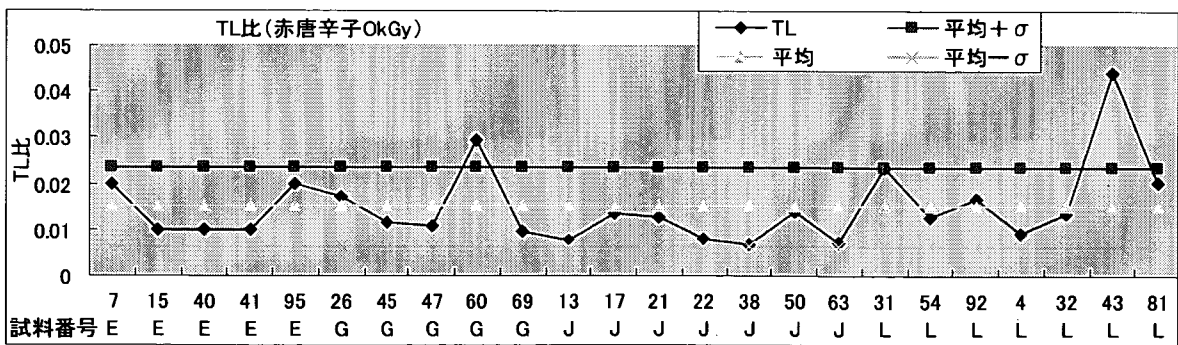
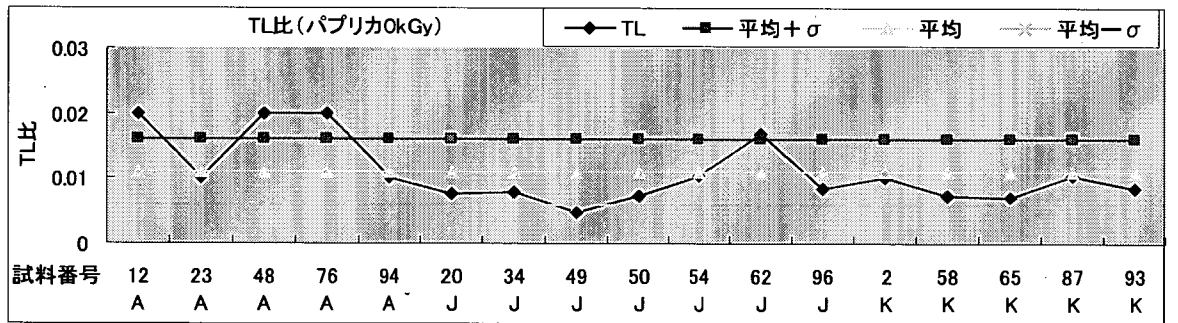
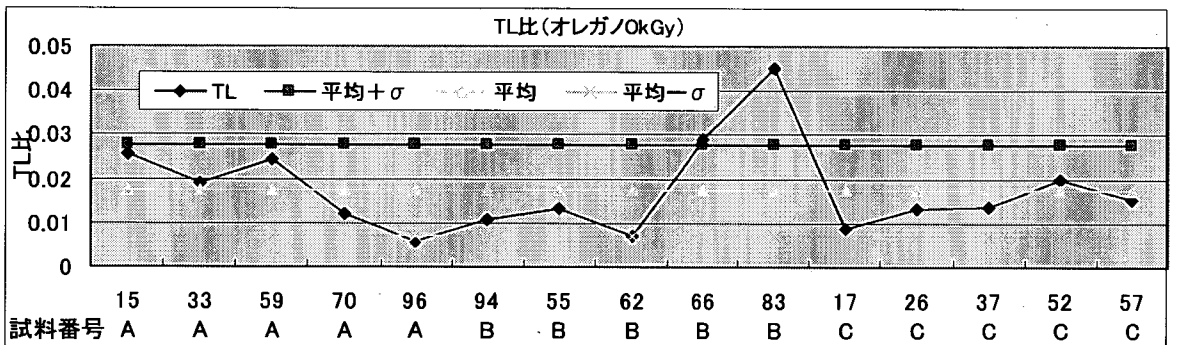
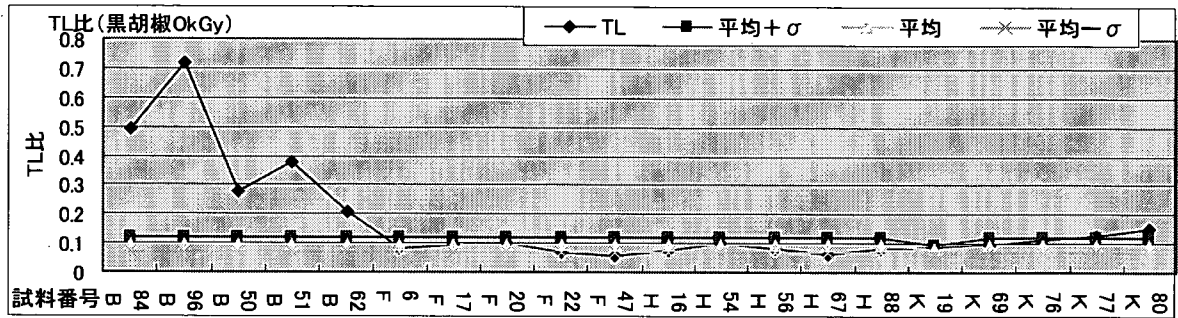
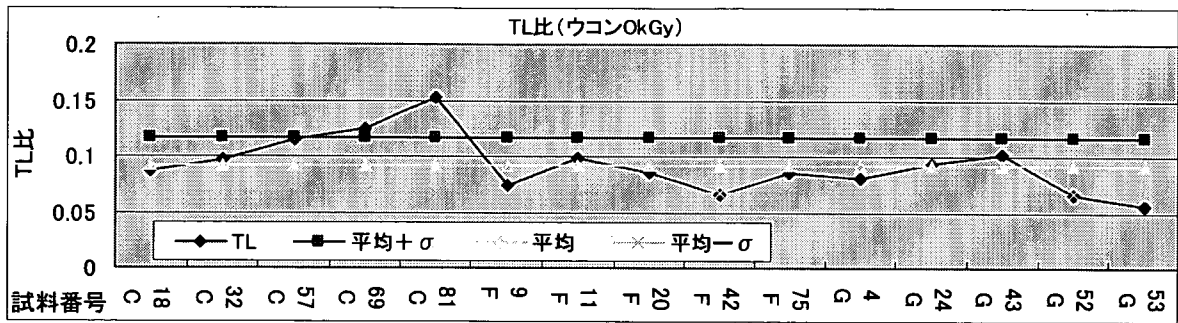


