

[総説]

照射食品安全性検証の歴史 (3)¹⁾ 誘導放射能の確認とその安全性 Natickの研究から

宮原 誠

国立医薬品食品衛生研究所 (〒158-8501 東京都世谷区上用賀1-18-1)

A history of study on safety of irradiated foods (3) Induced radioactivity in irradiated foods

Makoto MIYAHARA

National Institute of Health Sciences, 1-18-1, Kamiyoga, Setagaya-ku, Tokyo 158-8501 Japan

Summary

Food irradiation can induce a small amount of radioactivity in the foods. The principal mechanisms of the nuclear reactions are (n, γ) , (γ, n) , (γ, γ) . The resulting nuclear products were found in irradiated foods were Na-24, P-32, Ca-45, C-11, N-13, and O-15 in the food irradiated by 24 MeV electron beam. The total radioactivity is less than 1/1000 of those of K-40 in the case of electron beams below 10 MeV or X rays below 5 MeV. Package materials affected neutron flux in the foods and enhanced the radioactivity. Electron beam machine produces neutrons and increases the flux in food. IAEA recommend to reduce neutron production in the facility. The safety of irradiated food in the radioactivity field still needs more progress.

はじめに

食品を放射線処理すると食品中の元素の一部が放射化する可能性があることは科学的に知られている^{2), 3)}。この誘導放射能の安全性をどのように確認してきたかを考察したい。

食品照射に批判的な立場をとっている科学者たち⁴⁾も、誘導放射能は問題ではないことをはっきりと認めていた。しかし、近年、国際原子力機関 (IAEA) はこの誘導放射能問題を取り上げ、電子線・X線照射装置等から出る中性子の量に注意を払い、照射食品中の誘導放射能の量を抑えるように勧告している⁵⁾。

照射食品の誘導放射能に関する文献について、古くはアメリカ合衆国陸軍 Natick 研究所の研究から最新の IAEA の報告書まで公表されている。微量にしか生成されない誘導放射能を追って、当時の科学

者はいくつかの工夫でこれらの問題を切り抜け、食品中の天然に存在するカリウム 40 の量と比較しても少ない放射線量である事を見だし安全であると考えた。これに理論的な根拠を IAEA は与えているようだ。

1. 理論と報告

1.1 核反応の理論的な考察の必要性

核反応といえば、原子爆弾や原子力発電所の中で起きるウランやプルトニウムの核分裂反応を思い浮かべるだろう⁶⁾。しかし、食品照射で問題となる核反応はこれとは若干趣を異にするが本質は同じである。原子の核と放射線との反応は複雑多岐にわたっており、その反応メカニズムは解明されたとはいえ、実際に反応がどの程度起きるのか実験を実施しないと不明とさえいわれている。しかし、今までの

技術では照射によって生成した放射性核種から出る放射線を解析する技術が十分でなく、直接的に計測する事が困難であるとされてきた。このような経緯から、20世紀初頭から急速に発達してきた核物理は実験よりも理論を重視し、理論的な計算結果を後から可能な部分について実験的に検証する手法をとってきた。どのような核反応が照射食品で理論的に問題となるか、ここで簡単に紹介したい。その詳細は付録に記載した。必要に応じて参照されたい。

照射食品の放射化、すなわち食品への放射線照射によって食品の構成元素の一部が放射性同位元素に変換される過程は、その放射線の種類とエネルギーに依存する。食品照射に用いられるコバルト 60あるいはセシウム 137のガンマ線、5 MeV以下のX線、それに10 MeV以下の電子線を考えたとき、問題となる主な物理的過程として、(1) 高エネルギー光子による光核反応すなわち (γ, n) 反応や (γ, p) 反応、(2) 光核反応により生じた中性子の捕獲反応、そして(3) 高エネルギー光子による核異性状態への原子核の励起(核アイソマーの生成)がある。

厳密に言えば、非常に高エネルギー(例えば200 MeV)の電子が原子核に衝突した際に仮想光子の交換による $(e, e'n)$ 反応や $(e, e'p)$ 反応を起こし、中性子や陽子あるいはアルファ粒子を放出することがある。しかし、これらの核反応は大共鳴エネルギー領域などの反応に好適なエネルギー領域があり、電子線のエネルギーに単純に比例して起きる確率が高くない。したがって、10 MeV以下の電子線で実際にそれらの反応がどの程度起こるかは定かではなく、このような電子による直接の核反応も、制動放射X線による光核反応に代表させて、放射化の量が見積もられてきたようだ。

(1) 光核反応

高エネルギー光子による光核反応、すなわち (γ, n) 反応や (γ, p) 反応には、照射される原子核によって異なる閾値エネルギーが存在する。たとえば ^{12}C では、 (γ, n) 反応の閾値エネルギーは18.72 MeV、 (γ, p) 反応では15.96 MeVであり、 ^{16}O ではそれぞれ15.66 MeVと12.13 MeVである⁵⁾。コバルト 60のガンマ線(最大エネルギー:1.33 MeV)やセシウム 137のガンマ線(同:0.66 MeV)のエネルギーは、これらの閾値エネルギーよりも十分に低いため、この光核反応による放射化は起こらない。し

かし、5 MeV以下のX線あるいは10 MeV以下の電子線照射(及びそれに伴う制動放射X線)では、 ^2H や ^{13}C 、 ^{17}O 、 ^{18}O などのように存在同位体比は小さいものの閾値エネルギーが低い(順に2.23 MeV, 4.95 MeV, 4.14 MeV, 8.04 MeV)同位元素が存在するため、 (γ, n) 反応が起こりうる。

(2) 光核反応等により生じた中性子の捕獲反応

前述の同位体から (γ, n) 反応によって生成する核種はそれぞれ ^1H 、 ^{12}C 、 ^{16}O 及び ^{17}O で、これらは放射性核種ではないので、これらの光核反応で直接に放射性核種が生成するわけではない。しかし、反応によって発生したエネルギーの高い光中性子が減速され、エネルギーの極めて低い熱中性子に変わり、これが他の元素に捕獲されることがある。捕獲する核種によっては2次的放射化の問題が残る。また、光核反応による光中性子の発生量と、それによって2次的に放射化が起こる確率は、ともに食品の構成元素の組成にも大きく左右されるため、現実の照射食品について個別に2次的放射化の程度を推定することは容易ではないだろう。

(3) 核アイソマー(核異性体)の生成

原子核の励起エネルギーが陽子や中性子の結合エネルギー以下の場合、原子核はいったん励起された後に再びガンマ線を放出して元の基底状態に戻る。これを (γ, γ') 反応と呼ぶ。多くの場合、この反応の過程は非常に短時間(1億分の1秒以下)で終了するため、後に放射性核種が残されることは少ないが、 $^{113\text{m}}\text{Cd}$ (半減期:48.5 m)のように準安定準位をとり半減期が1分以上の核異性体もある。このような、ある程度長い半減期でガンマ線を放出する核異性体の生成を考慮に入れると、実用上はともかく、厳密には、光核反応の閾エネルギー以下では絶対に放射化は起こらない、とは言えなくなる。

1.2 主な報告書

食品照射の研究が行われ始めた頃は誘導放射能についてまったく考慮された形跡はない⁷⁾。時代が下って、このような理論的な組み立ての試みは1962年にアメリカ合衆国陸軍Natick研究所が行なわれた理論構築⁸⁾が最初で、これの裏付け実験も行なわれている。引き続いて同じNatickのMeyerはこれとほぼ同じ検証を行い確かめた⁹⁾。しばらく時をおいて、Beckerは当時揃いはじめた核反応のデータを

基礎に、誘導放射能の量を計算した¹⁰⁾。これをさらに発展させ、1979年に彼はNatickに報告している¹¹⁾。その後しばらくこの問題が忘れ去られていたが、イギリスで照射食品を認めるために、時の政府は英国原子力委員会に照射食品中の誘導放射能に関する報告を求めた¹²⁾。ここでも理論的な考察に基づいて、安全性の確認を行ったとしている。そこでヨーロッパやアメリカでの議論が終わり、わが国においてアイソトープ協会が中心となって理論検討と実験が行われた^{13), 14)}。最近ではIAEAがまとめた報告書を出している⁵⁾。これらの報告を中心に安全検証の流れを辿りたい。

2. 食品照射用線源

まず線源の種類は重要でエネルギーの大きさと線質とそれが引き起こす核反応を考察する必要がある。これはそれぞれの線質により実際に起こりうる核反応が異なるからである。読者諸氏もご存じのように現在では、コバルト60やセシウム137からのガンマ線 (1 MeV位)、電子線 (10 MeVまで)、5 MeVまでの変換制動放射X線が使われている。もっとも初期の技術開発の段階では、使用済みの核燃料やこれの製造過程で出る大量の低濃度放射性物質を照射食品の線源に利用しようというのが始まりであった。

2.1 使われなくなった使用済み核燃料棒

原子力の平和利用が始まった頃、アメリカ原子力委員会は核燃料棒をプールに沈め、そこから放出されるガンマ線を線源にしようとした。このような施設はイギリスのWantage、アイダホのMTR、イリノイのArgonne国立研究所に設置された¹⁵⁾。すぐに

