

直接 T L D 素子をヒータに載せて測定したときの温度と差は 10°C 以内であった。ステンレス製の 1.0mm のものでも温度差は 15°C 程度で使用できる範囲であった。アルミニウム製では、厚さが 1.0mm でもほとんど差はなかった。

試料皿の縁の高さについて検討したが、T L 発光比を比較する場合、T L D 100 はチップであり、鉱物を載せたときと差がある可能性があるので黄砂をモデルとして実験した。モデル鉱物として使用した黄砂はテング砂漠（中国寧夏回族自治区）の表層（0 ~ 6cm）から採取し、分級した粒径 $0.03 \pm 0.01\text{mm}$ の標準鉱物である。矢吹らの研究では鉱物の組成は粒子数で石英 32%、長石 20%、雲母粘土鉱物・練れん石類 3%、解石 11%、ドロマイト 4%、その他 3% と報告されている。標準試料の石英、長石は T L 発光量が非常に多く、0.5 ~ 2mg 程度の鉱物を分取して測定すると発光量が多くなる。この黄砂では、石英、長石が含まれていたが、発光量は香辛料などから分離される鉱物の発光量に近かったので、モデル鉱物として用いた。

5 kGy 照射した黄砂を用いて試料皿の縁の高さを比較すると、縁なしのものと 1 mm のものでは差なかったが、縁の高さが 1 mm のものと 2.6mm のものを比較すると有意差（危険率 5 %）があった。表 17- 2 に示すように、2.6mm ものもが 15% 高くなるが、照射の有無を判別するのには問題ないと思われる。

本研究で T L D 100 を測定した結果は表 6 から 7 に示したとおりであったが、同

一の装置でも測定条件（試料皿の形状）によって差が出た。装置による差も十分予想されるので、T L D 100 などの 200 ~ 300°C 付近のピーク温度が研究されている適当な標準物質で発光曲線の温度を確認する必要である。

測定温度の目安として、T L D 素子（T L D 100）のピーク（V、VI）温度を測定すること提案する。

(4) 照射試料の経時変化

照射試料の経時変化については多くの研究がなされている 13 – 17)。

今回は比較的低い線量での検討を行った。香辛料の放射線殺菌では高線量（5 ~ 30kGy）の照射が行われているが、1kGy 照射した試料でも照射されたことが判別できるか検討した。1kGy 照射し、数ヶ月保存した試料でも発光極大が 180°C 付近に認められ、T L 発光比も暗所保存ではおおよそ 1.0 であり、十分判別できた。

関口ら 12) の研究において、照射後 20 年を経た標準試料（NIES POND2：池底質）では 220°C 付近に発光極大が測定されている。（このときの T L D 100 のピーク温度を推定すると V : 230.6°C、VI : 296.2°C である。）

香辛料の研究で T L 法による判別は照射後、数年経過しても判別可能であると報告されている 20 – 23)。また、光によって、発光量（T L 発光比）が減少することも報告されている 18, 19, 20)。今回の研究によても、数ヶ月間蛍光灯の元に試料を放置しても、発光極

大 180°C付近に認められ、暗所保存に比べて低下するが TL 発光比は 0.8 ~ 0.9 で、判別可能であった。

Sanderson ら 19) が分離した鉱物を再照射後、暗所と明所に 24 時間保存した試料を比較している報告では、明所保存したもの TL 発光比はかなり低下している。このような報告があるので、本研究の実験では保存中の試料と分離した鉱物を極力、光には曝さないようにした。鉱物の分離操作中の光の影響は無視できるとして、分離操作は通常の室内光のもとで実施した。

鉱物を分離し Glow1 を測定した後、照射・Glow2 の測定を照射施設の問題、休日の関係などで最短期間で実施できないことが予想される。表 10 はこのような状況を想定して比較した。1 kGy 照射後、発光量は減少するが、1 週間程度では TL 発光比にほとんど影響はない。

Glow1 測定後、照射するまでの期間は発光シグナルが消えているので、この期間の長短は発光量に影響はないと思われる。ただし、Glow1 測定後、分離した鉱物をこぼしてしまうと、Glow2 が小さくなり、正しい値を得られない。途中で鉱物をこぼしたもののは測定無効とする。分離した鉱物は試料皿毎にふたつきの容器に遮光して保管し、速やかに測定を終了するのが望ましい。

(5) 混合実験

試料が均一になるように混合した上で分取したが、黒コショウ 100 g から分離できる鉱物の量に差（表 4）があった。

のことから推定すると、黒コショウの粒によっては鉱物が多く付着しているものがあると思われた。このため、5% 照射試料を混入した場合では一部のみ、照射に特有な発光極大を検出できた。混合した 5 試料すべてから照射に特有な発光極大を検出できたのは 20% 照射試料を混入した場合であった。黒コショウを均一になるよう混合し分取したが、表 4 のように分離できた鉱物量に大きな差があった。これは鉱物の付着量の多い粒があるとすると説明できる。黒コショウでは鉱物の付着量が不均一なため、表 11 のような結果になったと推定される。

同じ条件に混合した試料でも照射に特有な発光極大が認められたり、認められなかつたりした。このことから、試料の分取は数回行い、それぞれから鉱物を分離し、測定するのが望ましい。しかし、鉱物を分離する作業は手間がかかるので、1 回分取した試料から分離した鉱物を複数回測定しても、発光極大を検出できる場合がある。

鉱物の分布が均一と思われる粉末試料で検討すれば、照射した試料の混入率がこれより低くても照射に特有な発光極大を検出できると推定される。

(6) 高温加熱処理による TL 発光への影響

TL 発光において、高温部分のシグナルは熱に安定であることが研究 21) されている。そこで、照射した香辛料を加熱殺菌した場合、照射の有無を判別できるか確認するために、実験をおこなった。