図C-52 0.3 k Gy 照射試料の TL 比



図C-53 0 k Gy 照射試料の TL 比

黒胡椒とオレガノは粉末試料でない
ので、100gを必要であると考えられる。
黒胡椒は100gのラボ試料でようやく必
要量の鉍物を得たが、オレガノは100g
を処理しようとする試験法の記述では
実行できなことが報告された。

結果的にもオレガノについては100g
も必要でなく、10g程度で十分な事が分
かった。このように未経験の試料につい
ては予試験必要である。

いずれの参加機関でも判断よくラボ試
料を決めた。

7-2 抽出量

かく試験機関が確保できた鉍物質量を
図C-39に示した。黒胡椒については
各機関十分な量を確保するのがやっと
だった。1mgを下回った試料数は14も
あり、難しい試料であること示した。特
に機関EとKはそれぞれ報告された5個
の内4つまで1mg未満であった。逆にA
の機関のようにターメリック、パプリカ、
赤唐辛子の抽出量が際だって多い機関も
あった。

7-3 強熱減量1

第一発光を測定の前後の重量変化を各
試料ごとに図C-40に示した。ターメ
リックの減量が多かったのがA、L、黒
胡椒はB、J、オレガノはBとE、パプリ
カはA、赤唐辛子はAとCなどが目立った。

7-4 移動減量

移動減量についての結果を図C-41
に示す。移動減量が大きかったのは機関
Cなので単なる技術的な問題であること
が分かる。

7-5 強熱減量2

図C-42に示すように大きな問題は
無いが、減量がマイナスになるつまり、
実際の重量が増えると報告する機関Cが
あった。

7-6 最終重量

図C-43に各試料別の最終重量を示
した。機関別に見ても1 σ を超えて最
終重量が少ない機関はターメリックにつ
いてはA、E、L、黒胡椒についてはCと
E、オレガノでE、パプリカでA、赤唐辛
子でAとなっていた。

7-7 OBG量

バックグラウンド1と2の試料ごとの結
果を図C-44にしめす。一見して分か
るのは特定機関の機体のバックグラウンド
が高いことが分かる。その他には問題は
ない。

7-8 TL1の発光量(G1)

図C-45, 46, 47に1,0.3 k Gy
照射試料並びに非照射の試料のTL1発光
量を試料別に示した。図C-48は
妥当な結果だと考えられるが、図C-
49, 50にある赤唐辛子とオレガノに
ついてA機関が報告したものは他の結果
と著しくことなっていた。試料のとり違
い等が考えられた。

7-9 T1温度

図C-48, 49, 50に1,0.3 k Gy
照射試料並びに非照射の試料のT1を試
料別に示した。別項で論じたようにT1
は主観的な要素があるので、これを考慮
すると大きな問題はないようであるが、
C機関が報告している値で、黒胡椒の1
k Gy、赤唐辛子の0.3kGyは1 σ を超え
て低いが、パプリカは逆に1 σ 位高い値

を示した。非照射の試料のうちT1について報告があったものだけを掲げた。黒胡椒についてB機関が200°Cの報告をしているが、正しい報告で、非照射の試料でもはっきりとしピークが観測できる場合があった。

7-10 TL比

図C-51, 52, 53に1, 0.3 kGy照射試料並びに非照射の試料のTL比を試料別に示した。別項で論じたようにTL比はばらつきやすく数字そのものから、各ラボに関しての問題を読みとりにくい。図18からTL比が0.1を割り込むのは特定の機関ではなくばらつきの範囲と見るのが妥当であろう。図19はTL比で非照射試料を区別できる試料として、オレガノ、パプリカ、赤唐辛子であることが確認できた。ターメリックは

全体的にばらつきが大きく0.1の基準では判断が困難であろう。黒胡椒の場合0.1を超えたのはB機関だけであった。

8 各機関の結果

機関別に問題点を整理した。

8-1A機関

試料の乾燥方法に問題があった。さらに試料のとり違いが推定された。この集計では、報告のままとして取り扱った。

8-2B機関

Aと同様に試料の乾燥方法に問題があったが、結果に及ぼすような大きな問題は無かった。

8-3C機関

試料の移動方法や試料の取り扱いに問題があって、重量変動の大きな機関であった。特に試料重量の増加を報告するなど天秤操作の未熟さが目立ち、ベテ

表C-11 正解率

	試料名	正解	試料数	率
1 kGy	BP	15	15	100
	TA	17	17	100
	OR	19	19	100
	PA	15	15	100
	RP	15	15	100
	全体	81	81	100
0.3 kGy	BP	12	19	63
	TA	16	21	76
	OR	15	20	75
	PA	19	22	86
	RP	15	15	100
	全体	77	97	79
0 kGy	BP	10	20	50
	TA	10	15	67
	OR	15	15	100
	PA	17	17	100
	RP	24	24	100
	全体	76	91	84
全体		234	269	87

ランらしからぬデータであった。さらに TL のバックグラウンドが高く、表示温度が低めの傾向が見られた。TL の調整不足が考えられた。しかし、全体的に見ると結果に及ぼすような大きな問題はなかった。

8-4E 機関

強熱減量が大きく、分析試料を十分確保できないケースがあるなど技術的にはまだ向上の余地はあるにしても、結果に及ぼすような大きな問題はなかった。

8-5F 機関

大きな問題は見つからなかった。

8-6G 機関

大きな問題は見つからなかった。

8-7H 機関

大きな問題は見つからなかった。

8-8J 機関

大きな問題は見つからなかった。

8-9K 機関

大きな問題は見つからなかった。

8-10L 機関

大きな問題は見つからなかった。

9 正解率

以上見てきたように、実験の結果そのものは全体的に問題がなく、研究そのものは良好な結果といえるだろう。

しかし、原案に示された判定基準に当てはめて、各機関が照射・非照射の判定をした結果を表 C-11 に示す。全体的には 87% の正解率であった。

非照射の判定率は 84% で良好であったが、黒胡椒、ターメリックは 50、67% であった。その他の香辛料では、87

から 100 と良好であった

0.3kGy の試料については黒胡椒の判定率が 63% であった。全体としても 79% の正解率であった。

1 kGy では 100% の正解率であった

3. TL 法の適用照射食品拡大に関する研究 (2007 年度)

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)

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 C-54 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。