利用が難しい事に気がついた。線源に含まれる放射線は種々の放射線が混じっているために表面線量だけが上昇し、食品内部までその効果を及ぼすことが難しかったのだ¹⁶⁾。

吸収線量の計算の困難さに加え、表1に示すように、急速に減衰する放射能のために、常に照射対象を置く位置を変えねばならないなど照射時に複雑な操作を必要としていた。さらに、燃料棒からの発熱や残存する燃料の制御を行う必要があるので水槽の中で照射する必要があった。また燃料棒から出る中性子の問題を主な理由として、1958年FDAはこのように中性子発生成分の多い線源を食品照射に用いることを禁じた。中性子はウランなどの核分裂により発生し、これが対象としている食品を構成している一部の原子に吸収されて、この原子を新たな放射性核種に変換する可能性を持っているからである。しかし、最新のWHOの資料でもこのような線源を用いた昔の実験結果を掲載している¹⁷⁾。

2.2 ガンマ線源

X線は1895年レントゲンによって真空ガラス管中の放電で発生することが発見された。一方、ガンマ線は1900年フランス人ビラールによって、ウランの崩壊によって発生していることが発見された。ガンマ線とX線はどちらも物理的には極めて波長の短い電磁波であり、紫外線の波長の短いもの (周波数 10^{16} Hzを境に紫外線からX線に呼び名が変わる) と考えられるが、物質との相互作用も紫外線とは大きく異なる。ガンマ線とX線は物理的には同一のものであるが、発生のメカニズムによって区別しているようだ。原子核内の核子のエネルギー状態の遷移により放出される光子をガンマ線と呼び、軌道電子の

表1 使用済み核燃料から出される放射線 (文献7 341頁)

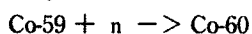
(日)	冷却期間出力分布 (%)			10^4 Ci		
	β	γ	β	γ	$\beta + \gamma$	
0	40	60	8,400	12,600	21,000	
1	40	60	10	15	25	
2	41	59	7.55	10.9	18.4	
5	42	58	5.3	7.3	12.6	
10	43	57	4.16	5.44	9.7	
100	50	50	0.7	0.7	1.4	
200	57	43	0.341	0.259	0.6	

エネルギー状態の遷移により放出される光子（特性X線）や荷電粒子が電場によって加速度を受けたときに放出する光子（制動放射）をX線という。

ガンマ線は物質の中まで貫通する性質があり、照射される物質の形状を問わないので、照射線源として理想的である。ガンマ線を出すものなら何でもよいわけではなく、一般に放射性元素の核から放出される放射線は単一であることは少なく、高エネルギーのガンマ線が放出されていたり、ベータ線のような別の性質を持った放射線を伴うことが多いなどの理由で、実際に食品照射に使える元素は限定されている。

X線やガンマ線などの高エネルギーの放射線は核に吸収されて、その原子を放射性の元素に変えたり、あるいは条件によっては中性子を放出し、物質を放射化することがある。1MeV程度のガンマ線は理論的にいかなる原子核を構成する核子と呼ばれる陽子と中性子の結合を切るには不十分なエネルギーしか持たないので、安全だとした。このような理論的な背景をもとに選定された放射性元素がコバルト60やセシウム137であった。これらから出るガンマ線を線源に使う限り（ γ, n ）反応を起こさないで、照射された食品は安全だとされ、食品照射に主に使用される時代が1950年代の後半から現在まで長く続いている。（実際には牛肉やベーコンをコバルト60で照射したときも、わずかな放射化が起こり、ベータ線が測定されたとの報告もある。）¹⁵⁾

背景にはアメリカエネルギー委員会(ACE)の政策があった。コバルト60は製造が容易で、安価に大量に供給できるので、Savannah River Plant, Hanford Facilityで1968年頃までACEが製造していた。



コバルト60は重水素原子炉の中に原料(コバルト59)を置いて中性子を照射するだけでできるが、効率よく製造するにはそれなりの施設が必要であることもあり、製造元は限られるようになった。このように経済的に見合うものであったことも使用が進んだ大きな要素であった¹⁵⁾。

2.3 電子線

電子線は天然にも存在し、ベータ線と呼ばれているが、ここでは人工的に電子を加速して得られるものを考える。放射性同位元素による放射線源と異なり、

人工的に発生させるために必要に応じて放射線を得ることができる。これは経済的にきわめて有利でコバルト60を線源とするよりもコストが低減できると考えられている。食品照射研究の早期からその導入が期待されてきた¹⁹⁾。

食品照射用に電子を加速する装置は巨大な真空系を必要とし、装置から発生するX線を遮蔽するために一つの建屋を必要とする位だ。図1に当時設計された電子線照射装置を示す。このような大きな装置を正確に作るには高度な技術を必要とするので、高価な装置ができて電子ビームが出ず稼働しないことが現在でもあるらしい。真空管内のフィラメントなどから出る電子を磁場に導き、これを引き寄せて、運動エネルギーを与え加速する。加速の方法に数種類あり、真空容器の中、円周に沿ってN極とS極を並べてメリーゴーランドのように電子を飛行させたり、リニアモーターカーのように直線的にN極とS極を並べた磁場を作り、その上に電子を走らせて加速する方法などがある。この効率は100%ではなく、一部の電子は失速し、その道筋を外れ金属製の筐体や磁場を作り出すために加速器内部に設置されたコ

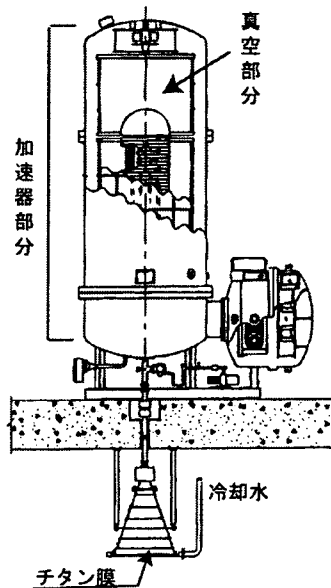


図1 電子線照射装置 (Natick 1957)

直線加速型のもので、下部のおおぎ型の部分から電子線が照射される。この図の最下部の面にチタン製の真空隔膜がある。ここで多量の熱が発生するので冷却水が必要である。(文献7の321頁)

イルなどに衝突する。このために高エネルギーの電子線の場合、不要なX線が発生する¹⁶⁾。一方、無事加速器の出口までたどり着いた電子は大きな速度を持つようになる。

加速された電子はチタン膜でできた真空バリアーを突き抜け、装置の外に導き出される。

電子線の透過力はその加速エネルギーに比例するので、加速電圧が大きいほど照射施設としては有利であるが、それが数 MeV を超えると電子線が当たった物質を放射化するのでむやみに高エネルギーの電子線を使うわけに行かない。食品国際規格基準（コーデックス規格）では上限を 10 MeV と制限している。

以上、経済的な効率性はコバルト 60 を線源施設とするよりも格段によいことは古くから知られていたが、著しく高速に加速された電子線は種々の核反応を食品中で起こす可能性があるだけでなく、施設の建設費が高価なことと装置が安定して作動しないことなどから、近年になるまで工場で稼働する装置は少なかった。

3. Natick の実験

放射能の測定方法を概観する。このあたりは一部の読者諸兄には釈迦に説法かも知れないが、Natick が実験した当時の方法を中心に簡単に説明する。

3.1 誘導放射能の測定方法

前述のように、ガンマ線は透過力が強いので、前処理が殆ど不要で測定が容易である。しかし、これは宇宙からの放射線や地球の持つ放射能などからの放射線の影響を如何に減らすかが重要な問題となっている。図2に示すような巨大な遮蔽容器の中に検出器が収納されている。この中に置かれた半導体検出器の中に試料を置いて測定する。

一方、誘導されるベータ線を^{8), 13)}測定するためには、そのエネルギーが低いため化学的な前処理を必要とする場合が多く、手間と時間が掛かることはやむを得ないのかもしれない⁸⁾。

測定手法にはつぎの4つを使った。括弧内は測定下限。

1. 前処理なし (数 p Ci/g)
2. 照射後、灰化しその残渣の放射能を測定する。(0.003 p Ci/g)

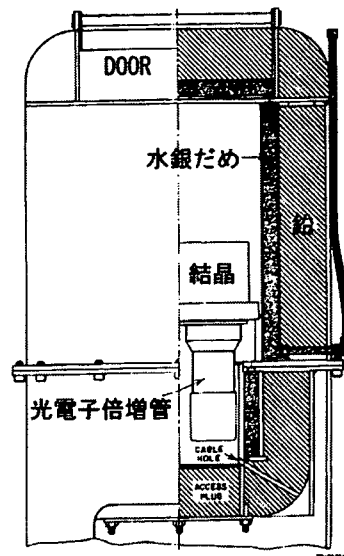


図2 γ 線測定装置 (文献8)

Natick で実測データを測定するのに用いたもの。

3. 既知量の元素を添加してから照射を行う。(10⁶p Ci/g)
 4. 食品中に知られている微量元素の水溶液を用いる。(10⁶p Ci/g)
- 3, 4は誘導放射能の最大量を知るために使う手法である。

3.2 測定核種

測定器にかかる核種のみを測定している。これには2つの意味合いがあって、生成量が少ないものはもちろん測定できない。しかし大量に生成したとしても半減期の短いものは測定するまでに減衰し、実際に測定できる量は少なくなるので、照射現場から測定装置に乗せるまでの時間が問題となる。その分だけ、どれくらい生成したのか不確定の要素が多くなる。

測定器の測定可能なエネルギー範囲は核種のもつエネルギー範囲と一致していなくてはならないので、あらかじめ生成核種を想定できなくてはならない。また、ベータ線の場合核種によっては灰化したり、イオン交換樹脂によって精製したりしないと測定ができない場合もあり、半減期の短い核種は測定が難しくなる。このような問題を解決する方法が前項の3, 4の手法であった。