実験室において、照射した香辛料を商業的な条件で加熱しすることが困難であったので、標準鉱物を用いてモデル実験をおこなった。

5 kGy 照射した黄砂を加熱していったとき、T L D 100 の主ピーク (V) : 233°C より低い発光極大になるのは、180°C で加熱した場合は 10 秒間 (発光極大: 224°C、T L 発光比: 0.99) であった。また、150°C で加熱した場合は 4 分間 (発光極大: 234°C、T L 発光比: 0.74) であった。実際の香辛料の加熱殺菌において、180°C くらいに加熱されることもあるようであるが、長時間高温で加熱すると香辛料の劣化が激しいと予想されるので、おおむね判別可能であろう。

(7) 再照射線量の影響

標準化するために分離した鉱物を照射するが、その線量によって T L 発光比がどの程度影響されるか検討するために、0.5 ~ 1.5 kGy で照射した。この結果を図 14、表 13 に示す。

このとき、T L 発光比は照射線量が低くなると大きくなるという反比例の関係を示し、照射線量の影響が現れた。Villavicencio ら²²⁾ は最照射線量を 1.0 kGy と 0.5 kGy としたときの T L 発光比を報告している。この報告では、積分範囲 70~500°C と 170~246°C (EN 規格の推奨範囲) とともに、0.5 kGy のほうが T L 発光比は大きくなっている。また、積分の温度範囲を 170~246°C としたほうが、T L 発光比は大きくなっている。そこで、積分の温度範囲を変えて算出した値

は表 13 のとおりであった。温度範囲が狭いほうが T L 発光比は大きくなかった。1.5 kGy 再照射した時の発光曲線は Glow1 と Glow2 でほぼ同じであったため、積分範囲を変えてもほぼ同じ T L 発光比になった。

発光量を積分する温度範囲を狭くした場合は、再照射線量の許容範囲も狭くする必要があると思われる。

(8) 照射線源の影響

電子線を照射した乾燥きのこなどの研究^{23~25)} があり、線源が電子線でも照射の有無を判別できることが報告されている。本研究で検討した黒コショウとターメリックに電子線または γ 線を照射した場合、T L 測定に差があるかどうか検討した。

T L 発光比は表 15 のとおりであったが、電子線でも γ 線でも、ほぼ同じ値になった。しかし、鉱物単位重量あたりの発光量は表 16 のように電子線と γ 線で大きな差が生じた。電子線を照射した黒コショウは、 γ 線に比べて非常に少ない値を示した。しかし、電子線を照射したターメリックでは、 γ 線を照射したもののが 2 倍ほどであった。

電子線を照射した黒コショウの発光曲線と γ 線を照射した発光曲線は、やや異なった (図 15)。どちらの鉱物も γ 線で再照射したが、Glow2 は元の発光曲線に近かった。

電子線を照射しても、 γ 線を照射しても、照射の有無を判別するには問題なかった。

(9) 発光量の下限値

照射の有無を判別する基準は「Glow1 の形」と「TL 発光比」であるので、これらを正しく判断できる限界を示す必要がある。

測定するシグナルがガスクロマトグラムのように鋭いピークを示すものでは、S/N 比 3 以上という考え方があるが、TL の発光曲線は幅広いシグナルであるので、S/N 比で判断するのは困難である。ヨーロッパ標準法 2) では Glow1 の限界について明確ではないが、Glow 2 の限界と同様に考え、検出限界の 10 倍以上の発光量を測定できた場合に発光曲線の形を判断し、TL 発光比を算出する。なお、検出限界は発光量の平均 + 標準偏差 × 3 である。

Glow 2 の限界はヨーロッパ標準法に準じ、検出限界の 10 倍以上の発光量を測定できた場合に TL 発光比を算出する。

Glow1 または Glow2 が下限値以下の場合は判定不能とする。

Glow1 のみ下限値以下の場合は、鉱物を分離できたため Glow2 が比較的高い値になり、分離した鉱物は照射されていないため Glow1 が低い発光量を示した可能性が高い。

(10) 判定基準

ヨーロッパ標準法では「通常、発光極大が 150 ~ 250°C の範囲にある。」と記されている。

ヨーロッパ標準法で推奨している温度範囲 X

- I S ~ X は当所の装置では 167 ~ 232°C で、150 ~ 250°C とはあまり差はなかった。しかし、国際的研究室間試験では大きな差があった 26) (表 13)。国内でも試験室間での差が予想されるので、温度標準を決め、それを基にする温度で考えるのが合理的である。

TLD100 は国際的研究室間試験など 27 ~ 30) で使用され、ヨーロッパ標準法にも取り上げられているので、このピーク (V) および (VI) を基準にするのも一つの方法として提案した。

本研究では発光量の積分範囲は 70 ~ 400°C でおこなった。積分範囲をいくつかに変えて比較した国際的研究室間試験などの結論として、TLD 100 を基にした推奨範囲のほうが、全温度域を積分するより判別精度が高いと報告されている。熱による擬似発光の影響を除くために、Glow1 の発光量を出すために 2 回測定をしたが、300°C 以下の温度範囲で積分すれば、熱による擬似発光はなく 1 回測定で問題はない。簡単に精度良く判別するために、積算温度範囲は再考の余地がある。

判定基準

0.5Gy 照射した TLD100 を 10 回測定し、一番強いピークの温度の平均 (X°C) を出す。

① Glow 1' の発光曲線において、X°C より低温側に発光極大がある。

② TL 発光比が 0.1 以上である。

上記の①と②が測定される場合は「照射された」と判定する。ただし、検体の一

部が照射された場合または非照射検体に照射検体が混入した場合は①のみの可能性がある。

複数回測定した場合、「照射された」と判断される例では、概ね複数回すべて同じ結果になる。しかし、①のみの場合は、照射・非照射試料の混合実験の結果から複数回測定してもすべて同じ結果を得られないであろう。①のみに1回でも該当すれば、「検体の一部が照射された場合または非照射検体に照射検体が混入した」と判定する。