2) 唐辛子系香辛料

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。

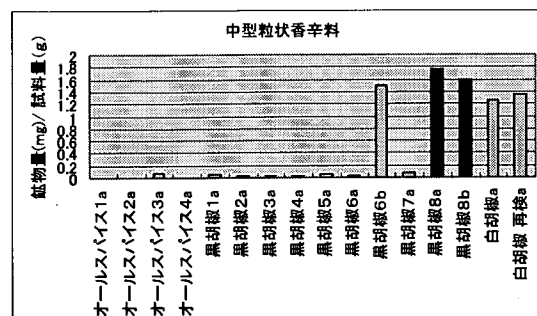
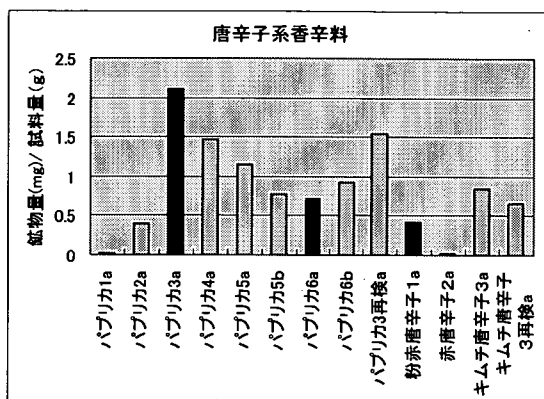
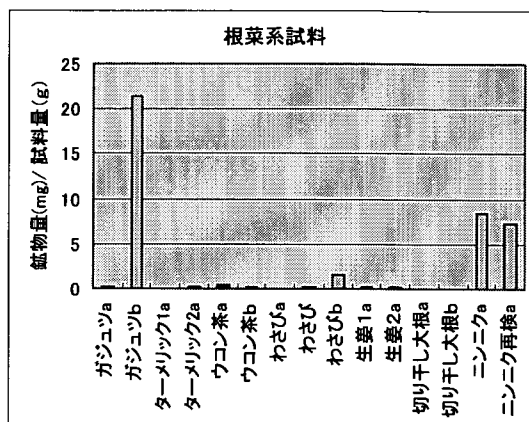


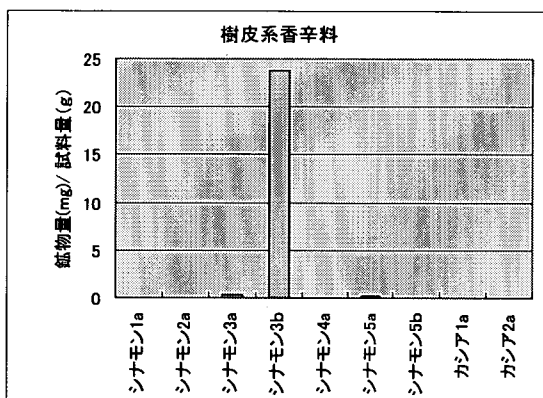
図 C-54 中型粒状香辛料の鉍物率



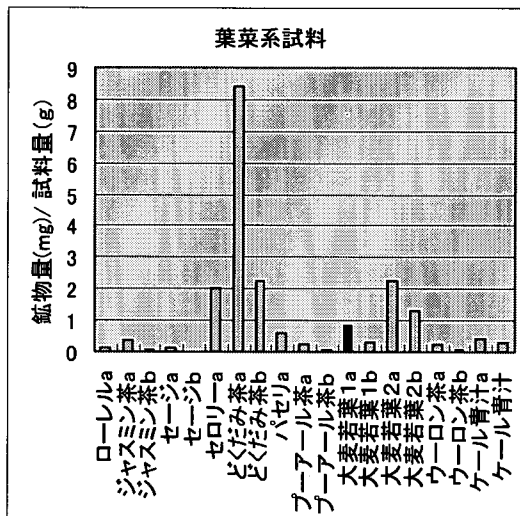
図C-55 唐辛子系香辛料の鉍物率



図C-57 根菜系香辛料の鉍物率



図C-56 樹皮系香辛料の鉍物率



図C-58 葉菜系香辛料の鉍物率

3) 樹皮系香辛料

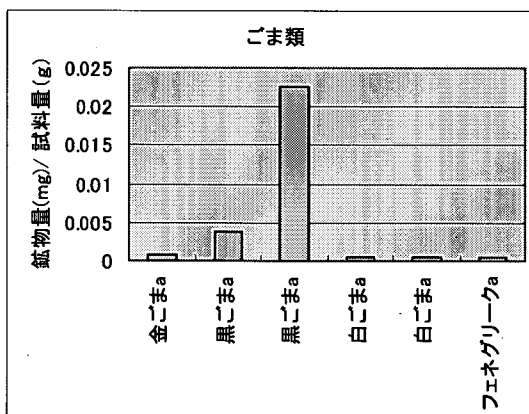
この範疇に入るものはシナモンとカシアである。図C-56に示すように、いずれの試料からも十分な鉍物量が得られた。

4) 根菜系試料

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C-57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。

5) 葉菜系試料

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、プーアール茶、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C-58に示すように、どの試料からも十