3.3 照射エネルギー

Natick のガンマ線照射による放射化の実験は 4, 8, 16, 24 MeV の X 線を使用して実験をした。ここにはデータを示さないが、もちろん高エネルギー、高線量になるとそれだけ、誘導させたガンマ線の放出が多くなる。

電子線照射の試料は多くの場合 8 ~ 24 MeV の照射を行い放射化を確かめた。反応断面積の大きさは電子線のエネルギーと共に変化するが、11 ~ 21 MeV の巨大共鳴領域をさけ、25 MeV を最大とした。種々のエネルギーで照射実験が行われたところ、実際には 15 MeV を超えてようやく誘導放射能が観測する場合もあった。

4. Natick の結果

4.1 電子線照射によって生じた中性子関連の核反応と食品の元素組成

図 3 は電子線のエネルギーを 12, 14, 18, 20 MeV と変化させながら、ハムに 5M rad (50kGy) 照射し

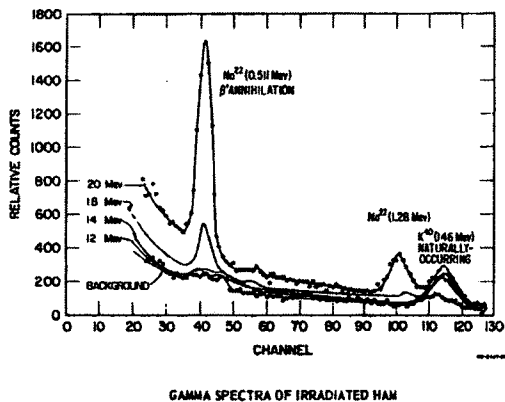


図 3 γ 線測定結果 (文献 9)

いくつかのエネルギーで照射した試料について、 γ 線スペクトルを測定した。

たとき誘導される放射性核種の測定結果を示す。実験的に観測されるのは $\text{Na}^{23}(n, 2n)\text{Na}^{22}$ 反応と $\text{Na}^{23}(n, \gamma)\text{Na}^{24}$ 反応で生じるナトリウム 22 と 24、天然のカリウム 40 が見られる。ナトリウム 22 と 24 はベータ線を出して、それぞれ安定核のネオン 22 とマグネシウム 24 になる。この時に放出されるベータ線を観測して、それぞれの核種を決定している。電子の加速エネルギーが大きくなるとそれだけ誘導される放射能が大きくなることが分かる。

表 2 は 24MeV の電子線を鶏肉に 5Mrad (50kGy) 照射した時の実験結果で、ベータ線を出す核のデータをまとめた。リン 32 は $\text{P}^{31}(n, \gamma)\text{P}^{32}$ 反応などで生成するが、生成反応はこれ一つでは無くイオウ 32、塩素 35 なども親核となる。カルシウム 45 は主に $\text{Ca}^{44}(n, \gamma)\text{Ca}^{45}$ 反応で生成する。リンとかカルシウムは丸ごとの鶏には大量に存在するから検出できたと考えられる。

表 3 は牛肉に 24MeV の電子線を 5M rad 照射したとき生成する短半減期の核種である。反応については反応断面積の関係から、熱中性子が直接関与したようには考えらず、炭素 11 は $\text{C}^{12}(\gamma, n)\text{C}^{11}$ 反応で生成すると考えられる。閾値は 18 MeV である。N14 (γ, n)N13 反応の閾値は 10.5 MeV で、O16 (γ, n)O15 は 15.5 MeV である。24 MeV の電子線であるからこのような反応が起きる。これらの生成核は陽電子崩壊をして、それぞれの安定核になる。

表 4 は Natick が自他の実験結果を集めたもので、

表 3 24MeV 電子線照射食品中の短半減期核種 (文献 9)

同位体 (半減期)	pc/gm beef/5Mrads $\times 10^6$
C-11 (20m)	0.36
N-13 (10m)	0.16
O-15 (2 m)	0.44

半減期 1 時間以内の半減期ものが観測された。

表 2 24MeV 電子線照射鶏肉中の誘導放射能 (文献 9)

初期値	半減期	pCi/gm of chicken/5Mrad 照射
Na-24 (+K42)	15hr	8.5 \pm 1.7
P-32	14.3h	0.14 \pm 0.02
(Ca-45)	(160d)	(0.02 \pm 0.01)
Na-22	(2.6y)	0.20 \pm 0.06

ベータ線の放出は P-32 が主体で、数ヶ月続いた。

燐やカルシウムの放射能が予想よりも高いのは鶏肉だけを測定したためである。

表4 電子線照射食品中に見いだされた核種 (文献9)

核種 (半減期)	肉	魚	野菜	果実
24MeV Na-22 (2.6y)	0.19	0.5	0.008	0.03
P-32 (14.3d)	0.14	—	—	—
P-33 (25d)	0.3	0.09	0.22	0.003
S-35 (87d)	0.003	0.01	0.001	0.0002
Ar-37 (35d)	0.09	0.08	0.07	0.08
Ca-45 (164d)	2×10^{-5}	12×10^{-5}	6×10^{-5}	0.9×10^{-5}
V-48 (16d)	—	—	—	—
Cr-51 (27d)	3×10^{-5}	—	—	—
Mn-54 (291d)	0.0004	0.0016	0.0017	0.0001
Fe-55 (2.7y)	0.0014	0.011	0.004	0.0014
Fe-59 (45d)	2×10^{-6}	—	—	—
Zn-65 (245d)	0.06	0.002	0.01	0.003
I-126 (13.3d)	0.0057	—	—	—
天然 K-40 (1.3×10^9 year)	3.0	2.6	53.0	0.8
18MeV Na-22	0.012	0.1	0.01	—
K-40	24MeVと同じ			
Zn-65	24MeVと同じ			
その他	測定限界以下			
12MeV Na-22	存在せず			
その他	測定限界以下			
8MeV	すべて12MeVと同じ			

8～24MeVの電子線照射の結果をまとめてある。生成量は少ないが種々の放射性元素が生成した。反応断面積が比較的大きく、親となる元素の食品中の量を考え、24MeVの電子線ではP32(n, γ)P33, S33(n, p)P33, Cl35(n, p)S35, Ca40(n, α)Ar37, Mn55(n, 2n)Mn54, Fe56(n, 2n)Fe55, Fe54(n, γ)Fe55, Zn64(n, γ)Zn65, I127(n, 2n)I126反応などが推定される。また高エネルギーの電子線の結果なので、たとえば、I127(γ , n)I126反応などの(γ , n)反応も含まれている可能性がある。反応中には α 粒子、あるいはさらに多くの中性子が発生することも想像される。一方、この報告では12MeV以下での誘導放射能の生成は検出できなかった。

4.2 照射電子線のエネルギーと誘導放射能

図4はハム、牛肉に12～29MeVのエネルギーの電子線を5Mrad照射した時に誘導されるナトリウム22の放射能である。元論文では種々の仮定に基づき理論的計算も行い、その結果をこの図に示している。前項で説明したように、吸収線量が同じで

も、電子線の加速エネルギーが大きいとそれだけ多くの誘導放射能を生じる。

ナトリウム22の誘導放射能の計算と実測とを比較し、ナトリウム含量が多いと計算と一致しているが、その含量の少ない牛肉では一致しない。図5は、豚肉ハム、牛肉に種々のエネルギーの電子線を5Mrad照射した時に誘導されるナトリウム24の放射能である。ナトリウムの量の多いハム中の生成量が多いことが分かる。

いずれの場合も、著しい量の誘導放射能の生成は10MeV以上においてのみ認められた。

4.3 電子線のエネルギー分布

電子線のエネルギーが線スペクトルではなく、比較的幅広い帯域を持っている。図6はその一例として、Millerらが、電子線による牛肉中の誘導放射能の測定を行ったデータを公表した際に用いたエネルギーの分布のデータを示した。特に上端が名目上の値を超えている割合に注意が必要で、10MeV電子線のエネルギーと誘導放射能を議論する際、名目上の

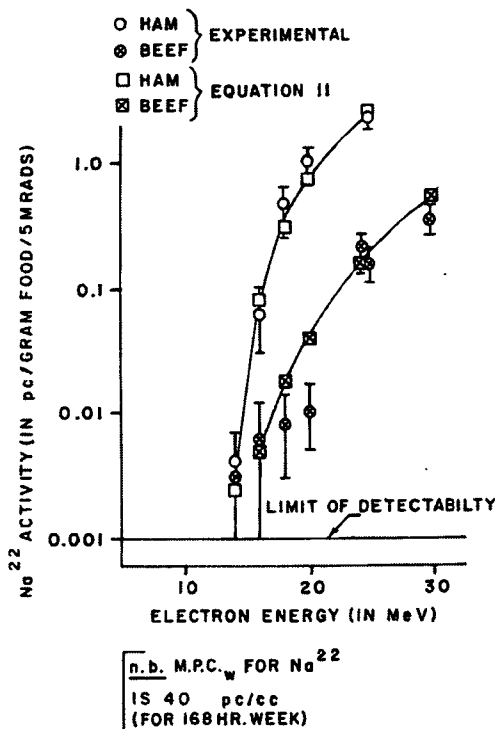


図4 照射食品中の Na22 の実測値と計算値(文献 8)
12MeV ~ 24MeV の電子線照射により Na23 (γ, n) Na22 の反応でできる。生成量とエネルギーとの関係を示している。

