

表3 国際的な検討による検知法の必要性

年	内 容
1986 ^{a)}	国際的に統一された規制が必要なため 国際貿易上、照射食品の適性管理が必要なため 照射食品表示ラベルと出荷記録の信頼性向上のため
1990 ^{b)}	国家が照射食品を管理し、正しく表示させるため 国際貿易を容易にし、消費者の信頼を得るため
1991 ^{c)}	国家がある種の食品の照射を規制しやすくするため 国家が照射食品表示の法規制を実施するため 照射食品表示義務に対する信頼性を高めるため

a) IAEA, International Document on Food Irradiation, Proceeding of International Conference, Acceptance Control, and Trade in Irradiated Food, Geneva, Switzerland IAEA Vienna (1988) pp.135-143.
b) Swallow, A.J. "Need and role of identification of irradiated food", *Radiat. Phys. Chem.*, 1990, 35, 311-316.
c) IAEA (1991) Analytical detection methods for irradiated foods, IAEA-TECDOC-587, Vienna, pp.9

表4 技術的観点からの表示・検知法の必要性

目 的	理 由
二重照射の防止	Codexなどで禁止されている
保存条件の遵守	ボツリヌス中毒やアフラトキシンの回避
栄養成分の大きな変化の周知	非照射食品と異なった量になっている
誘導放射能摂取の回避	誘導放射能が減少するのを待つ
過照射・照射不良の回収	製品管理上の必要
有害照射食品の回避	危険性が指摘されている照射食品の取締り

の必要性と食品安全との関連が必ずしも明確でない。このため文頭で述べたように、なぜ、検知法が必要なのか疑問になるのだろう。

IV 検知法の必要性

食品を放射線で処理すると、そのときの吸収線量等条件によっては、温度上昇(1kgの食品を室温で、1kGy照射するとおよそ0.24℃上昇するといわれている)、色調の変化(おもに退色)、照射臭(炭化水素類の臭い)等が見られるが、一般の消費者にはほとんど気がつかない程度のものである。そのため、一般の消費者が購入したときは、表示がないと照射・非照射の判別がつかない。

照射食品の流通条件としてその表示が義務づけられた。いくつかの見解がIAEAなどから示され

ているので、表3にまとめた。このような抽象的な見解とは別に考えることも必要だろう。小売りなど流通の途中でそのラベルが剥がれてしまった場合、消費者は区別ができなくなる。さらに、照射バレイショのように、一つひとつの製品にラベルが貼れないものもある。あるいはシーズニングのように照射・非照射の香辛料を混ぜ合わせて、使用する場合もある。このような例の場合、検知法が必要になる。しかし、現在、アメリカにおいては表示不要とする請願が再三にわたり、審議されており、行方が注目される。

従来の科学研究から照射食品のもつ危険を回避するためには表示や検知法が必要であるとする立場から、どのような危険が具体的にあるのかを表4にまとめた。一つひとつに根拠の論文を示さ

ないが、前項の照射食品開発の歴史と安全性で示した文献で論じられている。

それぞれについて簡単な説明をする。

(1) 二重照射の防止

照射原料を使用した製品に殺菌等のために再び照射することをCodexは禁じているので、照射原料を加工業者が購入したとき、これを遵守するためには、照射食品であるか否か厳密に区別する必要がある。照射済みか否か不明な原材料を検知法で確かめてから使用することができる。

(2) 保存条件の遵守

殺菌した後、事故がない限り菌数が増える心配のない医療用具と異なり、照射後にわずかな取扱い上の不備があると、照射食品の場合、事故につながる危険がある。例えば、照射魚介類を残留ボツリヌス菌の増殖条件に放置しないために、表示は必ず必要である。同様に照射香辛料をアフラトキシン産生条件におかないためにも必要だ。

(3) 栄養成分の大きな変化の周知

照射するとビタミンなどの栄養成分は破壊されるので、これを通常の食品と違って食べ続けると栄養障害が起きることは米国陸軍の実験から明らかである。病人食、離乳食、登山携帯食、船内食などほかの食品を自由にとれない状況で、非照射食品と誤って、これら照射食品を摂取することは危険である。照射・非照射を区別することは必須となる。