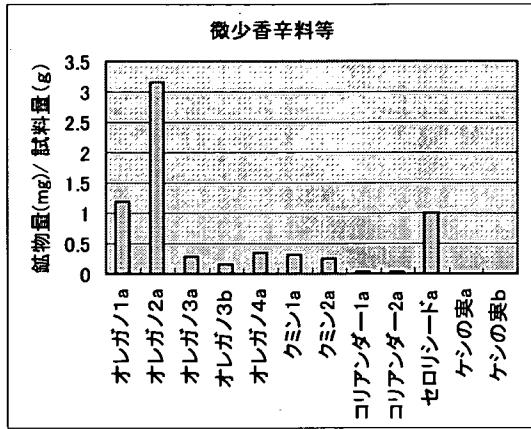


図C-59 ごま系香辛料の鉍物率

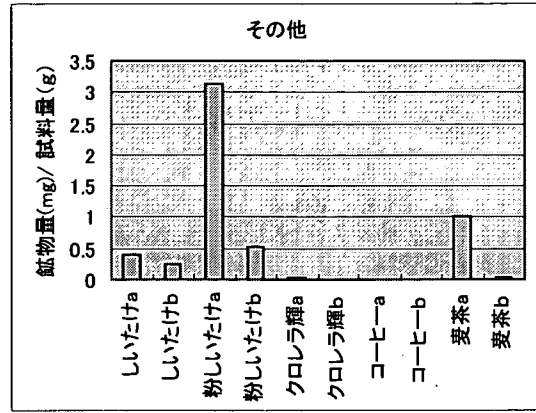
分な鉍物量が得られた。

6) ごま類

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



図C-60 微量香辛料 (<5mm) の鉍物率



図C-61 その他の香辛料 (<5mm) の鉍物率

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C-59) このような場合検知が困難である。

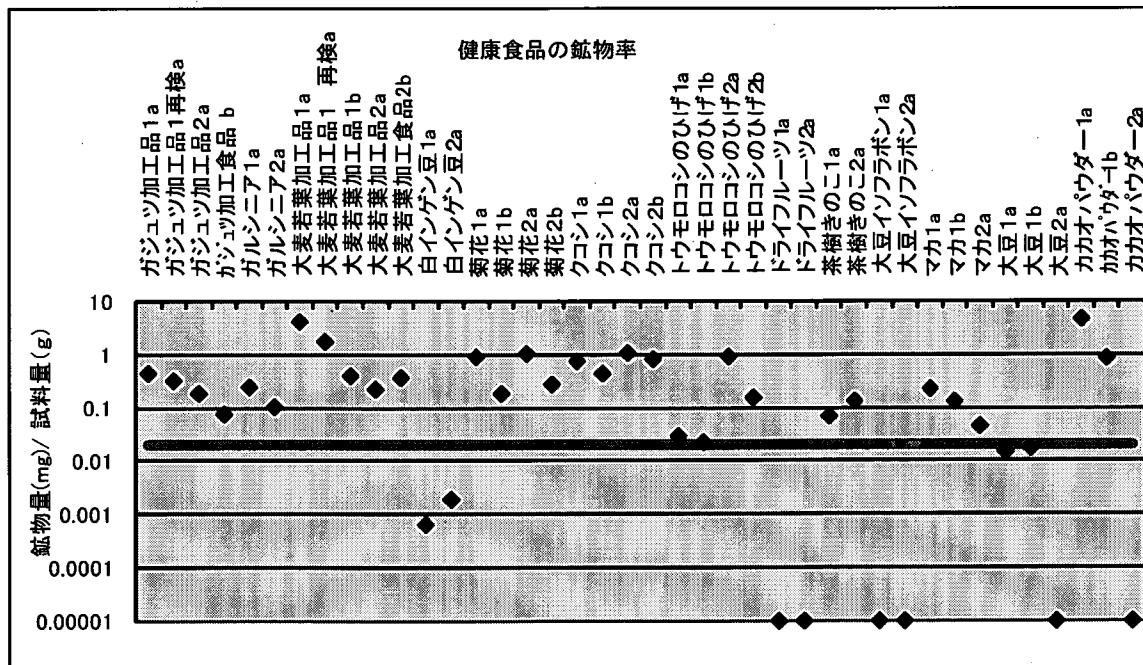
7) 微量香辛料 (<5mm) このカテゴリーの香辛料は粒度が小さく、抽出時困難が伴う場合が少なくない。しかし、ケシの実を除いて、その他の試料は十分な鉍物量が得られた。(図C-60)

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C-61)。

9) 健康食品

図C-62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



図C-62 健康食品 (<5mm) の鉍物率

表 C-12

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

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。健康食品：41 品目中 32 品目について 1mg 以上の鉍物が得られた。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 C-12)。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鉍物を回収し、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。

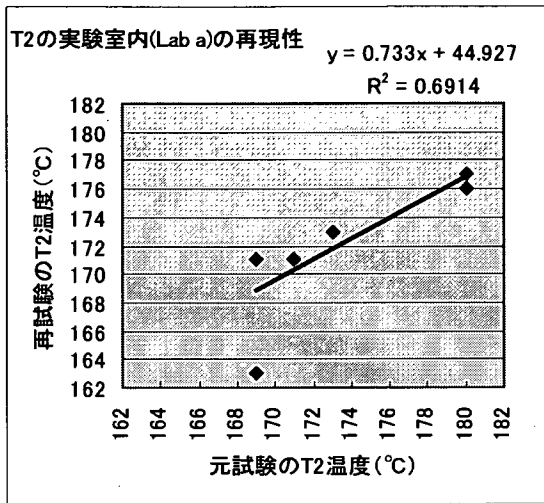
11) 照射試料の試験 (Lab b)

上記 1) から 9) までの項目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 1 部分の試料を 1 kGy 照射し、それらの鉍物が発光を示すか確認した。

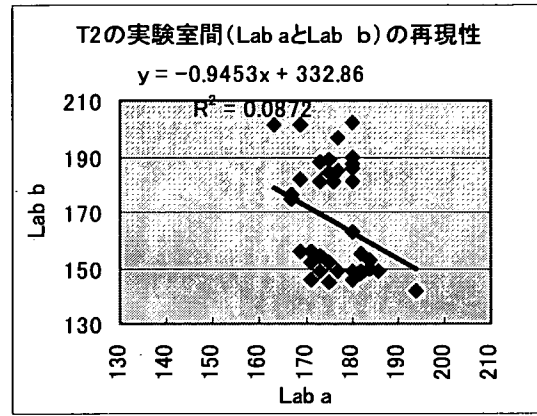
あらかじめ放射線を照射された試料 25 種類のうち、重量測定可能な鉍物量が得られたものは 21 試料であった。コーヒー、クロレラ加工品、ケール青汁、ケシの実の 4 試料からは十分な鉍物量が得られなかった。しかし、そのうちの 2 つ (シナモン及びわさび) は G' W2 の量が 0.5mg を大きく下回っていたことから、測定が成立しなかった。TL 測定の条件が成立しかつ放射線照射の評価が可能であったものは 19 試料であった。これらの試料はいずれも発光曲線の極大温度が TLD100 のそれよりも低くかつ TL 比が 0.1 を超えていることから、放射線照射された試料であることを確認することができた。

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)

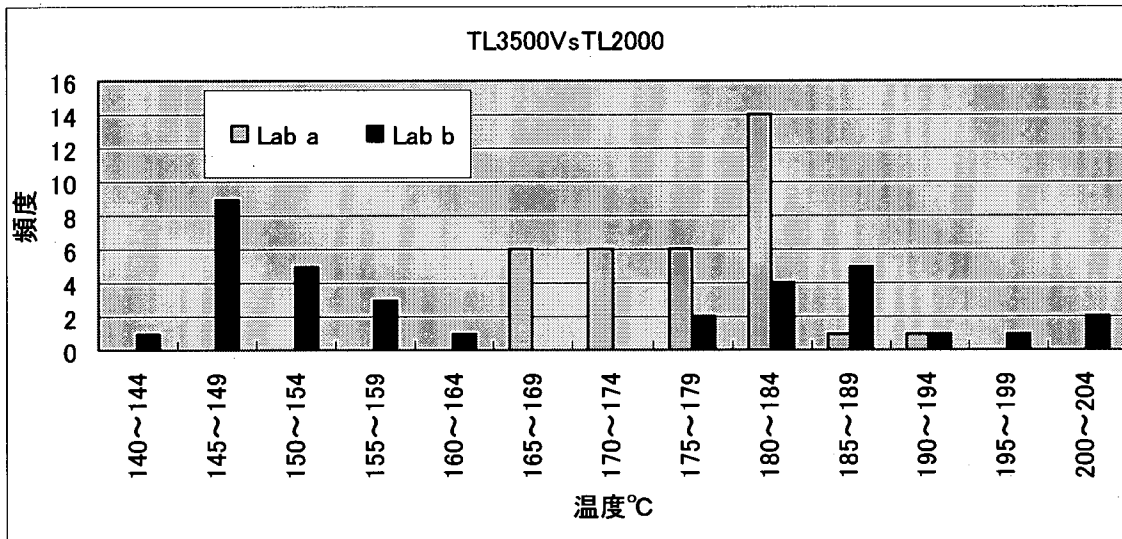


図C-63 T2の室内の再現性 (Lab a)