2. 17年度、等々力による研究（考察）

(1) 比重液の選択

粉末試料の場合、水洗による高比重物質の濃縮を実施することは不可能であるので、採取試料を、直接、高比重の溶液に懸濁させる必要がある。そこで、一般的な粉末試料では、最初から比重2.0のポリタンクスチレン酸溶液を用いた精製を行っている。ところが、粉末白コショウの場合、他の粉末香辛料の試料量と同じ5gからでは鉱物が充分とれない場合が予想された。実際、本研究で用いたコショウ試料では、20gの粉末コショウからでも、分離出来た試料の量は1mgに満たない場合も多かった。従って、粉末白コショウについては、採取試料量を増やして鉱物分離量を多くする必要があり、最初に用いる比重液の量も増加する必要があると考えられた。ただし、多量の粉末試料を扱うために、多量のポリタンクスチレン酸ナトリウム溶液を用いることは、

この試薬が高価であることを考慮すると現実的でない。また、粉末コショウの場合、試料によっては、図2に示すようにデンプンが中間層に分散してしまい、沈殿部分に鉱物が充分に落ちてこない場合があった。そこで、比重が2.0よりもやや小さく、価格も経済的な溶液を最初の段階で使うことが効果的であると考えられた。

後藤らは、ポリタンクスチレン酸ナトリウム溶液の代替として、ヨウ化カリウム、炭酸カリウム、タンクスチレン酸ナトリウムの飽和溶液が利用出来ると報告している³¹⁾。しかし、デンプンを多量に含む粉末コショウの場合、ヨウ化カリウム溶液では、デンプンとヨウ素の反応が起こり溶液の粘性が増す。また、炭酸カリウム溶液では、炭酸塩の除去を充分に行う必要がある。飽和タンクスチレン酸ナトリウム溶液は、いくぶん高価格であるが、本研究で数種の粉末コショウを試した結果、初期段階で鉱物を含む高比重成分を沈降させる際の分離操作が容易と判断された。

(2) 酵素反応条件

図3に示す様に、鉱物と共に沈降してくるデンプンをアミラーゼにより消化、除去することが出来た。この際、作業手順を簡略にすることを考え、反応に緩衝液等を使うことはしなかった。また、試薬の取り扱いや、不純物の混入の確認がしやすいということを考え、液体状の耐熱性酵素を用いた。実際の操作に用いた α アミラーゼの特性は、製造元のデー

タシートによると、至適温度 90°C、安定温度 90°C以下、至適 pH = 6.0 ~ 7.0、安定 pH = 6.0 ~ 10.0 であった。

酵素反応の効率を最適にするための詳細な条件検討は、本研究の中で行っていない。ただし、酵素反応の条件設定には、前処理過程が 1 日の作業で終了し、鉱物の TL シグナルも極端な減衰が無いようにと考えた。そこで、予備検討で、試料 20 g から飽和タンゲステン酸ナトリウムに沈降してくるデンプン量を約 200mg と予測し、これが、酵素添加量 500 μl、70°C、30 分間の反応で消化できることを確認した上で、コショウ試料からのデンプン消化に用いた。ここで用いた反応温度、時間で TL シグナルが減衰することは予想できるが、本研究では、1 k Gy 試料のすべてについて明確な発光ピークが観測され、照射と判定できた。

Carmichaelらは、貝類からの TL 測定鉱物試料の分離に 110°C 2h の塩酸、加熱分解処理を行い、0.5kGy 照射試料の TL 発光ピークの観測と照射の判定に成功している。また、石英閃緑岩や中国黄土の TL シグナルについて照射後の加熱温度と時間の影響を検討した関口らの研究では、70°C 1 時間加熱での発光ピークの高さが、照射直後の 70 ~ 50% に減少したと報告されている³²⁾。酵素反応の温度条件と使用する酵素量については、以下にのべるように採取試料量のことも含めてさらに検討する必要がある。

(3) 判別精度

表 2 および図 6 に示される様に、酵素

による試料調製法では、従来法に比較すると Glow 2 の発光量が大きく、下限値を下回ることもなかった。従って、測定に必要な鉱物試料を従来法に比べ容易に分離できるようになった。表 2 の従来法との比較においては、照射試料についての単位試料重量あたりの発光量が増加し、非照射試料の TL 比が低下していることより、酵素を用いてデンプン除去することで高純度の鉱物が分離できたといえる。本研究において、1 k Gy 照射試料は、酵素を用いた鉱物分離法によりすべて、照射と判別できた。一方、非照射の試料では、発光極大ピークは観測されないものの 1 種類の試料については、TL 比がわずかに 0.1 をこえるものがあった。判別精度(特に非照射試料について)を向上させるためには、より確実に十分な量の鉱物が分離できるよう、採取試料の量を最低 40g 程度までに増やすことも検討すべきかもしれない。今回の実験では、市販コショウの包装単位や、初期の懸濁液の容量などの操作性を考え、まずは 20g での実験を行った。また、20g の試料から分離できた鉱物を用いても、積分温度範囲を変えて TL 比を求めることで、判別率が改善する可能性も考えられるので今後検討したい。

3. 18 年度、棚瀬らによる研究(考察)

(1) 標準線量の照射精度と再現性

TL 法により食品の放射線照射を検知するためにはいくつかの重要な技術が必要であるが、その中でも Glow2 を求めるための標準線量を照射する(再照射)技

術は照射・非照射を判断するための物差しといえる基本技術と位置づけられる。本研究で用いたコバルト 60 ガンマ線照射施設は国内において線量の標準供給を行うことも視野にいれて整備が続けられている施設であり、本研究を行うための照射施設として最適な施設といえる。さらに、施設のみならず、線量を求めるための線量計に関する研究も活発に進められており、信頼できる照射が行える条件を備えているといえる。今回の研究における実験で標準線量照射のための精度、再現性を調べたところ、満足する結果が得られた。今後も照射施設として優れた性能を維持していくためには的確な施設維持管理が要求されるとともに、照射及び線量測定を行う技術の維持向上に努める必要がある。