(4) 誘導放射能摂取の回避

照射直後の照射食品は誘導放射能を帯びている場合があることがIAEA^{6,7)}やアイソトープ協会の報告書²⁴⁾でも指摘されており、体内被曝線量を減らすためには、照射処理後十分に放置時間を取る必要があるだろう。製造工程の管理とともに安全を確保するためには検知法が必要であろう。

(5) 過照射・照射不良の回収

照射食品の場合、殺菌等の照射効果が見られる

線量域と照射やけ等の照射障害を起こす線量域との差、すなわち、照射安全域が狭いので少しの照射ミスがあっても事故につながる危険がある。正確に照射した製品は室温に置いて、一般的に微生物学的に照射食品は安全と考えられるが、照射不良の製品を室温に置くと微生物が繁殖してその危険が増大する。その反対に過照射があると、その中のビタミンなどの栄養成分が減少し、栄養障害をきたす場合がある。その典型例が照射飼料である。実際、ある外国の飼料メーカーは契約とおりの照射が行われたかを確認するために、飼料成分分析会社に依頼し、抜き取った照射飼料を分析し、照射線量の確認を行っている。照射挽肉を製造している会社でも通常の菌数検査を実施して確認を行っているようだ。

(6) 有害照射食品の回避

安全性の理由から、不飽和脂肪酸を多く含む食品のように、国際的に照射が認められていない一群の食品がある。これらの非照射食品を安全に流通させるために、検知法は必要不可欠だ。特にわが国のように、照射食品が原則的に禁止されている場合には必要とされる。

このようなことから直接検知する方法の存在は、消費者の要求に応えるだけでなく、照射食品の品質や非照射食品に対する信頼を高めるために必要不可欠との認識が生まれる。つまり実際に照射食品が流通している地域では、当初IAEAが考えていた“円滑な貿易のため”とは別の理由でも、検知法が必要とされているようだ。

以上まとめると、①消費者の食品選択権の保証、②流通管理、③照射食品の品質保証、④消費者保護、⑤国による照射食品の管理などの目的で検知法が必要であると現在は考えられている。

V 照射食品検知法の国際状況

およそ、放射線で変化する成分があればどれで

表5 ヨーロッパ法の検出限界線量

分析法名	GC分析		ESR法		TL法	PSL	DEFT/APC	コメトアッセイ	
EN番号	1784	1785	1787	1786	13708	1788	13751	13783	13784
検出対象	HC	CB	セルロース	骨	糖質	鉱物	鉱物	細菌	細胞
鶏肉	0.5	0.5		0.5					1
豚肉	0.5	1							
牛肉	0.5			0.5					
チーズ	0.5								
全卵		1							
小エビ						1			
マス				0.5					
アボガド	0.3								
パパイヤ	0.3								
マンゴー	0.3								
貝類							0.5		
生イチゴ			1.5						
乾燥パパイヤ					3				
乾燥ブドウ					3				
乾燥マンゴー					3				
乾燥フィグ					3				1
乾燥ショウガ								5~10	
ハーブ						6	10	10	
スパイス						6	10	10	
パプリカ			5					5~10	
黒コショウ								5~10	
カードモン								5~10	
シナモン								5~10	
タイム								5~10	
マジョラム								5~10	
バジル								5~10	
オレガノ								5~10	
ローズペッパー									1
アーモンド									1
ごま									1
大豆									1
ひまわりの種									1
ビスタチオ			2						

(kGy)

も検知法の対象となる。实用照射量を与えられた食品の中に生じる個々の変化はその不安定さも手伝って一見少なく、これを現在の科学技術をもってしても、これをとらえることは容易ではない。IAEAは食品照射技術の推進を図るなかで、検知法の技術開発を1980年代後半から進め、1991年

中間報告²⁹⁾をまとめ、1994年イギリスのベルファストの会議で最終的な枠組みを決めた。ここでは、照射食品の具備すべき要件などの技術的要件と具体的な試験法の候補、その後の試験法完成までの道筋が決められた³⁰⁾。