図C-64 T2の室間の再現性

(Lab a と b)



図C-65 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。

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(図C-63)。

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(図C-64)。

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 C-6 5)。これによると Lab a、の度数は 180℃ 付近に 1 つの山を持つ分布を持つのに、Lab b は 150℃ 付近と 180℃ 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があったことが明らかである。

D. 考察

1、試料から分離できる鉍物の再現性

抽出される鉍物量は種々の要素によって大きく変化することが、考えられる。表 D-1 にその考えられる要素を列挙した。

本研究を通じて、試験法や試験者の因子よりも、試料の不均一性や香辛料の精製度の相違などの試料固有の要素が本試験法の適用に大きく影響することが懸念された。しかし、実際には多くの試料については試験が可能であることが分かっ

表 D-1 抽出量に及ぼす変動推定因子

香辛料の種類	根もの、葉物、実物等の利用部分の違で鉍物量が異なる。
香辛料の産地とグレード	原産国国家基準、業界基準等がある場合ない場合
香辛料の乾燥方法等	HACCP などの衛生管理がなされているか否か
香辛料の異物除去方法	異物除去等の選別方法の良否
香辛料の加工	加工された香辛料である場合
試験者の技術・熟達度	試験技術者の技量の良否

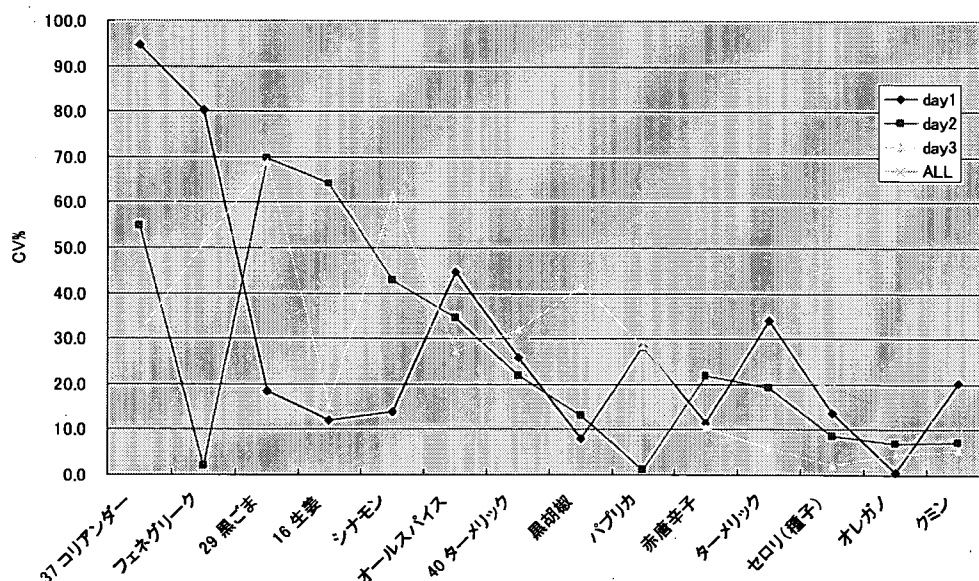


図 D-1 試料率の CV%

た。

図D-1に試料率の再現性をCV%として示した。コリアンダー、フェネグリーク、黒ごまのように変動が大きく安定しないものもあったが、おおむねCV%は50%を切るものが多かった。

これは香辛料の種類によりその形態が異なる上、付着している鉱物の大きさ等が異なるため試料の均一性が異なり安定した結果が得られない場合が多くあると考えられた。すなわち、CV値が1日目より2日目、3日目に小さくならない試料が多く見られ、試験者の不慣れがないとすれば、試料の不均一と考えざるを得ない。

このような結果は前年の後藤らの報告にもあり、100 gの粒状香辛料から1mg以上の鉱物を分離することができたので、試験のための採取量を100 gとできるだろう。一方、セロリシード、クミンなどからは大量の鉱物が分離された。これら検体についてはラボ試料が少なく、処理量は少ないほうが精製が容易なので、採取する検体量を10 g以下に減らすことを検討するべきだろう。

粉末の場合、ホールの試料と粉末の試料では付着している鉱物量は経験的に異なっており、粉末のものの方が多き場合が多い。試料の量が多くなると多量のポリタングステン酸ナトリウム溶液を必要とするので、試料は10 g位から検討するべきであろう。

しかし、白胡椒の場合、ほとんど鉱物質を抽出できないこともあり、本研究でも検討したが満足できる結果が得られな

かった。

今後、試験実施に当たり、各機関に置いては検体量を決める予試験が必要であろう。そのために予備知識として本研究の数値が役立つだろう。また、それに必要な余分な試料量を確保できるように依頼者に働きかけることが必要だろう。

2 TL比の再現性

EU諸国で利用されているTL試験法では、照射・非照射の判別はこの数値で行うことになっている。本試験法は定性試験法とされており、TL比そのものの再現性を精査しても意味がない。従って、ある基準にこのTL値を当てはめて、照射・非照射の判別確率を調べて、その再現性を検討することとした。

TL比に影響する因子は表D-2に示す。多くの因子が絡んでおり、試験実施者が留意するべき点も多いが、サンプルの均一性に関わる点が多い。このため、試料の吸収線量を推定できないとする定性試験法として使用されているのだろう。本試験法の原型は被曝線量の測定にあるのだから、本来なら定量性があり、その再現性は20%程度保証されている。

TL比は目的線量を5 k Gyとし、標準付加線量を1 k Gyとした。目的照射から2ヶ月以内の分析となるため、TL比が不安定にならないように第一発光を測定するまえに、アニールすることにした。これによって、高発光などの不安定要因を緩和することが出来た。