(2) 鉱物の結晶化度と TL 量

TL 測定の対象となる鉱物の結晶化度の違いによって発光量に大きな差が生じる事がわかった。検知を行う食品の産地や土壌の種類により回収できる鉱物は異なるため、それぞれに対応できるように検討を行う必要があるが、鉱物の TL 発生に関する基礎知識として重要である。

(3) 鉱物の粒度と TL 量

鉱物の粒度が小さければ比表面積が大きくなり試料としての発光量は大きくなると思われるが、試料皿での重なりによる光の吸収が起こり装置で観測できる量が減少することは考えられる。今回の実験では、粒度が大きい ($250 \mu m$) 方が

小さいもの ($125 \mu m$) に比べ、観測できた発光量が多かった。しかし、試料皿の大きさや試料の置き方等が関わることは明らかであり、経験を積み重ねることにより工夫、改善していく必要がある。

(4) 照射後の経時変化と TL 量

試料の保管期間が長期間にわたっても検知ができたという報告はあるが、今回は特に短期間の内での TL の経時変化について着目して検討した。しかし、調べた範囲では急激な減衰等特異的な現象は見あたらなかった。

(5) アニール温度と TL 量

アニールによる発光量の減衰は、今回の実験の範囲内では発光量が多い鉱物でも少ない鉱物でも割合としてはほぼ一定の値であった。アニールすることにより測定される発光量が少なくなるのは検知という観点からはマイナスであるが、データのばらつきが小さくなるという点は検知の信頼性という面からは大きなメリットである。鉱物中にトラップされた電子は温度上昇とともに放出される結果、発光量が減少するものとは思われるが、アニールにより不安定な成分が取り除かれ、安定な測定結果が得られるようになるといえる。TL 法におけるアニールは極めて照射の検知という信頼性を確保するために有用な手法といえる。

(6) 検出下限線量（鉱物試料について）

TL 法により放射線照射が検知できる最小の線量について、いくつかの鉱物試料

について調べたが、当然鉱物の種類によって異なる。低線量照射の場合ではS/Nが下がり、検出はできたとしても信頼性には欠ける。食品の照射検知という観点からは信頼性、客観性のあるデータが求められるということは当然である。グローカーブの形において相対的にノイズの少ない安定な状態が得られるような状態になって客観性、信頼性のあるデータと成りうると考えられる。この状態を呈するだけ照射された時の線量が検出下限線量というべきであろう。今回の研究では結論を出すまでには至っていないと考えられる。

(7) 標準線量の最適化 (TL比への影響)
標準線量の照射は検知の物差しの役割りを果たす重要な過程であり、この場合Glow2がS/Nの大きい値となる必要があり、これは当然鉱物の種類に依存する。これも経験を積み重ねることにより、対象に適した最適な線量が容易に決められるようになると考えられる。

(8) 添加回収

添加回収実験を繰り返し試みたことにより、食品試料から測定に必要な鉱物を回収する技術の向上を図ることができた。しかし、抽出回収した鉱物試料にはまだ有機物が分離しきれずに残ってしまう場合も生じる。このような試料では測定に支障を来すことになるので、方法の改善により有機物の入り込まない抽出法の開発が必要となる。さらに検討の必要がある課題である。

(9) 食品の照射検知における線量下限

今回の検討では線量下限を求めるためのデータ数が十分とはいはず、さらに多くのデータの積み重ねが必要である。今後は香辛料の種類を特定するなどじっくりと取り組み、線量下限のデータ取得などをを行いたい。

4. 19年度、棚瀬らによる研究(考察)

(1) 鉱物の回収率を高める為の検討

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。

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、カエンペッパーや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 ~ 20 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。

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つた。

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のではなく台の上に置くことにより作業効率も良くなつた。

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つた。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、SiO₂ の量が多い程、発光量が大

きくなるという推定の下に含有成分（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、SiO₂の多いJG-1よりもSiO₂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SiO₂（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、SiO₂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Al₂O₃の含有量が高く、今後、Al₂O₃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、スターアニス、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。これらの栽培には、マジョラム、ミントは、ほぼ中性の土壤を、タイムは、弱アルカリの土壤を好むとされる。その為、栽培する土壤が酸性土壤の場合は、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に思われる。

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。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つた第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。

7. ESR 法の検討

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に、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リ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、スピリ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が考えられる。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³³⁾、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³⁴⁾。以上のことことが要因となり、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 μm 目開き、フルクトースは250と500 μm 目開きであるのに対し、スクロースについては63～500 μm 目開きの広範囲で試験を実施した。

E. 結論

1. 17年度、後藤らによる研究（結論）

以下の検討した結果をTL測定手順に反映した。

検体の採取量は粒状試料では100gとし、粉末試料は5gとする。鉱物を多く分離できることが分かっているものは、少なくできる。たとえば、セロリシードでは10g採取すればよい。照射試料から分離できる鉱物の発光曲線は一山の単純な形を示すことが一般的であるが、特徴的な曲線もあった。

非照射鉱物を照射した黒コショウに添加すると、51～138%回収されたが、発光極大が190°C付近に認められ、照射黒コショウ由来の鉱物も分離された。

測定に用いる試料皿の形状を照射したTLD素子を用いて検討したが、素材の板厚が厚くなると発光極大がやや高くなり、縁の高さが高くなるとTL発光比に

やや差が生じた。素材はステンレスまたはアルミニウムとし、板厚は0.2mm以下、TL装置のヒータに密着する大きさが適切である。また、温度の校正に照射したTLD素子(TLD100)を用いて、ピーク(V)の発光極大温度確認をして使用することを提案する。