ここでは個別の試験法の概要を表5、6にまと

表6 ヨーロッパ

方法名 分析対象	GC分析				ESR法			
	HC		CB		セルローズ		骨	
	線量(kGy)	誤判定(%)	線量(kGy)	誤判定(%)	線量(kGy)	誤判定(%)	線量(kGy)	誤判定(%)
鶏肉	0.5~5.0	7.5	1~3	1			2~6	0
豚肉	0.8~7	2.6	1~3	0				
牛肉	0.8~7	2.7					2~7	0
チーズ	0.3~1	0.8						
全卵			1~3	0				
小エビ								
マス							2~7	1.9~6
アボガド	0.3~1	0.9						
パパイヤ	0.3~1	0						
マンゴー	0.3~1	6.1						
貝類								
生イチゴ					1.5~3	4.9*		
乾燥パパイヤ								
乾燥ブドウ								
乾燥マンゴー								
乾燥フィグ								
乾燥ショウガ								
ハーブ								
スパイス								
パプリカ					5~10	1.5		
黒ゴシヨウ								
カーダモン								
シナモン								
タイム								
マジョラム								
バジル								
オレガノ								
ローズベツパー								
アーモンド								
ごま								
大豆								
ひまわりの種								
ピスタチオ					2~7	20.2		

*判定不能を含む **記載なし

め、検出限界を同時に示した(同様の表はすでに他誌^{31, 32)}に掲載したが、重要なので最新版に訂正し再掲する)。これらの試験法が適用できる照射食品の範囲は原則としてこの表に示す食品に限られる。この表からもわかるように、1つの試験法が適用できる範囲はきわめて狭い。これらの試験法と試

案の実用性を検証した線量域を示したのが表6である。これは、実用性を検証する実験で、取り扱われた線量で、実用的に検知できる線量を示している。EN規格による試験法は、1機関が作成したもので、それを用いて得た試験結果はその試験を実施した機関の責任とされている。その後、

分析法の評価

ESR 法		TL 法		PSL		DEFT/APC		コメットアッセイ	
糖		鉱物		鉱物		細菌		細胞	
線量(kGy)	誤判定(%)	線量(kGy)	誤判定(%)	線量(kGy)	誤判定(%)	線量(kGy)	誤判定(%)	線量(kGy)	誤判定(%)
								1~5	7.4
								1~5	7.4

		1~2	1.6						

				0.5~2.5	0				
0.5~7	1.6								
0.5~7	6.3								
1~5	0								
1~5	1.1							0.2~5	**
						5~10	**		
		6~11	0.9	10	14.2*	10	**		
		6~11	0.9	10	14.2*	10	**		

						5~10	**		

						5~10	**		
						5~10	**		
						5~10	**		
						5~10	**		
						5~10	**		
						5~10	**		
						5~10	**		
						5~10	**		
								0.2~5	**
								0.2~5	**
								0.2~5	**

								0.2~5	**
								0.2~5	**

Codex 分析・サンプリング法部会^{33, 34)}は表 5 に示す方法のうち、ESR 法の 2 つと HC 法、TL 法をその用途に合わせて評価し Type II の試験法とし、CB 法だけを Type III 試験法と評価した。この Type II の分析法は参照試験法と呼ばれ、正式な試験方法 (Type I) がないときに用いる方法で、その数値

は紛争時の議論の対象 (dispute) として用いたり、測定値として用いることができる。Type III の方法はその正確性、回収率、選択性、応用範囲の広さ、測定範囲、直線性等が目的に適っているが、規制、検査、行政的な目的に限って用いることができる。その後これら 5 つの方法は一般分析法として採用

された。

試験結果はそれを試験した機関の責任であることには変わらない。これらの照射食品分析法はもとの吸収線量を測定できないので、定量的な取扱いはいえず、定性分析法としてその地位が認識されている。

さらにその結果の解釈についても、照射食品であることは検知の結果が陽性であることの必要条件で十分条件ではない。つまり、「検知結果が陰性であっても、その食品が照射されていないという証明にならない場合がある」ことが、Codexでも指摘されている。したがって、照射食品の国家レベルの管理には照射記録等も必要となるだろう。