標準照射は放射線利用振興協会で行うこととし、5%以内の誤差で照射を行っ

表D-2 TL比に影響を及ぼす因子と管理方法

目的照射線量の均一性	照射むらがあるとTL比は一定にならない。通常公比は1.5位と推定される。
鉍物質の結晶状態等	単位重量あたりの発光量の異なる鉍物の混合物である場合、その混合割合が試料の部位によって不均一であることがある。ブレンドされた場合など。
分離された鉍物質の純度	分離された鉍物に多くの有機物や水分が含まれていると単位重量あたりの発光量に変化し、TL比が変動する。正確な試験分離操作が必要。
アニーリングの精度	アニーリングの温度、時間等がばらつくと発光量に変化する。厳密な管理が必要。
標準照射線量の精度	5%以内の均一照射が必要である。
TL測定装置の精度・安定性	管理方法はメーカーの推奨方法による。
天秤の精度安定性	管理方法はメーカーの推奨方法による。

た。

TL測定機器は我が国ではほとんど普及していないので、使用に関する説明会などの開催を輸入業者に依頼するなどの万全を期した。

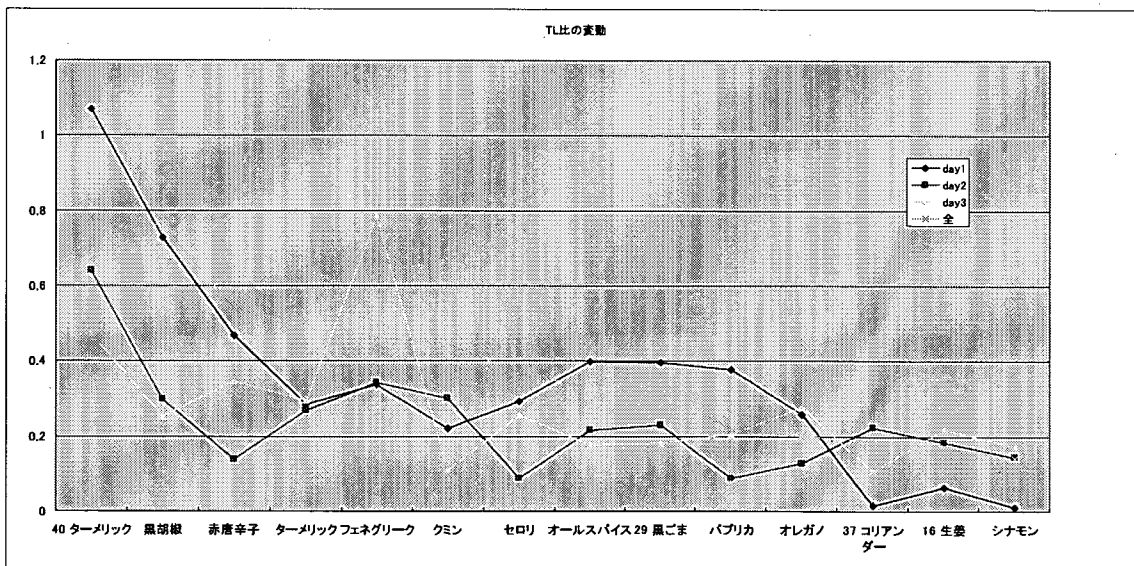
天秤については普及された機器なのでメーカーの講習会テキストに基づき、研

究方法の部に記述したようなマニュアルを作成した。

これらの機器の管理状況は後から分かるように記録を付けることにした。

このような様々な対策を施して試験室内の再現性をCV%として求めた。

図D-2にCV%の結果を示した。



図D-2 TL比のCV%

粉末のターメリックは極めて変動が大きく、いずれの日も TL 比の CV% は 40% を大きく上回った。これは粉末の試料なので試料の均一性については大きな問題はないと考えられるが、原因は分からなかった。

黒胡椒は 1 日目だけ大きな CV 値を与えたが、残りの日は安定していたので、これは抽出技術上の問題と考えられた。本試験法で十分対応が可能であることが示唆された。

赤唐辛子は 1 日目は 40% を越えるなど変動が大きく 2 日目 3 日目になっても一定の傾向が見られなかったことから、安定した結果が得にくい試料なのだろう。

ターメリック（フィンガー）、クミン、セロリは安定した結果を与えた。しかし、全体の CV% は 3 日間の CV% より大きいことから、TL 比値の日間格差が大きいことを示している。これは測定系に問題があることを示唆するように考えられるが、原因を特定出来なかった。

フェネグreek は 3 日目に大きな CV% を与えたことから、試料の不均一性が考えられた。

オールスパイス、黒ごま、パプリカ、は 1 日目の CV% が最も大きく、慣熟すると安定した結果が得られることがわかる。

オレガノ、コリアンダー、生姜、シナモンははじめから安定した CV% を与える試料であった。比較的扱い易い試料のように考えられた。

TL の値は被爆線量測定の場合厳密に

諸般の条件を整えても、20% 位の不確実性を含んでいると言われている。この検知法の場合、TL 比の再現性は CV 値 40% 以下なら、安定していると考えても良いのだろう。

2. 照射食品検知 TL 法の室間再現性に関する検討 (2006 年度)

1. 各ステージごとの重量変化

各ステージの重量変化を追うことで試験法の脆弱な部分を明らかに出来た。

その結果次のような留意点が浮かび上がった。(図 D-3 参照)

1. 分析試料を十分に乾燥すること
2. 試料皿から試料の砂をこぼさないように実験室の環境を整えること
3. TL 装置の調整を十分に行い、温度校

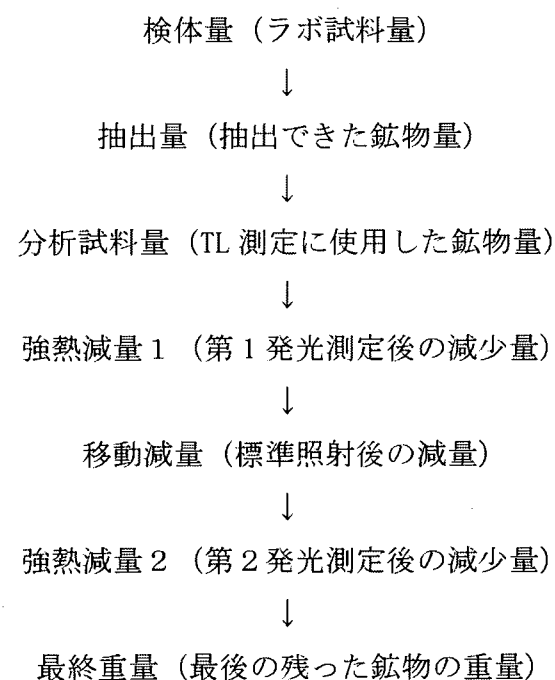


図 D-3 各ステージごとの重量変化

正を正しく行うこと。

4. 天秤を十分に使いこなす技術が必須。などである。

また、試験の結果を評価する上でも、これらの重量測定の結果を利用することが出来るだろう。とくに、強熱減量の大きな試料は不純物が多いことを示唆するので、単位あたりの発光量とするとき、極めて小さな値の発光量と計算する恐れがある。