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

照射、非照射の黒コショウを混合して、鉱物を分離したところ、照射試料を20%混合した場合は5検体測定したところ、すべてに発光極大が認められた。

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

発光量の規格化のために1kGyの照射をおこなうが、この照射線量とTL発光比はおむね反比例する。照射線量が1kGyより低い場合はTL発光比への影響が大きいので、線量の管理が必要である。黒コショウとターメリックそれぞれにγ線または電子線を照射した場合、線源にかかわらず、発光極大とTL発光比から、照射されたと判別できた。

判別のための発光量の下限値を提案した。

2. 17年度、等々力による研究(結論)

粉末白コショウを飽和タンゲステン酸ナトリウム溶液に懸濁し、沈降する高比重画分中のデンプンをアミラーゼ消化する方法により、従来法より容易にTL測定試料中の混入デンプンの除去ができることが確認された。この試料調製の考え方で、さらに試料量や酵素反応条件を最適化することで、粉末白コショウからのTL測定に適した、鉱物試料お調製法の確立が期待できる。

3. 18年度、棚瀬らによる研究(結論)

食品の放射線照射をTL発生に基づき検知するための種々の因子について検討を行った。その結果、以下のようないくつかの結論を得た。1) 標準線量照射に用いた原子力機構高崎研究所のコバルト60照射施設は国内の線量標準供給施設となることを視野に入れた施設であり、本実験には最適であった。2) 食品に付着している鉱物にはTLが多いもの、少ないもの、また鉱物を抽出しやすいもの、しにくいものがあり、それぞれに対し適切な対応が必要である。3) この検知手法において決定的な方法ではなく、経験を積むことにより得られるノウハウを蓄積することにより多くの場面に適応できると考えられる。

4. 19年度、棚瀬らによる研究(結論)

鉱物の回収率を高めるための検討では、作業の最初に行う香辛料の入っていた袋の洗い出しが、極めて重要である。また、オレガノなどについては、塩酸を入れた際の発泡が著しく、これは、炭酸塩

の量が多かったものと推定された。

TL 測定器の性能確認及び校正用標準試料の探索では、TLD 素子に代わる試料として、今回実験を行った試料の中では、標準岩石試料である JF-1 や JG-1 は、照射などの前処理なく十分な発光が得られることから、モニターとして利用することが期待できる。新規香辛料の添加回収実験では、炭酸塩の除去等、考慮・検討を要することもあるが、今回実施した香辛料のほぼ全てにおいて TL 法の適用が可能であると考えられる。鉱物分離用比重液の検討では、ポリタンクステン酸ナトリウム溶液に代わり、安価な飽和タンクステン酸ナトリウム溶液の利用も十分可能と言える。標準線量照射の精度と再現性向上については、照射方法の改善を今年度に実施した結果、標準線量照射の目標とする照射線量 1kGy に対して、すべて定められた $1\text{kGy} \pm 5\%$ の値になる結果が得られた。今後もこの精度を持続し、 $1\text{kGy} \pm 5\%$ の範囲の標準線量照射を行う必要がある。ESR 法による検知技術の検討では、照射した乾燥果実、健康食品、糖類の試料について ESR 信号の線量との相関、照射後の時間経過による ESR 信号の減衰について検討を行った結果、検知法として適用できる見通しが得られた。

H. 知的財産権の出願・登録状況

杉恵理子、木村崇弘、清水隆志、須永博美、棚瀬正和、宮原誠；照射食品検知用熱発光試料の輸送及び照射用容器（特許出願中）

G. 研究発表

- 1) 後藤典子他；第 43 回アイソトープ・放射線研究発表会、照射・非照射混合香辛料の TL 法による検知、2006. 7
- 2) 等々力節子；第 43 回アイソトープ・放射線研究発表会、酵素分解法による粉末コショウからの TL 測定試料の精製と照射検知への応用、2006. 7
- 3) 杉恵理子、清水隆志、須永博美、棚瀬正和、宮原誠、米谷民雄；照射食品の TL 法による検知の為の基礎的検討その 4 発光量に及ぼす種々の要素と条件、第 83 回 日本食品衛生学会（2007）
- 4) 杉恵理子、川島郁男、須永博美、棚瀬正和、宮原誠；第 12 回放射線プロセスシンポジウム、（ポスター発表）照射食品の TL 法による検知技術の検討、2007, 11
- 5) 川島郁男、杉恵理子、須永博美、棚瀬正和、宮原誠；第 12 回放射線プロセスシンポジウム、（ポスター発表）放振協における照射食品の TL 法による検知サービスへの取り組み、2007, 11
- 6) 宮原誠、杉恵理子、川島郁男、須永博美、棚瀬正和；第 12 回放射線プロセスシンポジウム、（ポスター発表）TL 法における再現性について、2007, 11
- 7) 杉恵理子、川島郁男、須永博美、棚瀬正和、宮原誠；第 45 回アイソトープ・