本稿ではこれらすべての試験法の原理・その特徴を説明するだけの紙面はないので、以下、現在話題となっている検知法について述べる。

VI わが国の照射食品検知の現状

前述のように、わが国では照射バレイショだけが認められているため、一般の検知法についての行政的な必要性が希薄であった。しかし、2002年から2003年にかけて東京都が実施した照射食品に関する市場調査³⁵⁾により、照射が疑われる食品が見つかった。2005年から厚生労働科学研究が始まった。輸入香辛料を対象に熱発光法(以下TL法)の試験法完成を目指した。公定法の開発手順³⁶⁾は、たたき台になる試験法の開発、これを追試する試験、数カ所の試験研究機関が共同でこれを確かめる試験などが含まれ、その開発には多くの確認作業が必要とされている。この一見無駄のように見える種々の研究は重要で、ひとたび公定法となると誰でもどこでもその試験法が再現されなくてはならないからだ。その試験法のなかに再現性の悪い原理、きわめて特殊な技術、高度な熟練が必要であってはならないとされている。

TL法の開発^{37, 38)}においても、これらの観点か

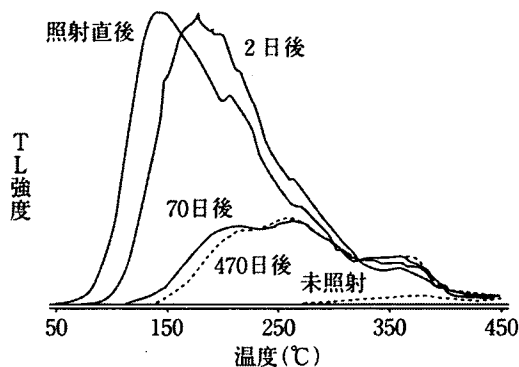


図1 黒コショウのTL曲線の経日変化

ら精査し、東京都立産業技術研究所の後藤典子主任はヨーロッパの方法を修正し、より簡便で、再現性を高める工夫を行い、原案を作成した。これを受けて、著者らは実験室内外の再現性を検討した。この過程で問題となったのは試料から採集できる鉱物等で、その検討を通じて、試験法の弱点の補強を行った。

TLの原理はケイ酸塩など電気の伝導性の悪い物質に照射線を当てると、その物質がイオン化しても、自由に電子が移動できないために、電子と電子孔(Electron Hole)が対になって生成し、それが物質内に捕捉される。これを加熱して、この電子が自由に動けるだけの運動エネルギーを与えると電子はその捕捉された場所から移動して電子孔に捕捉され、光を放出する。この光を温度上昇の関数として観測する。原理的には鉱物質の埃さえついていけば、どのような試料でも検知可能である。

実際にはサンプルに付着している結晶性の鉱物分をポリタングステン酸塩溶液で抽出し、これを暗箱中で490℃まで加熱する。その際に照射された鉱物は発光(G1)するのでこれを測定する。次いで、発光量の標準化のために1kGy照射し、再度温度を上げて、発光を測定(G2)する。G1/G2の比から照射の有無を判定する。測定例を図1に示す³⁹⁾。標準照射のために、高価な照射装置が必要

である。幸い、放射線利用振興協会、原子燃料工業などの優れた照射技術をもつ委託先がある。

ヨーロッパで照射・非照射の判定に用いる TL 比については、その再現性が悪く、判定の基準には用いることができないことがわかり、その代わり、G1 測定時の発光極大の温度 (T1) で判断することにした。T1 は照射後の時間の経過とともに高温側に移動していくように見える。しかし、これは実際には移動するのではなく、低温側のピークが消失し、高温側のピークが残留するために、そのように一見見るとされる。図 1 より、1 年以上経って 250℃ 付近で T1 の移動は止まり、それ以降、大きな変化は観察されないことから、明確に T1 を観察することを照射試料の判定基準とした。一方、自然放射能の影響で、非照射の試料においても T1 を観測する場合もあるが、発光強度、T1 の温度などで、人工的に照射されたものかは明確に区別がつく。TL の強度は照射後経時的に弱くなるが、1 から 2 年は測定が可能とされている。

発光量は含まれる鉱物成分に依存するので、常に一定の発光量が得られるわけではない。特に産地等の影響を受けやすいといわれていた。しかし、実際に検討すると実験に供した試料では単位重量あたりの発光量に大小はあるものの、発光曲線は