また、最終重量が極端に少ないと発光量になるなど

2. TL 後のバックグラウンド

バックグラウンドは新しい機体ならば、十分に低く問題がないが、長年の使用の中で、加熱ステージを汚染したりして、おおきなバックグラウンドを示す場合、オーバーホールなどの整備が必要だろう。

3. T2 の範囲

結果的にどこの産地のものであってもほぼ同じ T2 を与えることは興味深い。ピーク温度の差は機械の温度校正の問題とピークトップをどこにするかという主観的な問題とが絡み合っている。

しかし、C 機関をのぞくと比較的狭い範囲に収まっていた。TL 装置の再現性を示しており、T1 の判定の参考になるだろう。

4. TL1 の発光量

用いた装置の特性や試料の形態が原因となって、正確な発光量を求めることが困難であること分かった。重量測定のパラッキに起因する重量測定の不確実性は大きな問題ではない。発光量のパラッキ

が極端に大きかったからである。

照射の判定には十分な発光量を確保することが重要で、ある量以上の発光量がなければ判断できない。必要ならば分析試料量を増減して適切な形状の発光曲線を得るように努める必要があるだろう。

5. T1 の値

いくつかの課題を解決して基準を設ける必要があるが、とりあえず 200°C 前後にピークがあれば、照射と判定できるだろう。特に T2 の値とほぼ同じになることから判断出来るだろう。

6. TL 比

期待ほどは決め手にはならず、他のデータが必要であった。従って TL 比だけに頼らず、総合的に照射・非照射を判定することが大切であることが分かった。参考にするべきデータは G1、T1、T2 であろう。

7. 個々のデータ

いずれのデータも大きな問題はないが、A と C の機関は改善の余地があるだろう。

図 C-46 の赤唐辛子試料番号 8, 28, 49, 51, 56 のグループと図 C-47 のオレガノ 15, 33, 59, 70, 96 のグループとの試料の取り違えがどこかの時点で生じているようだが、それを解明できなかった。

図 C-44 の BG ターメリックで試料 18, 32, 57, 69, 81 で、B1 と B2 の値に大きなずれが生じており、暖機運転が十分でないと考えられる。

8. 参加機関

多くの機関は適切な管理の下、本実験

表D-4 各機関の結果比較

試料名	最終重量 (mg)		残存率 (%)		T1°C		T2°C		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

が遂行されたと考えられる。しかし、C機関は天秤、試料、TLの管理いずれをとっても大幅な改善が必要であると考えられる。しかし、反面これくらいラフな実験でも判定に影響がなかったことを考えると、本試験法は頑健性に優れた方法であることを示唆する。

また、機関Aは試料の取り間違えがあったと考えられるが、詳細について検討する時間がなかった。

9. 正解率

全体的には良好な成績であった。一部の黒胡椒では正解率が落ちているが、試料数が少ないこともあってこのような結果となったと考えられる。他のコラボの結果と比べてもほぼ同じ結果だが、0.3kGyという設定が他の研究よりも低いにも関わらず、同等であったことは優れた分析法であると示す。

判定基準については十分に説明したが、各機関での理解が十分でないことを考慮して、別途判定し直した所実験の不備により判定が正しく出来なかった試料は5試料で残りは正しい判定知識や経験があれば、誤ることなくが判定が可能であった。さらにTL法の知識の普及が必要であろう。

3. TL法の適用照射食品拡大に関する研究(2007年度)

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1kGy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D-4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、必要な量の鉍物を集められるか、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、鉍物残存率、T1、T2並びに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。

同等性の検証はT2の比較をおこない、TL測定器の比較を試みたが、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の大きなず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。

しかし、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、①TL2000の温度上昇が直線的でなく再現性に乏しい。②TL2000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

1. 照射食品検知 TL法の室内再現性に関する検討 (2006年度)

昨年の研究成果や本年の予試験をもとに、鉍物抽出量とTL比を用いてTL法の室内再現性を検討した。

鉍物抽出量は100gの試料を用いればここに示したターメリック(粉末)、黒胡椒、赤唐辛子、ターメリック(フィンガー)、フェネグリーク、クミン、セロリ、オールスパイス、黒ごま、パプリカ、オレガノ、コリアンダー、生姜、シナモンについては必要な鉍物を確保できることが示された。試料の状態によっては、試料量を10g以下にすることも可能である。

しかし、予試験の段階で、タマネギ、ニンニク等は鉍物質が抽出されずTL法では検知できなことが分かった。

TL比は日による変動が大きく、安定しないが、照射の判定は可能である。

TL比0.1を照射の基準とすれば、今回検討したすべての試料のTL比は0.1以上であり、正しく判定できたことになり、極めて正確な試験法として採用が可能なものであろう。しかし、非照射の判別が的確に可能かどうかは今後の課題であらう。

2. 照射食品検知 TL法の室間再現性に関する検討 (2006年度)

放射線照射香辛料検知のための試験法を構築することを目指して、実験室間の再現性を調べた。香辛料5種類(黒胡椒(BP)、オレガノ(OR)、赤唐辛子(RP)、パプリカ(PA)、ウコン(TA)(ターメ

リック)) に電子線照射して放射線の線量が3水準の未知試料(合計350個予備試料を含む)を作成し、これを10試験研究機関に送付し、試験を実施した。試験の各ステージごとに試料の重量変化を調べその再現性を調べた。ラボ試料量は100g以下で十分な場合が多かったが、予試験を実施して検討する必要がある。抽出された鉍物質の量はCV%で30~40%程度の再現性を確保出来ると考えられた。その他の重量変化を調べて品質管理のパラメーターとして有用であった。