- 放射線研究発表会、酵素分解法による粉末コショウからのTL測定試料の精製と照射検知への応用、2008.7（予定）
- 助金 食品の安心・安全確保推進事業、放射線照射食品の検知技術に関する研究、平成17年度 総括研究年度終了報告書、主任研究者 宮原誠、90-104、平成18年（2006）4月
- 8) 川島郁男、杉恵理子、須永博美、棚瀬正和、宮原誠；第45回アイソトープ・放射線研究発表会、2008.7（予定）
- 5) 棚瀬正和、須永博美、杉恵理子、清水隆志、厚生労働科学研究費補助金 食品の安心・安全確保推進事業、放射線照射食品の検知技術に関する研究、平成18年度 総括研究年度終了報告書、主任研究者 宮原誠、45-69、平成19年（2007）4月
- 9) 杉恵理子、川島郁男、須永博美、棚瀬正和、宮原誠；照射食品のTL法における検知対象試料の拡大と検知法普及に関する種々の検討、Radioisotopes 準備中
- 6) 棚瀬正和、杉恵理子、川島郁夫、須永博美、厚生労働科学研究費補助金 食品の安心・安全確保推進事業、放射線照射食品の検知技術に関する研究、平成19年度 総括研究年度終了報告書、主任研究者 宮原誠、平成20年（2008）4月（予定）
- 10) 川島郁男、杉恵理子、須永博美、棚瀬正和、宮原誠；ESR法による糖類を含む照射食品等の測定、Radioisotopes 準備中
- 7) 小嶋拓治、田中隆一：Radioisotopes, Vol. 41, 320-330. 電子スピニ共鳴(ESR)法を用いた大線量測定（1992）
- 参考文献
- 1) 等々力節子；食品照射の海外の動向、食品照射、40, 49-58, (2005)
- 2) EN 1788, Foodstuffs – Thermoluminescence detection of irradiated food from which silicate minerals can be isolated (2001)
- 3) 後藤典子、玉城恵、村瀬亞紀子、深井由美子、江口美佐子、厚生労働科学研究費補助金 食品の安心・安全確保推進事業、放射線照射食品の検知技術に関する研究、平成17年度 総括研究年度終了報告書、主任研究者 宮原誠、51-89、平成18年（2006）4月
- 4) 等々力節子、厚生労働科学研究費補助金 食品の安心・安全確保推進事業、放射線照射食品の検知技術に関する研究、平成17年度 総括研究年度終了報告書、主任研究者 宮原誠、90-104、平成18年（2006）4月
- 8) 後藤典子、山崎正夫；照射粉末食品のTL測定における試料調製、食品照射、40 15-18 (2005)
- 9) 田邊寛子；市販香辛料の熱ルミネンス特性、東京都立産業技術研究所研究報告、4, 149-150 (2001)
- 10) J. H. Kwon, H. W. Chung, M. W. Byun, I. J. Kang: Thermoluminescence detection of Korean traditional foods exposed to gamma and electron-beam irradiation. Radiat. Phys. Chem. 52 151-156 (1998)
- 11) C. Soika and H. Delincee ;

- Thermoluminescence analysis for detection of irradiated food-Effects of dose rate on glow curves of quartz, *Lebensm.-Wiss. U.-Technol.*, 33, 440-443 (2002)
- 12) 関口正之、水野弘明；地球科学的標準岩石のTL発光特性と食品照射検地への利用の可能性、第41回日本食品照射研究協議会 年次大会 講演要旨、p 17 (2005)
- 13) D. C. W. Sanderson, C. Slater and K. J. Cairns,: Detection of irradiated food. *Nature* 340, 23-24 (1989)
- 14) D. C. W. Sanderson, C. Slater and K. J. Cairns,: Thermoluminescence of food: origins and implications for detecting irradiation. *Radiat. Phys. Chem.* 34, 915-924 (1989)
- 15) S. Pinnioja: Suitability of the thermoluminescence method for detection of irradiated foods. *Radiat. Phys. Chem.* 42, 397-400 (1993)
- 16) G. Lesgards, A. Fakirian and J. Raffi: Thermoluminescence identification of irradiated foodstuffs: LARQUA research. Detection methods for irradiated foods -current status. Edited by C.H. McMurray, E.M Stewart, R. Gray and J. Pearce, Royal Society of Chemistry, Cambridge, UK, 1996 158-167
- 17) I. Rosenthal: Analytical methods for post-irradiation dosimetry of foods. *Pure & Appl. Chem.*, 65, 165-172 (1993)
- 18) D. C. W. Sanderson, L. A. Carmichael and S. Fisk; Thermoluminescence detection of irradiated Fruits and vegetables: international interlaboratory trial. *J. AOAC Int.*, 86, 971-975 (2003)
- 19) D. C. W. Sanderson, L. A. Carmicheal and J. D. Naylor: Recent advances in thermoluminescence and photostimulated luminescence detection methods for irradiated foods. *Detection Methods for Irradiated Foods-Current Sta.* Edited by C. H. McMurray, E. M. Stewart, R. Gray and J. Pearce, Royal Society of Chemistry, Cambridge, UK, 124-138 (1996)
- 20) D. C. W. Sanderson, Carmicheal and J. D. Naylor: Photostimulated luminescence and thermoluminescence techniques for the detection of irradiated food. *Food Sci. Technol. Today*, 9, 150-154 (1995)
- 21) 田辺寛子：照射食品の検知のための熱ルミネッセンス法におけるTLピークの分離 東京都立産業技術研究所研究報告、1、56-59 (1998)
- 22) A. L. C. H. Villavicencio, J. Mancini-Fiho and H. Delincee: Application of different techniques to identify the effects of irradiation on Brazilian beans after