明確に得られた。

香辛料の付着物を分析しているので、ブレンドされるなどして、非照射のものと照射のものが混合されると判定が困難になるが、5% 程度の照射香辛料添加の粉末試料でも検知できた⁴⁰⁾。イギリスでは G1/G2 比が 0.1 以下で、T1 で低温域 (150~250℃) の発光が観察されると照射、未照射のブレンド品であると判定してもよいとしている⁴¹⁾。しかし、科学的な根拠が現在のところ示されていない。

原理的に清浄なサンプルは検知できないが、市販の 40 余りの試料について必要量の鉱物が採集できるか知るために、1 試料につき 2 回分析したところ、8 割程度の試料についてはそれが可能であった。

このような検討から、現在 TL 法は通知法となっている¹⁾。

TL 法を補助する方法として PSL 法 (Pulsed Photostimulated Luminescence) が開発され、スクリーニング法として Codex に採用されている。

この方法は赤外 LED などを光源としてきわめて強い近赤外光を試料に当てると、放射線照射されたサンプル中の鉱物分が発光する現象を利用する。本法は加熱を要しないので、香辛料などは前処理

〈最新刊〉

平成19年
改訂版

HACCPシステム実施のための資料集

HACCPを検討・確認する資料の集大成!
最新の情報を加えた、価値ある一冊です。

【収録内容】 I HACCPシステムの概要 II 主な食中毒微生物の疫学的特性
III CODEX資料 IV 主なHACCPシステム関連の法令、通知等

● A4判 196 ページ ● 定価 3,150 円(本体十税) ● 送料 450 円

社団法人 日本食品衛生協会

表7 PSLの信頼性

食品名	サンプル数	表示違反数	採取り検体数	PSLの誤陰性検体数 ^{a, b)}
ハーブ・香辛料	203	1	20	0
健康食品	138	58	8	5
小エビ	202	1	18	3

a) PSLで陰性と判定された検体について、TL法で再試験をし、その結果が陽性であった検体の数(PSLが与えた偽りの陰性判定の数)。

b) 今回の検査で、香辛料の試料にはもともと照射された陽性検体が203検体全体で1つしかないのだから、全部が非照射の試料といってよい。これからランダムに採取した20個の試料は非照射試料である。これをTLで調べて、すべて陰性の試料であったことを確かめても、“PSLの判定には偽りの陽性がなかった”ということを証明しているに過ぎなく、陽性試料を正しく判定できる能力を示す証拠にはならない。したがって、この結果をもってPSLが照射・非照射の食品を正しく判定できるとの結論は得られない。

なしで測定が可能である。判定はバックグラウンドの発光量よりも多く、本試験法が与える閾値よりも大きな発光を観察したときとする。

この試験法の問題点は試料容器などバックグラウンドの大きさが試料ごとに変化したり、あるいは付着量物量が増減するなど、測定効率が常に変化することにもかかわらず、判定基準の値は一定であり、それを試験法が与えている点である。しかも経験的にこの値を決めているので、個々の試料の判定に役立つか疑問である。また、PSLの発光はジオメトリの影響を受ける。保存中に明るい場所に試料を置くと、発光量が減少するので操作は暗室で行う。また、湿度の高いところで使用すると、励起光が試料に届く前に吸収され十分な励起ができないため、発光量が減少することも考えられ慎重な取扱いが必要だろう。そのほかの欠点はTL法と同じ。

これらを総合すると測定が迅速、コストがかからない、そして陽性の結果が出にくい検査機器である。

イギリス政府は照射食品のモニタリングを行っており、その調査と同時にPSLの検知能力も検討した⁴²⁾。表7にそのまとめを示す。この表からわかることはPSLの致命的欠点として、フォールスネガティブ(偽りの陰性)の結果を数多く与えた

ことである。PSLで未照射と判定された検体をランダムに取り出し、TLで再検査した。健康食品では実に63%がTLの検査なしでは誤って未照射と判定されたことになる。きわめて誤りの陰性が多い試験法だと言えよう。一方、未照射判定で100%的中した香辛料にPSLは十分適用できるとこの報告書はPSLを評価している。しかし、この結論は明らかにおかしい。