エネルギーを越えたこのあたりの核反応が考慮されていない。したがって、オーバードライブになっている電子線の量を極力おさえる必要があるだろう。どのように調整された加速器を使うかによって、放射化が異なることは論を待たない。

4.4 経時変化

表5に24MeVの電子線を牛肉に5Mrad照射後、その誘導放射能の減衰量を示した。誘導放射能は時間と共に減衰する。減衰量は半減期によって決まっており、生成核種によって異なる。長い半減期の核種は6ヶ月間ぐらいは観測できるようだ。この崩壊過程でどのような放射線が出てくるのだろうか。ナトリウム22は陽電子を出してネオン22に、リン33とリン32はベータ線を出してイオウ33と32に、鉄55は電子捕獲して特性ガンマ線を出しながらマンガン55に、垂鉛は電子捕獲と陽電子を放出して銅65に、ヨウ素126は電子捕獲して特性ガンマ線を出

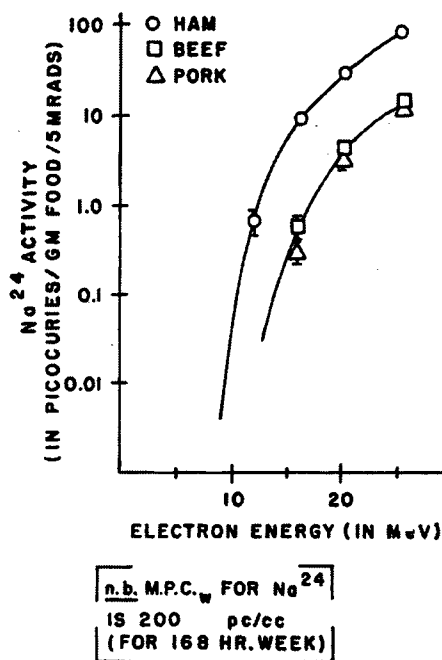


図5 照射食品中の Na24 の実測値 (文献 9)

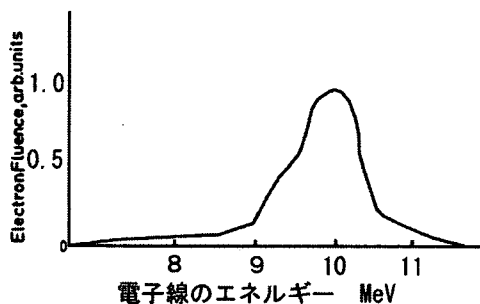


図6 10 MeV 電子線照射装置の電子線エネルギー分布 (Miller et al. : App. Radiat. Iso., 38, 507-512(1987))

しながらテルル126とベータ線を出しながらキセノン126に、イオウ35はベータ線を出して塩素35に変化し、安定核種となる。長い半減期の核種は繰り返し照射を受けると蓄積する恐れがある。

短半減期の核種は表2に示されているが、この半減期から計算して、24MeV電子線照射の場合には食品全体の誘導放射能のレベルが、バックグラウンドの量になるまでに6時間ぐらい必要だとしている。崩壊過程は1つでなく、電子捕獲をいずれもともなっているが、大部分の酸素15、窒素13、炭素

表5 誘導放射能の保存による減衰 24MeV電子線照射の牛肉について (文献9)
(単位は pc/gm of beef/5Mrad)

核種 (半減期)	0	1	2	6	12 (月)
Na-22 (2.6y)	0.19	0.19	0.18	0.16	0.15
P32 (14.3d)	0.17	0.04	0.008	0.0003	3×10^{-9}
P-33 (25d)	0.60	0.25	0.11	0.0048	2×10^{-5}
S-35 (87d)	0.003	0.002	0.002	0.0008	2×10^{-5}
Mn-54 (291d)	0.004	0.0004	0.0003	0.0002	1.6×10^{-4}
Fe-55 (2.7y)	0.011	0.011	0.011	0.010	9×10^{-3}
Zn-65 (245d)	0.004	0.004	0.003	0.002	10^{-3}
I-126 (13.3d)	0.007	0.001	0.003	10^{-6}	10^{-10}

11はそれぞれ 1.73 MeV, 1.19 MeV, 0.96 MeVの陽電子を放出して窒素 15, 炭素 13とホウ素 11になる。しかし, 当時の技術では 10MeV以下の電子線照射による誘導放射能は観測されていない。

4.5 包装材料の放射化

表6はブリキ缶に食品を入れ 24MeVの電子線照射した場合その容器がどれくらい放射化するかを調べた結果である⁹⁾。

スズ 117mはスズの同位体の内 24%を占めるスズ 118から, Sn118(n, 2n)Sn117m反応等によって生成する。生成核スズ 117mは半減期約 14日, 0.15MeV くらいのエネルギーを持つ 2本のガンマ線を放出し, 核異性遷移をして安定化する。ニッケル 57はブリキの主構成要素である軟鉄に含有するニッケルの異性体 58から複数の反応メカニズムで生成するものと考えられる。さらに, 長期にわたり核種不明の元素から, ベータ線が放出されるのは気になる。い

表6 ブリキ缶中の食品に 24MeV電子線照射したときの誘導放射能 (文献9)

同位体 (半減期)	放射能 (pc/cm ² /5Mrads)	tn
不明 (>15d)	0.6 ± 0.2	—
Sn-117m (14 d)	1.2×10	190d
Ni-57 (36h)	9.9×10	24d
Cu-64 (12.8h)	2.7×10^2	7.5d
Mn-56 (2.6hr)	5.6×10^3	3d
Sn-123g (40m)	6.1×10^2	9h
Fe-53 (8 m)	1.4×10^5	3h

a: 缶詰の面積は 924cm²

b: tnは検出下限 (0.001pc/gm) を割り込む日にち。

c: 不明の核種は長半減期のベータ線を出す。

ずれにしても, 缶詰の缶は 24MeV電子線照射により比較的長期にわたり放射能を帯びることになる。さらに, スズ 117mやニッケル 57の生成過程には中性子を生成する反応を含むことが考えられるので, ブリキ缶中の中性子量は他の包装に比べて多くなる事が予想される。

表7はアルミ缶に電子線 (24MeV) を当てたときの結果である。アルミニウム中の金属と反応して放射性物質を与える⁹⁾。アルミ自体も高エネルギーの電子線で照射すると放射化が起きるがこの実験では報告されていない。ここでは不純物の銅 62と 63が Cu63(n, γ)Cu64反応と Cu63(n, 2n)Cu62反応で生成する。これらは電子捕獲とベータ崩壊を起こして安定核になる。この結果は高エネルギーの電子線照射を行うと, 純度の悪いアルミ缶はかなりの程度放射化が起こることを警告している。

表8はプラスチック製の包装材料を 24MeVの電子線を照射したときのデータである⁷⁾。炭素 11は C12(γ, n)C11反応で生成し, 電子捕獲をして特性ガンマ線を放出して安定核に至る。塩素 34mは Cl35(γ, n)Cl34m反応で生成その閾値は 9.95MeVである。10MeVの電子線がそのままのエネルギーで X線に変換されると現在の照射施設でも生成する可能

表7 アルミ缶の食品に 24MeV電子線照射したときの誘導放射能 (文献9)

単位: 初期値, pc/gr/cm²/5 mrad

核種 (半減期)	2S	24S	75S
不明 (>1d)	none	none	none
Cu-64 (12.9h)	160	5700	1500
Cu-62 (10m)	8000	5.3×10^5	7.0×10^4

アルミ缶の品位は 2S がもっとも純度が良いとされている。

表8 24MeVの電子線でプラスチック包装中の食品に照射したときの誘導放射能 (文献9)

プラスチック	C-11 (20m)	Cl-34m (32m)	F-18 (1.7h)
PVC	0.057	0.088	None
Saran	0.059	0.054	None
Fluorothane	0.013	0.079	0.032
Others*	0.053	None	None

*Mylar, Polyethylene, Nylon, and Polystyrene

性がある。塩素は食品中に大量に存在するので十分留意が必要であろう。フッ素 18 は閾値 10.4MeV の F19(γ, n)F18 反応で生成し、主に陽電子を放出して酸素 18 になる。これらの結果は 24MeV の電子線での結果であるので、現在使用されている 10MeV 電子線の場合にはそのまま当てはまらないだろう。

4.6 電子加速器内部、その窓からの中性子の発生

加速器や照射食品を移動させるためのコンベアシステムは金属で構成されており、5~10MeVの電子線を照射すると、ここから多くの制動放射 X 線が発生する。また、真空系の隔壁にチタンのような金属が使われており、これからも X 線が発生する。この比較的高いエネルギーを持つ X 線と核が反応して中性子の発生源になっていることが知られている。

実際にどの程度の中中性子量なのか分からないが、実例として 10 MeV の医療用具滅菌のために商用運転している照射施設でシンチレーションサーベイメータで環境測定したところ、コンベア架台と床面でバックグラウンドの 10 倍程度の放射線量が認められた。このことは高エネルギーの電子加速器の

設備ばかりでなく、金属材料部品をもつ医療用具や食品容器、包装材に多くの留意が必要であることを示唆している。さらに、照射設備にはわずかであっても長半減期の放射性元素が蓄積する可能性が否定できず注意が必要とされている²⁰⁾。

4.7 ガンマ線・X線による励起ガンマ線の発生 (γ, γ') 反応

前項までは電子線・X線による核反応を問題にしたが、ガンマ・X線による直接放射化について述べる。表9に核アイソマーのデータを示す。エネルギーの比較的強いガンマ・X線を照射した時にできる誘導放射能である。

