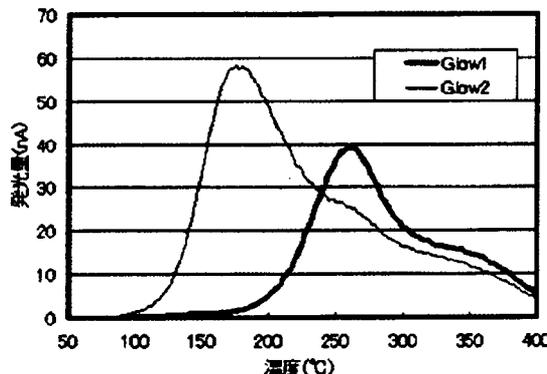
YS\_180\_30\_1の発光曲線

図 13- 3 180℃で 0.5 分加熱



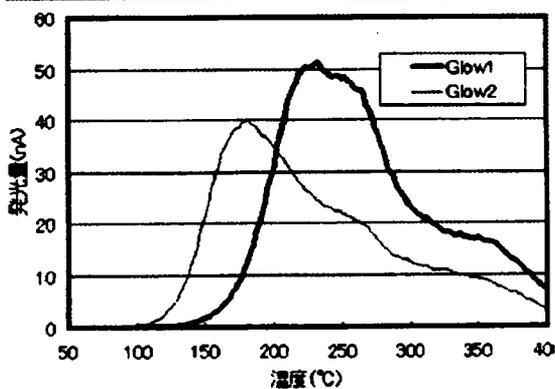
YS\_180\_0\_1の発光曲線

図 13- 1 5kGy 照射した黄砂 (加熱時間: 0 分)



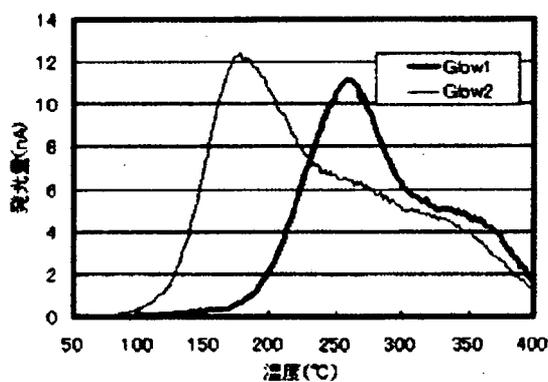
YS\_180\_120\_1の発光曲線

図 13- 4 180℃で 1 分間



YS\_180\_10\_1の発光曲線

図 13- 2 180℃で 10 秒加熱



YS\_180\_80\_1の発光曲線

図 13- 5 180℃で 2 分間

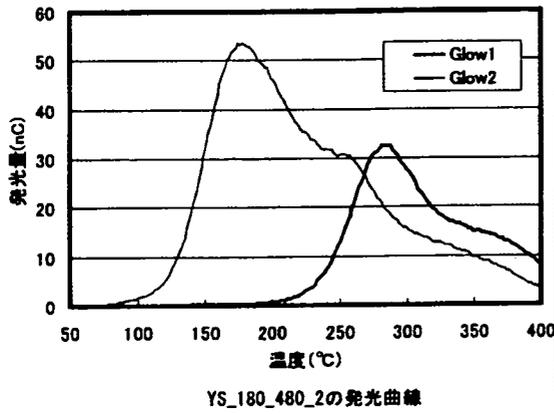


図 13- 6 180°Cで8分間

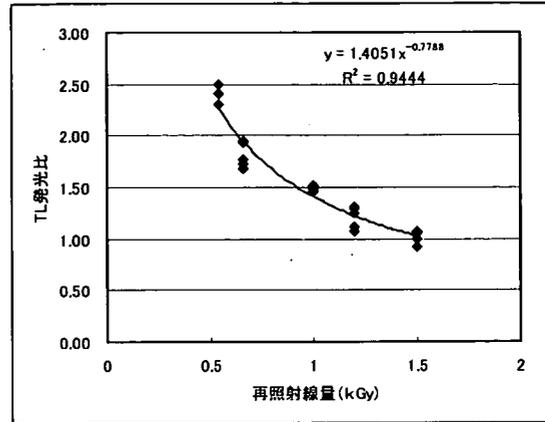
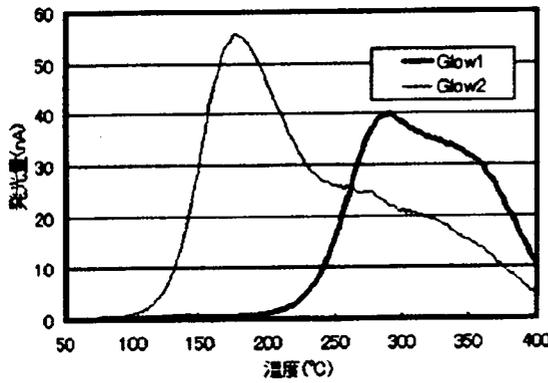
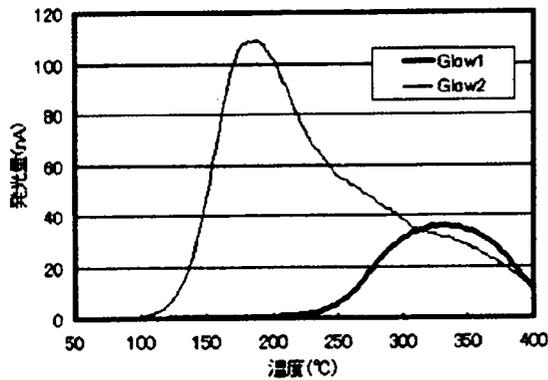