いずれの政府でも、偽りの陰性結果を多く与える試験法をスクリーニング法として用いることは通常しない。ここに示すように健康食品について6割もの偽りの陰性を与える検査法をスクリーニング法とは通常呼ばない。本報告書はPSLを明らかに過大評価しており、このような無理な結論を導く背景が気になりだ。しかし、ヨーロッパのモニタリングではこの装置が多用され、健康食品、インスタントラーメンなどの摘発に利用されている。

従来PSL検出用の機械はイギリス製のものしかなく入手が困難であったが、前述の内閣府食品安全委員会の報告書作成と照射食品専門部会に関わった人が関与し、新たに開発され、300万円程度でわが国でも市販されるようになった。新装置は励起光と発光との選択性を高めるために新規フィルター(特許出願中)を装備しており、イギリ

表 8 各種試験法の評価^{a)}

分析法名	GC 分析		ESR 法			TL 法	PSL	DEFT/ APC	コメント アッセイ
	HC	CB	セルロース	骨	糖質	鉱物	鉱物	細菌	細胞
検出対象									
技術上の評価基準									
a) 識別力	△	◎	○	◎	◎	◎	△	△	△
b) 特異性	×	◎	△	○	○	◎	○	△	△
c) 応用性	○	○	△	○	○	◎	△	△	○
d) 安定性	○	○	×	○	△	○	△	△	△
e) 頑健性	○	○	△	○	△	○	△	△	△
f) 独立性	○	○	○	○	○	○	○	○	○
g) 試験室内再現性と試験室外再現性	○	△	△	○	○	○	○	△	△
h) 精密性と適切な統計的な評価	○	○	△	○	○	○	○	△	○
i) 感度	○	△	○	◎	△	△	?	○	△
j) 吸収線量依存性	○	○	○	◎	○	○	△	○	○
実用性の評価基準									
a) 簡便性	△	△	○	×	○	×	◎	○	○
b) 費用	△	△	△	△	△	×	△	◎	◎
c) サンプル量	○	○	○	○	○	○	○	○	◎
d) 迅速性	△	△	◎	×	◎	×	◎	△	◎
e) 応用範囲	◎	◎	○	△	○	◎	○	△	◎
f) 非破壊検査	×	×	◎	×	◎	×	○	○	○
g) 標準化と校正が簡単こと	○	○	○	○	○	△	○	○	○
h) 不正に対する耐性	○	◎	○	○	○	×	×	×	○

a) IAEA "Report of ADMIT and the International Meeting on Analytical Detection Methods for Irradiation Treatment of Foods", Belfast, 1994

スの製品とはひと味違うようだ。

しかし、その判定基準の曖昧さと欠点は同じらしく、手元のカタログには「簡便なスクリーニングを目的とした測定器です。本装置の判定が必ずしも正しいものでない場合も想定されます。ほかの判定方法と合わせて正しい判断をしてください。」と小さな文字で断り書きがある。断り書きのスクリーニングとはいえ、一度陰性となった試料を再び調べる人はないだろうし、ましてや食品安全委員会や原子力委員会に関わった人物が関係して開発された装置を用いて出された結果に疑いをもつ人も少ないだろう。

この方法はもともとの判定基準が恣意的なため、現在のわが国の試験検査の状況に合わないので、検討する予定は今のところないが、これらの欠点

を承知で、食品製造会社などの原料受入れ検査など自己責任で使用することはできるかも知れない。

Ⅶ 照射食品検知法の評価

IAEA の評価基準にあてはめて、これら分析法を評価した。結果を表 8 に示す。これは 1994 年の ADMIT の評価項目に基づいて記載した。いずれの検知法も一長一短があるが、これを補うためにはこれらの方法をうまく組合わせて検知するか、種々の原理に基づき新たに検知法を確立する必要がある。しかし、現在照射食品の検知法を開発しているのは筆者の研究所だけで新たな検知法が生まれてくる兆しはない。ただ、原子力研究開発機構高崎量子応用研究所でさまざまな試みが行われていることに期待を寄せたい。