これは種々の核種を含む水溶液を X 線で照射し、その中に誘導される核種を分析したものである。この結果から普通の食品に含まれる元素は核異性体を生じないとされた。まして、ここに示された値以下のエネルギーのガンマ線を放出するコバルト 60 などの放射線は問題にされなかった。

しかし、時代が下って、コバルト 60 が出すエネルギーの比較的低いガンマ線でも、核種によっては吸収したガンマ線と似たようなエネルギーの放出が起こると理論的に考察されるようになる¹⁴⁾。

実際にインジウムやカドミニウムではそれぞれ 1.0 MeV, 1.4 MeV のガンマ線でこの反応が起こるとされている。多量のガンマ線を照射するとこの程度のエネルギーでも核子を励起し、照射停止後、ガンマ線を観測したとする論文もある²¹⁾。ストロンチウム、インジウムなどの化合物に 11kGy から 18kGy 照射したところ、(γ, γ') 反応が検出されたという。

表9 種々のエネルギーの X 線で照射したとき生成する核アイソマー (文献9)

核異性体	半減期	X線のエネルギー (MeV)			
		4	8	16	24
Sr-87m	(2.8h)	3×10^{-5}	5×10^{-4}	0.8	1
Nb-93m	(12y)	—	—	—	—
In-115m	(4.5h)	5×10^{-5}	9×10^{-3}	0.08	0.14
Te-123m	(104d)	—	—	—	8.8×10^{-10}
Te-125m	(58d)	—	—	—	2×10^{-8}
Ba-135m	(28.7h)	2×10^{-6}	2×10^{-4}	7×10^{-3}	0.02
Pb-204m	(67m)	2×10^{-7}	—	0.03	0.03
Hf-160m	(5.5h)	5×10^{-7}	6×10^{-8}	—	—
Hg-199m	(42m)	1.8×10^{-9}	3×10^{-2}	—	—

光子吸収の反応断面積は小さくても、吸収線量が10 kGyを超えるとこの反応が検出できるようになったのだろう。

5. Natick による安全性の検証

表10に示すように、Natick 研究所は24MeV電子線照射で誘導された生成核種とその半減期から、放出されるガンマ線とベータ線の天然カリウム40のそれと比較した。食品は牛肉で、この体内被曝について、天然カリウムに比べて少ない量なので安全であるとしている。当時でも、ヨードやプルトニウムが特定の臓器に集まる事が知られており、アメリカ原子力委員会のハンドブックに照らして、これらの核種については安全だとしている。これは1965年当時アメリカ原子力安全委員会の指針に従って安全性を見たものである²²⁾。

このNatickの報告に基づき、1984年IAEAが理論計算した結果を松山²³⁾は報告している。それによると食品中の94核種全体に対する光核反応の閾値は10.5MeVであること、10MeV電子線で32kGy照射直後は 10^3 Bq/kgであること、10MeV電子線照射により生成した放射性核種の体内での実効半減期は約10日であることを述べている。

6. IAEAの電子線照射の Good Irradiation Practice (文献5)

1. 電子線の照射エネルギーは10 MeV以下におさえること。
 2. 10.5 MeV以上のエネルギーをもつ電子の量を2%以下にすること。
 3. 照射場には中性子を発生する物質をできるだけ置かないこと。
 4. 熱中性子の量を1平方センチあたり、100000個以下になるように設計すること。
- などを提案している。食品そのものから放出される

中性子よりも周囲から出る中性子が重要だとしている。

X線照射についてはそのエネルギーに十分注意が必要で、 (γ, n) 反応を引き起こさないようなエネルギー範囲を守ることとしている。関係者の話を総合すると、これの対策は技術的に極めて簡単なので、この勧告に従うことに大きな問題はないが、経済的に採算が取れる範囲で実行できるかは、対象となる食品の価値次第である。

おわりに

多くの方々のアドバイスと協力によりこの小文は書き上げることができた。しかし、分りにくい点や勉強不足のために不正確な点があったとすれば、それは著者自身の責任である。ご指摘いただければ機会をみて訂正したい。

放射化の問題は照射食品を扱う上で避けて通れない問題である。なぜなら、食品の放射化は体内被曝に関連する問題なので、この分野の解明があつてはじめて消費者の理解が得られると考える。照射食品に好意的であれ、否定的であれ関心を持っている人々に誤解を恐れずに科学的に正確な知識伝え、理解を求めていくことが必要であろう。この技術を利用しようとする人々にとって、いささかでも参考になれば幸いである。

かねてより松山晃元本会会長からご指導をいただいていたが、今年6月に逝去され、成稿をご覧いただけなかったのは誠に残念である。ご冥福をお祈りする。

謝辞

基本調査資料はアメリカ合衆国農務省東部研究所フィラデルフィア研究所ソマーズ博士に提供いただいた。その他の資料についての検索・収集に当たっては、アメリカ合衆国農務省図書館(NAL)、コロラ

表10 カリウム40の天然放射能と24MeV-5Mrad照射牛肉中の誘導放射能との比較 (文献9)

	照射後の時間 (months)				
	0	1	2	6	12
全 γ 線量/K40	0.054	0.053	0.049	0.044	0.040
全 β 線量/K40	0.18	0.079	0.035	0.0046	0.0025

現在では天然のK-40が持つ放射能との比較だけで良いか議論がある。

ド大学ボールディ校 Norlin 図書館, デンバー市立図書館などの協力をえた。ここに記して関係各位に感謝の意を表す。

付 録

照射食品中で想定される核反応と発生する放射線理論計算

図7に示すように、照射装置から直接食品に当たって核反応を起こし放射化する第一次誘導放射化反応とその放射線が更に別の核と反応して放射化を起こす第二次誘導放射化反応とを便宜的に分けて考える。実際にも生成した核の放射線エネルギー解析を行って区別をつけることができる場合があるが、放射能という点では区別ができない。放射化を計算する上で、その放射線のもつエネルギーや衝突する元素の種類によって種々異なったパラメーターを用いる。一次放射化反応は照射線源のエネルギーや線量率、物質内での減衰などははじめから分かっているので、比較的モデル化し易い。しかし、二次誘導放射化反応となるとそれは簡単では無いようだ。なお、二次誘導放射化はエネルギーが低いこともあって、確率的に起こりにくい反応である。

1. 第一次誘導放射化反応その1 X線とガンマ線による原子核の励起(核アイソマーの生成)

この反応の概念を図8に示す。弱いガンマ線が原子核に吸収されると陽子のエネルギー状態が変化し、エネルギー的に高い状態になる。これが時間と共に安定状態になるとき、余分なエネルギーをガンマ線などとして放出する。このような反応は(γ, γ')反応と呼ばれる。“弱いエネルギーのガンマ線”

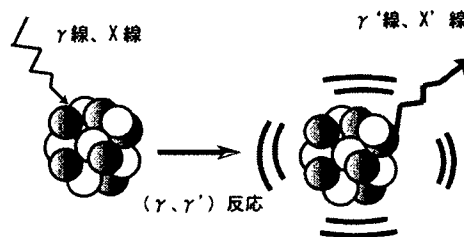


図8 X線γ線による励起

放射線のエネルギーが小さくて、陽子や中性子の結合エネルギーより小さな時に起きる。基本的には核反応は起きないが、照射後にガンマ線を放出し続ける。通常は短時間で放出が終わるが、数分以上続くことがある。これの反応断面積は数 nb。実験的に検出できた例としてはカドミウム 111 が知られている。

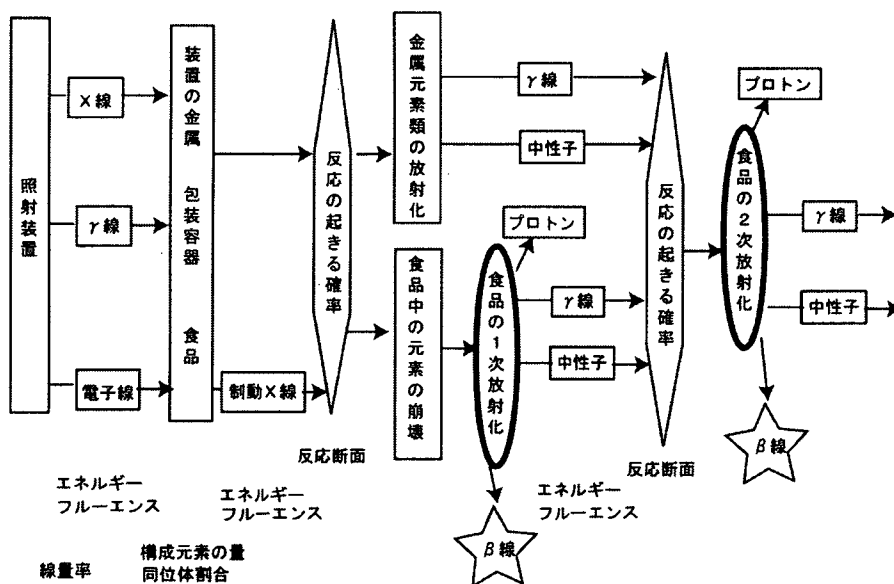


図7 計算に必要な要素

IAEAの文献などを参考に計算に必要なデータを列挙した。これらの要素は様々な実験から得られ数値を用いるものもあれば、理論的な考察から得られものもある。これらの計算に必要な基礎データとしてさきがけになった天道芳彦らの「放射線データ応用集」(原子力工業, 28巻5号)もある。