- six months storage. Radiat. Phys. Chem. 52, 161-166 (1998)
- 23) H. M. Khan, H. Delincee: Detection of irradiated treatment of dates using thermoluminescence of mineral contaminants. Radiat. Phys. Chem. 46 717-720 (1995)
- 24) H. M. Khan, I. A. Bhatti, H. Delincee: Identification of irradiated pluses by thermoluminescence of contaminating minerals. Radiat. Phys. Chem. 52 145-149 (1998)
- 25) K. Malec-Czechowska, G. Strzelczak, A. M. Dancewicz, W. Stachowicz, H. Delincee: Detection of irradiated treatment in dried mushrooms by photostimulated luminescence, EPR spectroscopy and thermoluminescence measurements., Eur. Food Res. Technol, 216 157-165 (2003)
- 26) 矢吹貞代、金山普司、本多将俊；黄土標準 (CJ1) 及び黄砂アエロゾル標準物質 (CJ 2) の鉱物組成、地球環境、7, 171-179 (2002)
- 27) A. L. C. H. Villavicencio, J. Mancini-Fiho and H. Delincee: Application of different techniques to identify the effects of irradiation on Brazilian beans after six months storage. Radiat. Phys. Chem. 52, 161-166 (1998)
- 28) G. A. Schreiber, U. Wagner, A. Leffke, N. Helle, J. Ammon, H.-V. Buchholtz, H. Delincee, S. Estendorfer, K. Fuchs, H.-V. von Grabowski, W. Kruspe, K. Mainczyk, H. Munz, H. Nootenboom, C. Schleich, N. Vreden, C. Wiezorek and K. W. Bogl: Thermoluminescence analysis to detect irradiated spices, herb and spice-and-herb mixtures – an intercomparison study. Bericht des Instituts fur Sozialmedizin und Epidemiologie des Bundesgesundheitsamtes, 1993, SozEp-Heft 2/1993, German Federal Health Office (Bundesgesundheitsamtes, Berlin).
- 29) G. A. Schreiber, U. Wagner, N. Helle, J. Ammon, H.-V. Buchholtz, H. Delincee, S. Estendorfer, H.-V. von Grabowski, W. Kruspe, K. Mainczyk, H. Munz, C. Schleich, C. Wiezorek N. Vreden, C. Wiezorek and K. W. Bogl: Thermoluminescence analysis to detect irradiated fruits and Vegetables – an intercomparison study. Bericht des Instituts fur Sozialmedizin und Epidemiologie des Bundesgesundheitsamtes, 1993, SozEp-Heft 3/1993, German Federal Health Office (Bundesgesundheitsamtes, Berlin).
- 30) G. A. Schreiber, J. Ammon, J. Brunner, B. Betz, L. A. Carmicheal, H. Delincee, S. Eisen, B. Fienitz, K. Hammerton, N. Helle, D. Jahr, H. Klein, W. Kruspe, T. Kuhn, K. Mainczyk, H. Meyer, H. Munz, H.

Nootenboom,

J. Pfordt, D. C. W. Sanderson,
C. Schleich, N. Vreden,
U. Zachaus, C. Zoost, and K.
W. Bogl: Interlaboratory Study
on Identification of Irradiated
Potatoes and on the Estimation of
Applied Doses by Thermoluminescence
Analysis. Report of the Federal
Institute for health Protection of
Consumers and Veterinary Medicine,
1997 BgVV-Hefte 13/1997 (

B u n d e s i n s t i t u t f ü r
gesundheitlichen Verbraucherschutz
und Veterinärmedizin, Berlin).

31) 後藤典子、山崎正夫；照射粉末食品
の TL 測定における試料調製、食品照射、

40 15-18 (2005)

32) 関口正之、水野弘明；地球科学的標
準岩石の TL 発光特性と食品照射検地へ
の利用の可能性、第 41 回日本食品照射
研究協議会 年次大会 講演要旨、p
17 (2005)

33) 田邊寛子；ESR 法による照射骨付き
鶏肉の線量推定、食品照射、32, 2 (1997)

34) 池谷元伺; ESR (電子スピニン共鳴吸収)
年代測定、(アイオニクス叢書)、アイオ
ニクス株式会社、(1987)

厚生労働科学研究費補助金（食品の安心・安全確保推進研究事業）
分担総合研究報告書（2005年度～2007年）

放射線照射香辛料の微生物学的検知法に関する研究

分担研究者 宮原 誠 国立医薬品食品衛生研究所
協力研究者 神保勝彦 町田予防衛生研究所
協力研究者 武川哲也 原子燃料工業株式会社
協力研究者 越川富比古 日本アイソトープ協会

研究要旨 平成17年度は香辛料に付着する一般生菌を対象とし、放射線照射の有無による一般生菌数の違いと、培地の食塩濃度による生育の違いについての調査を実施した。この結果、標準寒天培地で計測した香辛料39検体の一般生菌数は 10^3 ～ 10^7 cfu/gであった。これに対して、放射線を3kGy照射した香辛料の一般生菌数は照射しないものより1～2桁低く、7kGy照射した香辛料の一般生菌数は2～3桁低くなり、いずれも 10^3 cfu/g以下であった。10kGy照射した香辛料の一般生菌数は 10^2 cfu/g以下であった。芽胞数も同様の傾向が見られ、7kGy照射香辛料の芽胞数は 10^2 cfu/gレベルであった。3%および5%食塩加標準寒天培地で計測した場合も、標準寒天培地と同様の値が得られた。大腸菌群は10検体から検出され、菌数は 10 ～ 10^3 cfu/gであったが、7kGy以上照射した香辛料からは大腸菌群は検出されなかった。これらの結果から、香辛料の一般生菌数が標準寒天培地で 10^3 cfu/g以下であり、5%食塩加標準寒天培地で標準寒天培地の細菌数と同等またはそれ以下、芽胞数が 10^2 cfu/g以下および大腸菌群が検出されない場合は、その香辛料は7kGy以上で照射された可能性が高いことが判明した。

平成18年度は香辛料に付着する一般生菌と真菌を対象とし、放射線照射の有無による一般生菌数または真菌数の違いと、それぞれの場合について熱処理の有無による放射線損傷菌と健常菌との生育の違いについて調査を実施した。一般生菌を対象にした研究では、12種類の香辛料を用い、まず、3, 7, 10kGyの電子線を照射した香辛料の一般生菌数および生残曲線を求めた。次に、この中から生残菌数、照射線量に基づいて5種類の香辛料を選び、各種類2検体の非照射試料と3kGy, 7kGy照射試料について、70°C, 10分間の熱処理を行ったものと、非処理のものの菌数を測定した。この結果、非処理の菌数をA、熱処理済みの菌数をBとしたとき、 $\log A - \log B$ の値（菌数差を対数表示した値）は、非照射試料で-0.08から0.42、7kGy照射試料で0.32から0.98であった。また、平均値はそれぞれ、0.11と0.68であり、