図 14 再照射線量と TL 発光比の関係  
試料は 5kGy 照射した黄砂



YS\_180\_30a\_1の発光曲線

図 13- 7 180°Cで30分間



YS\_180\_60a\_1の発光曲線

図 13- 8 180°Cで60分間

表 11 再照射線量 (kGy) と TL 発光比の関係

積分範囲	0.54	0.66	1.0	1.2	1.5
70-400°C	2.36	1.81	1.49	1.20	1.02
150-250°C	2.84	2.05	1.62	1.26	1.00
167-232°C	3.01	2.16	1.72	1.31	1.05

#### (8) 照射線源の影響

黒コショウとターメリックに電子線またはγ線を照射した3ヵ月後の TL 発光比を表 12 に示す。また、鉱物重量あたりの発光量を表 13 に示す。

表 12 照射線源と TL 発光比

	3kGy		7kGy	
	電子線	γ線	電子線	γ線
黒コショウ	1.34	1.52	1.96	2.19
ターメリック	1.78	1.84	2.19	2.62

表 13 照射線源と Glow1 の発光量 (nC/mg)

	3kGy		7kGy	
	電子線	γ線	電子線	γ線
黒コショウ	173.5	1453	115.9	2634
ターメリック	1793	929.5	2085	1114

電子線または $\gamma$ 線を照射したターメリックはほぼ同じ発光曲線を示した。しかし、黒コショウでは発光量に差が認められ、発光曲線と発光極大もやや異なった(図15)。また、 $\gamma$ 線を照射したものは発光極大を200°C付近、電子線を照射したものは190°C付近に認められた。

### (9) 発光量の下限值

発光曲線の形、TL発光比で照射の有無を判断するが、発光量の確かな限界を見定める必要がある。そこで、ヨーロッパ標準法に準じて、空試験をおこなった。空試験を5回行ったときのGlow1、Glow2を表14-1に示す。ステンレスの試料皿を5回測定した時のGlow1、Glow2を表14-2に示す。試料皿のGlow1はほとんどなかった。1kGy照射すると空試験より低い、わずかに発光が認められた。

表14-1 空試験からの判定の限界(単位:nC)

	平均	標準偏差	下限値
Glow1	0.08	0.17	5.7
Glow2	1.23	0.59	30.0

判定の限界: MDL = 平均 + 3 × 標準偏差  
発光量の下限值: MDL × 10

表14-2 試料皿を測定した場合(単位:nC)

	平均	標準偏差	MDL × 10
Glow1	-0.01	0.04	1.1
Glow2	0.46	0.21	10.9

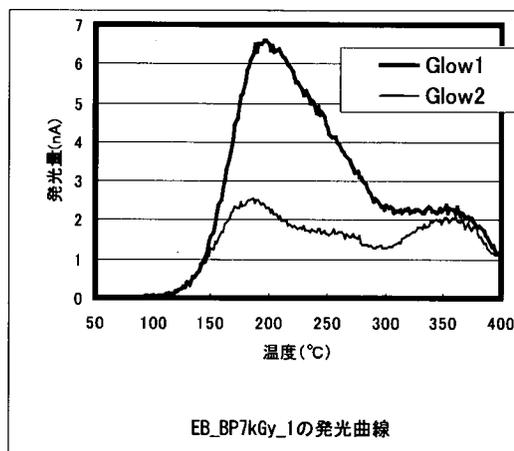
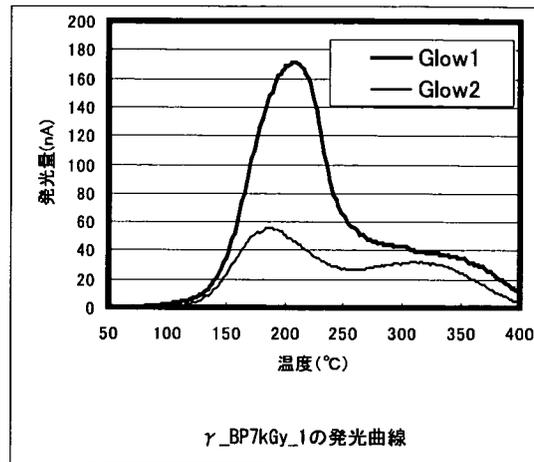


図15 黒コショウに $\gamma$ 線を照射した場合(上図)と電子線を照射した場合(下図)の発光曲線

### 2. 17年度、等々力による研究(研究結果)

#### (1) 2つの方法の操作性の比較と工程検討

##### (1)-1. 最初に用いる比重液

図1に、異なる鉱物分離法(a)および(b)において、試料Gの粉末コショウ試料をポリタングステン酸ナトリウム溶液(d=2.0)または飽和タングステン酸ナトリウム溶液(d=1.7)に懸濁した後