VIII ま と め

本稿では照射食品に対する理解が一般に不足している現状に鑑み、そのリスクを明らかにする観点から、照射食品の経緯を述べた。一般に食品加工にはメリットがあるがデメリットもあるのが普通で、これを管理して、製造・保存・流通・消費をしないと不測の結果になる可能性がある。これを照射食品にあてはめて述べた。この点は照射ベビーフード事件の判決が指摘した点と軌を一にする。検知法に関してはCodexの方法を表にまとめた。照射食品を認めているヨーロッパの国々は、照射食品は安全であるとの立場に立っているので、照射食品を試験する目的は市町村レベルでその不表示を監視することであって、行政処分を行うことが主目的ではない。したがって、試験法はそれなりの正確さしかもっていない。このようにヨーロッパで開発された検知法はわが国における検知法の目的と異なる目的で開発されているので、これらの精密化を図り、わが国の行政風土にあった厳密さを確保する必要がある。

これらの期待に応えるべく、厚生労働科学研究として、TL試験法の開発を行ったので、その検討内容の一部を述べた。

一方、TL法の実行には多くの労力を必要とするので、簡便な方法としてPSL法が照射食品研究の権威者たちによって開発され市販されている。この方法はスクリーニング法として、偽りの陰性を与えやすいので、使用にあたっては自己責任であることはもとより、結果の判断に十分な注意が必

要であろう。

昔、食の安全はそれを食する人が自ら判断し、自分の身を守ることができた。しかし、現在のよう食品の生産、加工、流通等が複雑になり、消費者自らその安全性を判断が難しくなっている。したがって、食品の安全はそのリスク評価、リスク管理、生産、流通、管理、販売など、食品衛生に携わる人すべての肩にかかっているといっても過言ではないだろう。企業、地方自治体、国、各種団体、学識経験者いずれの立場にあっても、食の安全に関わる人の責任は重い。このため、その不見識、無知蒙昧は食生活の安全を願う国民の付託に応えられないだけでなく、国民の健康を損なうおそれを招くものである⁴³⁾。特に照射食品のように国民の中にさまざま意見がある場合は、根拠のある科学的な知見に基づき議論を進める必要があるだろう。

原子力委員会の提言を待つまでもなく、照射食品のリスク管理するためには、検知法の基礎的な検討から行政的なニーズに応えるための研究まで、今後さらにいっそうの研究検討が必要である。食品照射研究の歴史が長い、実際に製品が広く流通した歴史はほとんどない。このため、まだ基礎的なデータが不足しており、今後種々の検知法の実用に向けてこの分野の発展を期待する。

謝 辞

本稿をまとめるにあたり、食品照射に関する種々の資料を準備して下さった米国各地の図書館司書の労力に感謝したい。

参 考 文 献

- 1) 厚生労働省食品安全部：放射線照射された食品の検知法について、食安発0706002号(2006.7.6)
- 2) 日本農業新聞、記事、2002年1月11日
- 3) 東京都健康安全研究センター：食品への放射線照射について、暮らしの健康、11、5-10(2006)
- 4) 宮原 誠：照射食品安全性検証の歴史、食品照射、38、28-49(2003)