と曖昧な表現だが、これを吸収する核との相対的なエネルギーであるために何 MeV 以下を弱いガンマ線とは一概に言えない。

この反応による誘導放射能の量を計算するには食品中におけるガンマ線のエネルギーの減衰率と食品中に存在する元素に対する反応断面積が必要であろう。

2. 第一次誘導放射化反応その2 X線とガンマ線による核子の放出

この反応の概念を図9に示す。更に大きなエネルギーのガンマ線が原子核に吸収されるとそのエネルギーに応じて、核反応の (γ, n) 反応や (γ, p) を起こし、中性子やプロトンを放出し、放射性の元素を生成する場合がある。そのエネルギーの大きさは吸収する原子核種類により異なる。2~3MeVのような小さなエネルギーでも放射化が起きる核種もあるが、同位体の存在量の関係から一般的な物質では6.5MeV以上では問題になる場合があるという。

これらの反応は食品照射で用いるガンマ線では、ほとんど問題にならないが、X線照射では十分な注意が必要であるという。

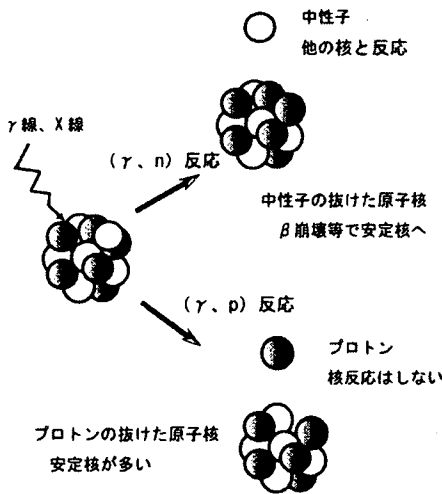


図9 X線 γ 線による中性子・プロトンの放出

放射線のエネルギーは中性子や陽子の結合エネルギーより大きくなると中性子やプロトンの放出が起きる。その反応の閾値と反応断面積は1960年代になり、正確な測定が可能になった。中性子放出の閾値は重水素、炭素13、酸素17で2.22MeV、4.95MeV、4.14MeVである。なお、これらから生成する核種は放射性ではない。プロトンの放出は重水素で10.54MeVである。

このようなX線やガンマ線が食品を構成している原子核を破壊する反応は比較的起こりにくいとされるが、食品に吸収されるX線やガンマ線のエネルギーとそれを構成する元素がそのエネルギーのX線やガンマ線に対して持つ反応断面積を正確に知って初めて放射化量が計算できる。

3. 第一次誘導放射化反応その3 電子線と物質との相互作用

この反応の概念を図10,11に示す。電子線のもっとも大きな作用は電離作用で、加速されて数MeVの運動エネルギーをもつ電子は軌道電子(数十eVの結合エネルギーを持つ)をはじき飛ばして、ほぼ同じくらいの運動エネルギーを与える。この様にはじき飛ばされた電子は次々と隣の原子の軌道電子をはじき飛ばし続け、ねずみ算のように電子の量が増え続ける。そして電離するエネルギーが無くなるまで、物質の中を移動し続ける。しかし、電離そのものは新たな放射能を誘導しない。

強力に加速された電子であれ、跳ね飛ばされた電子であれ、それぞれの電子は流れとなって物質の中を突き進む。これらの電子の流れが作り出す電場と磁場は原子核を励起して、陽子を中性子に、中性子を陽子に変換させたり、あるいは軌道上の電子を取り込ませたりする。この反応と平行して、原子核と相互作用して電子が減速し、余ったエネルギーを制動X線として放出する。電子が相互作用した原子核が重いほど大きなエネルギーのX線として放出する。つまり波長の短いX線を出す。単位面積あたりにこの制動放射X線が発生する量(反応断面積)は電子の運動エネルギーに比例する。

このように電子線の相互作用によって生じる中性子の量と制動放射X線量を可能な限り正確に見積もることが放射化の量を計算する上で求められる。電子線が直接引き起こす放射能と制動放射X線が引き起こす核反応の割合は照射される物質の構成元素とか、食品の形状と電子線照射方向の深さに依存している。表面付近では十分なエネルギーがあるので、核に直接作用して光中性子を発生し、表面から深くなるにつれて制動放射X線による光中性子の発生割合が多くなる。従って、単純に安全性を考えると、この厚さをどれくらいに想定するかによって、放射化の程度が異なることは容易に想定される

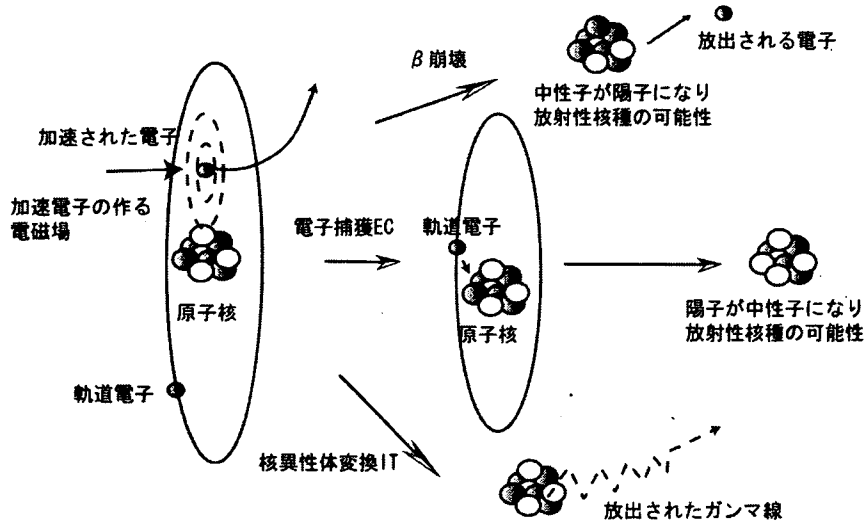


図10 電子線と核との作用

仮想光子の交換による (e, e'n) 反応や (e, e'p) 反応を起こし、中性子や陽子あるいはアルファ粒子を放出することがある。種々の反応が同時に起きるので、これらの作用は複雑だ。

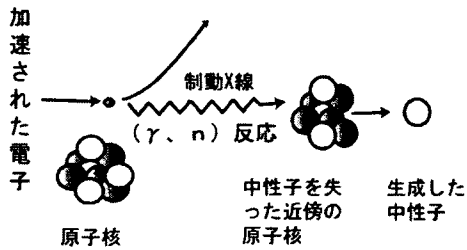


図11 制動放射X線と中性子の放出

このような反応で生成する中性子の量の推定は難しく、指数関数的な計算式が提出されている。(計算式: Becker R. L.: "A determination of the radioactivity induced in foods as a result of irradiation by electrons of energy between 10 to 16MeV", contract # RAAK60-78-R-0007, Natick Massachusetts, 1979. IAEAは種々の発生源からのNETで1cm²あたり1個としている。

だろう。しかし、この表面での反応を厳密に評価することが困難であることが多いようだ。

まとめると高速で運動する電子が原子核と反応すると、光中性子と制動放射X線が発生する。それぞれの生成量は加速された電子のエネルギーとその原子核の種類によって決まる反応断面積をもっており、これらのパラメーターをどれくらいに見積もるか重要である。

4. 第一次誘導放射化反応その4 壊された原子核の放射能

中性子、プロトンなどを放出し、破壊され残された核が放射性を持つか否かは生成元素の種類によるが、非放射性核種も少なからずある。新しくできた核種が放射性である場合、ベータ線を放出したり(β崩壊)、ガンマ線(IT)を放出して安定核種になり放射性を失う。

5. 第二次誘導放射化反応その1 (n, γ), (n, p), (n, α) など

この反応の概念を図12に示す。中性子が照射食品中に発生したあと、中性子は電荷がないので、原子核に近づきやすく、原子核と衝突する場合もある。衝突された原子核は種々の反応を引き起こすが、中性子の運動エネルギーによって、起きる反応が異なる。衝突された原子の多くは放射能を持つ。

熱中性子を含む低速中性子(1keVまで)は中性子捕獲(n, γ)やウランの(n, f)反応を引き起こすものとして有名である。中速中性子は1keVから500keVまでのエネルギーを持つもので、共鳴反応が起こりやすくなる。高速中性子は0.5MeV以上を指す。1MeVを超えると(n, p)反応や(n, α)反応が起こる²⁴⁾。

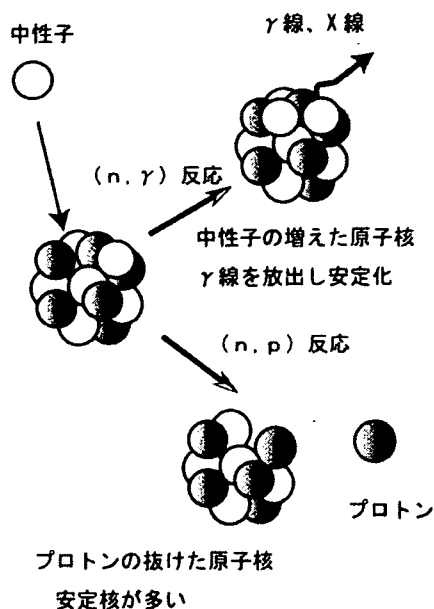


図12 中子と原子核との反応 (中子捕獲反応)
これは原子が関連の防護対策として重要なために、研究が進んでいる。

照射された食品中に誘導される放射能を見積もるためには、 (n, γ) 反応や光中性子で発生した熱中性子の数はもとより、そのエネルギーをどのように考えるかも大きな要素の一つになっている。これは誘導放射能を引き起こす確率(中性子の反応断面積)が大きく変化するからだ。