発光極大の温度T1は照射・非照射の判定に重要なパラメーターであることがわかった。その再現性は良かった。

これに比べてTLの再現性は悪く判定の参考にしかならなかった。しかし、1kGyを検出下限とするとき、このTL比を中心に判定が可能であった。

参加機関の資質は均一ではないが、本試験を行う能力を備えていた。

分析された試料は269個で正答率は87%であった。実験者と別途判定したところ、正答率は98%であった。極めて正確な結果が得られる試験法であることを示した。

3. TL法の適用照射食品拡大に関する研究(2007年度)

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。

謝辞

各種香辛料から忍耐を要する鉍物の分離作業を丁寧におこない、多数のTL測定を慎重におこなっていただきました各位に感謝いたします。

G 研究発表

口頭発表

1) MAKOTO MIYAHARA, TAMIO MAITANI, TAKUJI KOJIMA, HIROMI SUNAGA, TAMIKAZU KUME Dosimetry for Food Irradiation with Alanine and Plastic Dosimeters. A Comparison Study The 119th Annual AOAC International Meeting and Exposition オランダ 2005

2) Makoto Miyahara, Toshiki Mashimizu, Hideyuki Hara, Hiromi Sunaga, Tamio Maitani E S R Measurement of Three Alanine Dosimeters at Low Level Gamma Irradiation 28th International EPR Symposium デンバー 2005

3) 小嶋拓治、田口光正、春山保幸、羽田徳之、須永博美、宮原誠 アラニン線量計の食品照射工程管理への応用検討 第11回放射線プロセスシンポジウム 東京 2005

4) 宮原 誠、小嶋拓治、小林泰雄 須永博美、米谷民雄 ESR法を用いる放射線照射食品プロセスのための微量放射線量測定法 日本薬学会第126年会 仙台 2006

5) 川上宏之、田形肇、森曜子、宮原誠、米谷民雄 放射線照射魚介類に対す

- るアルキルシクロブタノン法適用の確認 第91回日本食品衛生学会講演会 東京 2006
- 6) 宮原 誠、後閑麻代、木村崇弘、須永博美、棚瀬正和、米谷民雄 照射食品のTL法による検知 その2 試験法の基礎的検討 第43回アイソトープ・放射線研究発表会 東京 2006
- 7) 木村 崇弘、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 その1 基礎的検討 第43回アイソトープ・放射線研究発表会 東京 2006
- 8) Makoto Miyahara, Toshiki Mashimizu, Hideyuki Hara, Hiromi Sunaga, Tamio Maitani E S R Dosimetry for Food Irradiation at Low Dose Level Gamma Irradiation by Three Alanine Dosimeters A Collaboratory Trial 49th Rocky Mountain Conference on Analytical Chemistry, Breckenridge, Co, USA 2006
- 9) 川上宏之、田形 肇、森 曜子、宮原 誠、米谷民雄 放射線照射魚介類中のアルキルシクロブタノンの分析 日本食品衛生学会第92回学術講演会 春日井 2006
- 10) 尾作浩司、加藤 毅、小木曾基樹、渡井正俊、宮原 誠 TL法による放射線照射香辛料の検知に関する検討 日本食品衛生学会第92回学術講演会 春日井 2006
- 11) 宮原 誠、後藤典子、等々力節子、米谷民雄 照射食品のTL法による検知 第43回全国衛生化学技術協議会 米子 2006
- 12) 宮原誠、米谷民雄、杉 恵理子、清水隆志、須永博美、棚瀬正和 照射食品検知のためのTL法の再現性について 日本食品衛生学会第93回学術講演会 東京 2007
- 13) 宮原美知子、露木英理子、宮原誠 食品中のサルモネラと腸炎ビブリオの検査法と殺菌法の検討 日本防菌防黴学会第34回年次大会 吹田 2007
- 14) Miyahara, M. Sugi, E., Sunaga, H., Tanase, K., Maitani, T. Interlaboratory trial of new detection procedure for irradiated spices using thermal luminescence 234th American Chemical Society National Meeting & Exposition Boston 2007
- 15) 川上宏之、竹歳史紀、関 龍雄、宮原 誠、米谷民雄 TL法による香辛料および健康食品の照射判別 日本食品衛生学会第94回学術講演会 東京 2007
- 16) 宮原 誠、棚瀬正和、米谷民雄 照射食品検知のためのTL法の再現性 第44回全国衛生化学技術協議会 津 2007
- 17) 宮原 誠・杉恵理子・須永博美・棚瀬正和 T L法における再現性について第12回 放射線プロセスシンポジウム 2007
- 18) 渡辺章夫、近藤桂子、森光昭、宮原 誠 照射アラニン線量計の測定法の

検討 第12回 放射線プロセスシンポジウム 2007

19) 宮原 誠 照射食品の検知の現状 第12回 放射線プロセスシンポジウム 2007

論文発表

1) 宮原 誠 照射食品検知を巡る最近の動向 2006 放射線と産業 111-31-35 2006

2) 宮原 誠 誘導放射能の確認とその安全性 食品照射 41 32-48 2006

3) 宮原 誠 食品照射検知法の現状 2007 食品衛生研究 57 33-48 2007

4) 宮原 誠 X線並びにγ線を照射した食品に生じる誘導放射能 Bulletin of National Institute of Health Sciences 125 107-118 2007

5) 宮原 美知子 宮原 誠 塩漬け野菜の保存と電子線照射における腸管性出血性大腸菌、大腸菌群と生菌数も菌数消長について 防菌防黴 35 779-783 2007

参考文献

1) 伊藤均: JAERI-Review 2001-029「食品照射の基礎と安全性 —食品衛生・貯蔵にはたす放射線処理の可能性—」、日本原子力研究所 (2001)

2) 田邊寛子; 照射食品の検知法の開発に関する研究 博士論文 (2003)

3) <http://aec.jst.go.jp/jicst/NC/>

senmon/syokuhin/index.htm

4) EN 1784, Foodstuffs — Detection of irradiated food containing fat. Gas chromatographic analysis of hydrocarbons (2003)

5) EN 1785, Foodstuffs — Detection of irradiated food containing fat. Gas chromatographic/mass spectrometric analysis of 2-alkylcyclobutanones (2003)

6) EN 1786, Foodstuffs — Detection of irradiated food containing bones. Method by ESR spectroscopy (1997)

7) EN 1787, Foodstuffs — Detection of irradiated food containing cellulose by ESR spectroscopy (2000)

8) EN 1788, Foodstuffs — Thermoluminescence detection of irradiated food from which silicate minerals can be isolated (2001)

9) EN 13708, Foodstuffs — Detection of irradiated food containing crystalline sugar by ESR spectroscopy (2002)

10) EN 13751, Foodstuffs — Detection of irradiated food using photostimulated luminescence (2002)

11) EN 13783, Foodstuffs — Detection of irradiated food using Direct Epifluorescent Filter Technique/Aerobic Plate Count (DEFT/APC). Screening method (2001)

12) EN 13784, Foodstuffs — DNA comet assay for the detection of