明らかに 7kGy 照射試料の方が非照射試料に比べて減少率が高かった。このため、5種類の香辛料の、非照射試料と 7kGy 照射試料の照射の有無は、この菌数差の数値により大部分判定可能であると考えられた。実際に、菌数差で 0.30 を基準として、この数値未満が非照射試料、この数値以上が 7kGy 照射された試料とすると、非照射試料 10 検体の内、9 検体は非照射試料として判定可能であった。また、7kGy 照射試料については、菌を確認することができた 8 検体の内、全て照射試料として判定可能であった。一方、10 kGy 照射試料についてはほとんどの香辛料で菌が検出できず、検出できた試料についても 10^3 cfu/g 以下であった。これらの結果から、菌数差の判定基準と一般生菌数の測定値による判定基準を併用することにより、放射線照射の有無の判定は可能であると考えられた。

真菌を対象にした研究では、同じく 12 種類の香辛料を用い、1, 3, 5, 7kGy の電子線を照射し、その総真菌数および生残曲線を求めた。次に、この中から生残菌数、照射線量に基づいて 3 種類の香辛料を選び、非照射試料と 3kGy, 1kGy 照射試料について 25°C と 30°C の培養温度による菌数を測定した。しかしながら、培養温度の違いでは、照射の有無による顕著な違いは認められなかった。さらに、同様にして 3 種類の香辛料を選び非照射試料と 1kGy 照射試料について、60°C の熱処理を行ったものと、非処理のものの菌数を測定した。この結果、 $\log A - \log B$ の値（菌数差を対数表示した値）は、非照射試料で -0.29 から 2.26, 1kGy 照射試料で 0.60 から 2.05 であった。また、平均値はそれぞれ、0.82 と 1.24 となり、1kGy 照射試料の方がやや減少率が高い傾向にあったが、3 種類の香辛料全体では、非照射試料と 1kGy 照射試料を明確に判定できる基準は得られなかった。しかしながら、3 種類の香辛料のうち、白胡椒は照射の有無による熱処理後の菌数は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。このことから、本実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、熱処理法について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ができた。

平成 19 年度は今まで調査検討した微生物学的検知方法の中から、香辛料に付着する一般生菌を対象とし、一般生菌数と熱処理の有無による検知法（以後「熱処理法」という）について研究室間共同研究を実施し、本方法の実証と確立を図った。本方法は一般生菌数を基準とする一次判定と熱処理前後の菌数差に基づく二次判定に別れており、一次判定条件は一般生菌数が 10^3 cfu/g 以下、二次判定条件は $\log A - \log B$ が 0.3 以上である。これらの結果、香辛料の種類によって、一次判定と二次判定を行う必要があるものと、一次判定のみで判定が可能であるが二次判定では判定できないものに分けられることが分かった。以上より、本方法は検知対象香辛料を、一次判定のみを行うものと、二次判定まで行うものとに分類して実施する必要があ

り、そうした場合には高い正答率が得られることが分かった。また、分類においては、各香辛料に付着する菌の簡易的な菌の同定を行い、グラム陰性菌が多いものは前者、芽胞菌が優勢なものは後者となることが分かった。

A 研究目的

我が国では、食品への放射線照射はジャガイモの発芽防止以外は原則として認められていない¹⁾。一方、EU諸国やアジア諸国では、照射食品の許可範囲が緩和され、従来の香辛料の他に、ハーブ類を中心としたいわゆる健康食品に殺菌等の目的で照射が行われるようになっている²⁾。このような状況の中で、我が国でも原産地が外国の原料で明らかに照射されたと考えられる食品が流通していることが報告されている。そのため、照射食品の検出技術を早急に実用化し、違法な照射食品の輸入を監視して、食品の安全性を確保する必要がある。しかし、これを検出するための基礎的技術の研究開発は行われているが、食品に実用できる検知法についての研究は十分とはいえない³⁻⁵⁾。そこで、再現性が高く、特殊な技術、設備等を必要としない簡易迅速なスクリーニング法を開発する目的で、実用性の高い微生物学的検知法について検討した。

平成17年度は、39個の検体について、細菌数、芽胞菌数、大腸菌群数といった香辛料に付着する微生物の基礎的データを採取することと、それらの放射線耐性および培地に加えられた食塩濃度による放射線照射の有無による生育の違いを調査することを目的とした。

平成18年度は、さらに真菌による検知法についても新たに検討を加えると共に、一般生菌数について、細菌が放射線により損傷を受けた場合には、熱処理についても感度が高くなるとの知見に基づき^{6) - 8)}、香辛料に付着する一般生菌群に放射線照射が行われた場合の、熱処理の有無による健常菌と放射線損傷菌との生育の違いについての調査を行った。

平成19年度は、平成18年度の研究成果に基づき、許せる範囲で多くの分析機関に対し、同一の試料を用いて本方法の有効性についての検証を行うこととした。このため、ここでは香辛料5種類に2水準の線量(5kGy, 7kGy)の電子線を照射し、非照射試料と併せて3水準各45検体の試料を9試験研究機関で判定し、再現性よく判定できるかどうか調べた。

B 研究方法

[平成17年度]

1. 供試材料

1) 香辛料

実験に供試したスパイスは、全日本スパイス協会から提供された輸入の黒胡椒6検体、オールスパイス3検体、唐辛子3検体、タマネギ3検体、パプリカ2検体、ターメリック2検体、オレガノ2検体、ガーリック2検体、カシア2検体、マス