さらに、一つ一つの元素について、 (n, p) 反応、 (n, α) 反応が起きる閾値エネルギーを正しく知ってはじめて計算ができる。原子炉内ではウランの核分裂から出る中性子の速度を減速させて、このような反応が連続的に穏やか進行するよう、核分裂を制御している。放射線防護の観点から見ても、原子炉から出てくる中性子の反応する相手の元素は原子炉を作るときに決められ、冷却水中に生成する問題の起きそうな元素はイオン交換樹脂等で取り除かれ、原子炉内の置かれる物体や中性子の減速剤の元素構成や形状が常に既知のデータに基づいているから、モデル化ができる。

一方、食品中に含まれる元素は雑多でおかつ不均一に分布しているので、これらのデータが十分に分からない実際の食品の場合、多くの仮定や推定を置いて計算する必要があることは誰もが認めている

事実である。照射食品の放射化量の計算は通常の原子力の分野で取り扱う範囲外のようなのである。

中性子の反応性についてまとめたデータブックとしては村上ら²⁵⁾が有名で網羅的である。

6. 第二次誘導放射化反応その2 制動放射X線による中性子の放出

大きなエネルギーをもった制動放射X線は近くにある原子核に反応して (γ, n) 反応し、中性子の生成を促す可能性がある。中性子がこの反応による発生量を見積もることは食品の構成元素が既知で均一に分布するとすれば確率的に可能であるが、実際の食品を構成している元素の量と分布を正確に捉えて計算することは困難である。計算をするとき、これらをどのように考えるかによって、誘導放射能の量は変化する。

放出された中性子は前項で述べたように他核を放射化する。

7. モデル食品と中性子の発生量

照射ターゲットの食品についても、中性子量を計算するためには多くの想定が必要である。厚さは重要で、中性子発生層から核反応を起こす原子のある層までに存在する食品層は発生した中性子を減速し、反応しやすい低速な中性子に変化する働きを持っているので、どれくらいの厚さを想定して照射するのかにより、放射化の算定結果が異なると考えられている。

多くの理論計算では簡単にするために球形を想定しているようだが、実際の食品の形状とはかけ離れている。多くの照射食品は直方体であったり円筒であったりする。その形が円筒なのか直方体なのか、計算上考慮する必要がある。電子平衡や中性子の漏れなどの実際の反応に関与する放射線の量をどの程度に見積もるか算定要素になっている。

放射化される元素の選定はもちろん重要でその濃度と種類は食品ごとに大きく異なり、単純な1つのモデルで議論するには無理がある。Natickは数種類の食品について計算を試みている。しかし、多くの元素やアイソトープが含まれる複雑な系である食品について、それぞれについて丹念に計算することは困難で、IAEAは単純な標準食品について計算している⁵⁾。

8. 食品包装材と中性子の発生量

食品はそれを包む材料があって、初めて流通可能である。食品を包む容器に重金属が部材として使われたりするとそこに当たった電子線から制動放射 X 線が生じる。だから包装材料に重金属類がないことが大切で、缶詰のような鉄やスズでできていたり、プラスチックのコンパウンドや印刷用のインクにタングステンや鉛、カドミウム、マンガンなどが含まれていると中性子フラックスを増大させる要因とされているが、どこまでその影響があるのか分かっていないようだ。いずれにしても、食品の包装材料をどんなものに想定するかによって放射化の程度が異なるようだ。

9. 照射装置の性能と中性子の発生量

これも大きな要因であることは今までの論議を読まれておわかりのことであろう。加速電圧を調整して数種類の加速エネルギーを与えられる装置の場合、加速エネルギーの確認は重要で、オーバードライブにならぬよう細心の注意が必要である。たとえば目標値 10 MeV で電子線を加速するとき、その値が 5%ほど狂うと、多くの元素の放射化が起きる可能性があると考えられている。照射装置のエネルギーが正確に設定されていて、分布を持たないと想定したくなるが、この想定は現実的ではない。加速器から出てくる電子のエネルギーにはある程度の分布を持つとして計算する必要があるが、どんな分布設定にするのか計算者の恣意に任せられる。

IAEA の理論計算は実際の計測⁸⁾との結果におよそ 1300 倍少ない値をはじき出している⁵⁾。

文 献

- 1) 宮原 誠：照射食品安全性評価歴史(2) 照射魚介類中のボツリヌス菌について、*食品照射*, 39, 28-49 (2004)
- 2) 岩崎民子：知っていますか？放射線の利用，丸善，第 2 章，pp142-159 (2003)
- 3) 伊藤 均：食品照射の基礎と安全性，日本原子力研究所，JAERI2001-029, pp63-64 (2001)
- 4) Webb T. et al.: "Food irradiation who wants it?", Thorsons Publisher, Welling borough UK, pp.18-21 (1987)
- 5) IAEA: "Natural and induced radioactivity in food", IAEA-TecDoc-1287, Austria (2002)
- 6) 山田克哉：原子爆弾，講談社 (1996)
- 7) US. Army: "Radiation preservation of food", US. Government Printing Office, Washington, D.C. (1957)
- 8) Smith D.H.: "Radioactivities produced in foods by high-energy electrons", DA19-129-QM-1100 (1962)
- 9) Meyer R.A.: "Induced radioactivity in food and electron sterilization", US. Army Natick Laboratories (1965)
- 10) Becker R.L.: "Radioactivity induced in food by 10-MeV electron irradiation", DAAG17-76-0060, US. Army Natick Research and Development Command (1977)
- 11) Becker, R.L.: A Determination of the radioactivity induced in food as a result of irradiation by electron of energy between 10 to 16 MeV", DAAK60-78-R-0007, US. Army Natick Research and Development Command (1979)
- 12) National Radiological Protection Board: "Report on the radiological implication of irradiated foods", ANCIF, "Report on the Safety and Wholesomeness of Irradiated Foods" Appendix B (1985)
- 13) 武田篤彦，古田雅一：10MeV 電子線照射食品中の誘導放射能について，食品照射研究会，研究成果最終報告書，日本アイソトープ協会 (1992)
- 14) 橋爪 朗：ガンマ線による誘導放射能 (10MeV 以下の光核反応)，食品照射研究会，研究成果最終報告書，日本アイソトープ協会 (1992)
- 15) Jarrett Sr. R. D.: Isotope radiation sources, Josephson E. S., Peterson M. S., Ed. Preservation of food by ionization radiation Vol.1, Chap.6, CRC., Boca Raton (1982)
- 16) Kruger P. and Wilson C. R.: Study to determine neutron fluxes in food irradiation facilities, Quartermaster Food and Container Institute, Contract # DA-19-129-QM-741 (1960)
- 17) WHO: "High-dose irradiation; Wholesomeness of food irradiated with doses above 10kGy", WHO Technical Report Series 890, Geneva,

- pp.83 (1999)
- 18) Glass R. A. and Smith H. D.: "Radioactive isomer production in foods by gamma rays and X-rays" (1960)
- 19) Pomerants R. et al.: Sources of ionizing radiation, "Radiation preservation of food", Natikck, 1957 Washington D.C.; Borsa J. and Iverson S.L.: "Costs and benefits of grain disinfection and poultry and shrimp decontamination using 10-MeV electron accelerators", in "Cost-benefit aspects of food irradiation processing", IAEA, Vienna (1993)
- 20) 加藤和明: 加速器施設における放射化物の生成とその安全取り扱い, 日本アイソトープ協会 (1994)
- 21) 橋爪 朗 他: Co-60の大線量 γ 線照射によるアイソマーの励起と食品照射, 第36回理工学における同位元素・放射線研究発表会要旨, 日本アイソトープ協会 (1999)
- 22) 松岡 理: 放射性物質の人体摂取障害の記録, 日刊工業社 (1995)
- 23) 松山 晃: 世界における食品照射の現状と課題, 食品衛生研究, **36(6)**, 7-18 (1986)
- 24) 中村尚司: 放射線物理と加速器の工学 第2版, 地人書館, pp319 (2001)
- 25) 村上悠紀雄 他: 放射線データブック, 地人書館 (1982)

(2006年8月1日受理)

原 著



非照射香辛料に混合した照射香辛料の熱ルミネセンス法による検知

後藤典子, 山崎正夫*, 関口正之*, 等々力節子**, 宮原 誠***

東京都立皮革技術センター

131-0042 東京都墨田区東墨田 3-3-14

*地方独立行政法人 東京都立産業技術研究センター

158-0081 東京都世田谷区深沢 2-11-1

**独立行政法人 農業・食品産業技術総合研究機構食品総合研究所

305-8642 茨城県つくば市観音台 2-1-2

***国立医薬品食品衛生研究所

158-8501 東京都世田谷区上用賀 1-18-1

2006年9月20日 受理

照射香辛料と非照射香辛料を混合した混合香辛料を、黒コショウとパプリカについてそれぞれ5検体ずつ作製した。5.4 kGy 照射した黒コショウを2% (w/w) 混合した混合香辛料では照射による発光極大が認められなかった。照射したものを5又は10% 混合した場合は、「照射」、「一部照射」、「どちらでもない」と判定された。照射したものを20% 混合したすべての試料は「照射」と判定された。5.0 kGy 照射したパプリカを5.0% 混合した混合香辛料はすべて「照射」と判定された。照射試料を0.2% 以上混合したものは、すべての試料では150～250℃の範囲に発光極大が認められた。

以上の結果では、スパイスの種類によって「照射」と判定できる混合割合が異なることを示した。TL発光量の積算温度範囲を70～400℃とTLD100に基づく約150～250℃に近い範囲にすると、TL発光比は後の方が低くなるが、「照射」と判定される試料はほぼ同じ判定であった。放射線を照射していない黒コショウとパプリカに紫外線を照射しても、放射線を照射したと判定されることはなかった。

Key Words : blend, spice, thermoluminescence, black pepper, paprika, temperature range for integration, ultraviolet ray irradiation, γ ray irradiation

1. はじめに

海外では三十数か国で食品の殺菌や発芽防止のために放射線の照射が行われている。食料の多くを輸入に依存している我が国では、未許可の照射食品が輸入されることを防止するため、検疫所では書類での審査を行っている。しかし、輸入食品そのものを検体とした照射食品の検知法が確立されていない現状においては、国内に照射食品が流通するおそれがある。国内の市販食品について実施された予備（先行）調査によると、照射の疑いのあるものも報告されてお

り^{1),2)}、検知法の確立は重要な課題である。

一方、国内においては2000年12月に全日本スパイス協会から、香辛料への放射線照射の許可について国へ要請が出されている。また、2005年12月から原子力委員会の食品照射専門部会において、食品照射に関する現状等について調査・審議が行われ、2006年7月から香辛料の殺菌のための放射線照射を認める報告書案をまとめている。今後、ジャガイモ以外の食品への照射が認められた場合、「照射済み」の表示とその厳格な管理を行う手段としての検知法の確立が必要である。一方、食品関連企業において

コンプライアンスの重要性が認識された昨今、取り扱う食品が照射されたものであるかどうかについて関心は強い。

香辛料の場合、国際的には照射したものと非照射のものが流通している。食品の流通段階で、非照射食品に照射食品が混合あるいは混入するケースも予想される。照射食品と非照射食品が同一の種類である場合と、異なる場合（香辛料が混合されたカレー粉など）が想定される。

光ルミネセンス法では、非照射試料に照射試料を混合しても、照射検知ができるとの報告³⁾がある。

熱ルミネセンス (TL) 法も、鉱物が付着している香辛料などの食品に適用できるので、検出精度の良い照射食品の検知法である。これまでの TL 法の研究^{4),5)}を基に、照射試料が非照射試料に混合している場合について、照射食品の混合割合と TL 法による照射の判定との相関、検知の限界を検討した。

なお、本研究では、複数の素材が混合された食品のうち、一つの素材だけが照射されている場合などを想定すると実験系が複雑になるので、1種類の素材に絞って照射品が非照射品に混入した場合を実験系として用いた。

また、殺菌方法として、放射線とエネルギーが近い紫外線を利用することも考えられるので、紫外線を照射した試料の TL 発光曲線の特性と照射判定への影響についても検討した。

2. 実験方法

2.1 照射試料の調整

黒コショウ (ホール)：海外で収穫後、殺菌が行われていないと推定されるものを輸入者から購入し、実験前に TL 法で放射線照射が行われていないことを確認した。この黒コショウの一部を 500 g に小分けし、厚さ約 2 cm にし、原子燃料工業株式会社で電子線 (10 MeV, 10 mA) を片面照射した。RADIACHROMIC 線量計 (Far West Technology 社製) で試料の表面・裏面を測定した線量の平均は 5.4 kGy で

あった。

パプリカ (粉末)：都内小売店で購入した同一ロットのビン詰めをピーカで混合攪拌して均一にし、実験前に TL 法で放射線が照射されていないことを確認した。このパプリカの一部を東京都立産業技術研究所の ⁶⁰Co 線源 (185 TBq) で 5.0 kGy 照射した。照射線量は、あらかじめ英国 National Physical Laboratory で校正したアラニン線量計及びセリウム線量計 (Ceric Cerous: Nordion 社製) で線量率を決定した位置に試料を置き、照射時間から算出した。標準化のために 1.0 kGy 照射した場合も同様である。

2.2 装置

- ・熱ルミネセンス測定装置：HARSHAW QS 3500
試料室：窒素ガス雰囲気 (2 L/min)
測定温度：開始温度 70 °C, 終了温度 400 °C
昇温速度：6 °C/s
- ・恒温槽 (50 ± 5 °C)
- ・遠心分離機
運転条件：1 000 G, 2 分間
- ・紫外線ランプ：東芝製 GL-15, 19 W

2.3 試薬等

- ・ポリタングステン酸ナトリウム (Sodium polytungstate: SPT) 溶液 (比重 2.0)
 $\text{Na}_6[\text{HW}_{12}\text{O}_{40}] \cdot \text{H}_2\text{O}$ 250 g を水 150 mL に溶かした。
- ・タングステン酸ナトリウム：試薬特級
飽和溶液
- ・塩酸：1 mol/L
- ・アンモニア水：1 mol/L
- ・アセトン：試薬特級
- ・TLD 100：HARSHAW 製, 直径 3 mm, 厚さ 0.3 mm
アニール方法：400 °C に保持した電気炉に 1 時間放置し、ただちに 100 °C に保持した恒温槽に移し、2 時間放置後、室温で保存した。
- ・黄砂：標準岩石 (CJ-2)

2・4 TL 測定試料の作製⁶⁾

電子線 (10 MeV) で 5.4 kGy 照射した黒コショウを, 非照射試料に重量比で一定割合加え, 合計 100 g とした。以下, 照射・非照射試料を混合したものを「混合試料」という。TL 測定には各混合割合 (照射黒コショウ含有率: 2%, 5%, 10%, 20%) ごとに 5 試料を測定した。各試料に約 200 mL の蒸留水を加え, 超音波浴に 15 分間入れた後, 125 μ m のナイロンメッシュ上で蒸留水で洗い, 洗浄液の沈殿を遠沈管に集めた。これに SPT 溶液 (比重=2.0) を加え, 有機物との比重差で鉱物を分離精製した。

パブリカは, γ 線で 5.0 kGy 照射したものを非照射試料に一定割合加え, 合計 4 g とした。TL 測定には各混合割合 (照射パブリカ含有率: 0.2%, 0.5%, 2%, 5%) ごとに 5 試料を測定した。各試料を飽和タングステン酸ナトリウム溶液に懸濁させ, 沈殿を別の遠沈管に移し, これに SPT 溶液を加え, 鉱物を精製した。

TL 測定用の試料皿は厚さ 0.2 mm のステンレス製で, 直径 6 mm, 縁の高さ 1 mm のものを用いた。

それぞれの試料から分離した鉱物を試料皿に採り, 50 $^{\circ}$ C で 16 時間アニール後, TL 装置で発光量 Glow 1' を測定後, 引き続き発光量 Glow 1'B (熱影響による発光) を測定し,

$$\text{Glow } 1 = \text{Glow } 1' - \text{Glow } 1'B$$

を求めた。その後, 発光量の標準化のために γ 線を 1.0 kGy 照射し, 50 $^{\circ}$ C で 16 時間加熱後, 再度発光量 Glow 2' を測定した。引き続き再度発光量 Glow 2'B (熱影響による発光) を測定し,

$$\text{Glow } 2 = \text{Glow } 2' - \text{Glow } 2'B$$

を求めた。TL 発光比は Glow 1/Glow 2 で求めた。

2・5 TL 測定における温度の確認

EN 規格 (1788:2001) では, TLD100 のピーク V (X $^{\circ}$ C) と VI (X+IS $^{\circ}$ C) の温度を基に規

定した温度範囲 [X-IS ($^{\circ}$ C) ~ X ($^{\circ}$ C)] で, 発光量を積算することを推奨している。EU の機関が実施した共通試料による研究室間試験⁷⁾⁻⁹⁾では, 全温度域 (本研究では 70 ~ 400 $^{\circ}$ C の範囲) で積算するより, 放射線照射に起因する発光と考えられるこの規定温度範囲で発光量を積算したほうが, 照射, 非照射の TL 発光比による判別が明確になるとの結論が得られている。そこで, 本研究で使用した TL 装置で TLD100 を 10 回測定し, この規定温度範囲を求めたところ 167 ~ 232 $^{\circ}$ C であった。

2・6 紫外線照射試料の作製

標準鉱物の黄砂 (CJ-2) は, 滅菌のために γ 線が照射されていたので, 400 $^{\circ}$ C で 2 時間アニールしたのち, 5 cm の距離から紫外線ランプで照射した。また, 非照射の黒コショウ 100 g 及びパブリカ 5 g をそれぞれバットに薄く広げ, 50 cm の距離から紫外線ランプで照射した。紫外線ランプから 50 cm の位置で, 220 ~ 390 nm の波長域の強度を測定したところ 0.28 mW/cm² であった。紫外線照射後, 容器に移しアルミニウム箔で遮光し保存したものについて, 混合試料と同様に鉱物を分離した。ただし, 1 試料から分離した鉱物を五つに分けて測定した。

2・7 判定基準

「照射」, 「一部照射」の判定は EU で公定法として制定されている EN 規格に従った。

TL 法を規定した EN 規格 (1788:2001) では, 照射の判定基準は「TL 発光比が 0.1 以上」かつ「150 ~ 250 $^{\circ}$ C に発光極大が認められること」としている。この基準を満たした場合に「照射」と判定した。なお, この規格の注記に「食品の一部が照射された場合は, TL 発光比が 0.1 未満でも発光極大は認められる。」とあるので, TL 発光比が 0.1 未満で, 発光極大が 150 ~ 250 $^{\circ}$ C に認められた場合は「一部照射」と判定した。