- 5) 宮原 誠：照射食品安全性検証の歴史(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)
- 6) 宮原 誠：照射食品安全性検証の歴史(3) 誘導放射能の確認とその安全性，Natickの研究から，食品照射，41，32-48(2006)
- 7) 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，国立衛研報告，125，印刷中(2007)。
- 8) 宮原 誠：照射食品の世界の動向と最近の事情，防菌防黴，30，233-248(2002)
- 9) 宮原 誠：照射食品を巡る最近の動向2006，放射線と産業，111，31-35(2006)
- 10) 伊藤 均：食品照射の基礎と安全性，JAERI—Review2001-029，原子力研究所(2001)
- 11) 戸部満寿夫：照射食品の健全性について，食品衛生研究，29，397-406(1979)
- 12) 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，36，7-18(1986)
- 13) US Army Quartermaster Corps: Radiation Preservation of Food, US Government Printing Office, Washington DC, 295-303(1957)
- 14) Raica, N., McDowell, M.E., Darby, W.J., Howie, D.L., Sherman Jr., J.L.: Wholesomeness of Irradiated Food, Fisher, F.R., Ed.: "Radiation Research, US Army Natick Laboratories, Proceeding of an International Conference, Natick, Massachusetts, Jan 14-16, 1963", US Department of Commerce, Office of Technical Service, Washington DC, 168-184(1963)
- 15) Comptroller General: The Department of The Army's Food Irradiation Program-Is It Worth Continuing?, US General Accounting Office, Washington DC, 6, 1978
- 16) Raltech Scientific Service: The Final Report: Mouse Teratology Study 1977, DAMD17-76-C-6047(1980)
- 17) FDA: Recommendations for Evaluating the Safety of Irradiated Foods, 1980
- 18) FAO/IAEA/WHO: Wholesomeness of Irradiated Food, WHO Technical Report Series 659, 1981
- 19) 日本原子力産業協会：食品照射のなるほど！安心ガイド，2007
- 20) 名古屋地方裁判所豊橋支部，一審判決，1984年6月6日
- 21) 名古屋高等裁判所刑事第二部，控訴審，1985年10月22日
- 22) 山田 隆：粉末野菜放射線違法照射事件について，食品衛生研究，29，79-86(1979)
- 23) 中尾慎男：粉末野菜違法照射事件の判決について，食品衛生研究，34，865-877(1985)
- 24) 食品照射研究委員会：研究成果最終報告書，日本アイソトープ協会，223-243(1991)
- 25) WHO: Safety and nutritional adequacy of Irradiated food, Geneva, 1994
- 26) 三菱総合研究所：食品へ放射線照射技術の安全性に関する欧米の取り組み状況調査，内閣府食品安全委員会平成15年度食品安全確保総合調査(2004・3)
- 27) 独立行政法人 食品総合研究所：放射線照射食品の安全性に関する文献等の収集・整理等の調査報告，平成16年度食品安全確保総合調査(2005・3)
- 28) 照射食品専門部会：食品への放射線照射について，内閣府原子力委員会(2006・9)
- 29) IAEA(1991) Analytical detection methods for irradiated foods, IAEA-TECDOC-587, Vienna, 9
- 30) IAEA: Report of the international meeting on analytical detection methods for irradiation treatment of foods (1994)
- 31) 宮原 誠：照射食品検知の現状，食品照射，37，49-47(2002)
- 32) 豊田正武 宮原 誠：照射食品の検知法の現状，食品衛生学雑誌，36，J-372-378(1998)
- 33) Codex Alimentarius Commission: Proposed draft revised codex general standard for irradiated foods (at step 5 of the procedure), the report of the 33rd Session of the Codex Committee on Food Additives and Contaminants,

- Hague, Netherlands, 2001, Appendix VII
- 34) ALINORM 01/41, para. 197-200, July 2001
 - 35) 澁谷智見, 香取佳子, 淵野清彦, 柳 哲郎: 放射線照射食品の探知調査, 食品衛生研究, 55, 57-62(2005)
 - 36) ガーフィールド著, 宮原 誠訳: 分析試験室のための品質保証原則, AOAC International, Gaithersburg(1997)
 - 37) 宮原 誠: 平成17年度厚生労働科学研究報告書, 放射線照射食品の検知技術に関する研究, (2006・4)
 - 38) 宮原 誠: 平成18年度厚生労働科学研究報告書, 放射線照射食品の検知技術に関する研究, (2007・4)
 - 39) 田辺寛子: 熱ルミネッセンス法による照射食品の検知, 研究発表会要旨, 東京都立産業技術研究所, 59(1998)
 - 40) 後藤典子, 山崎正夫, 関口正之, 等々力節子, 宮原 誠: Radioisotope, 56, 103-113(2007)
 - 41) Food Standard Agency: Survey for Irradiated Foods-Herbs and Spices, Dietary Supplements and Prawns and Shrimps, Survey Information Sheets 25/02 June 2002, ウェブサイト <http://www.food.gov.uk/>
 - 42) Food Standard Agency: Food irradiation: research in support of detection test and the provision of scientific advice, in the Food Research Programme Annual Report 2001, Food Standard Agency Publications, Feb. 2002, London.
 - 43) 宮原 誠: Harvey W. Wiley と AOAC, 防菌防黴, 28, 517-530(2000)

【報文】

塩漬け野菜の保存と電子線照射における腸管出血性大腸菌、大腸菌群と生菌数の菌数消長について

宮原美知子^{1*}、宮原 誠²

Changes in the Bacterial Number (enterohaemorrhagic *E. coli* O157:H7, coliforms and SPC) in Salted Vegetables during Storage and by Treatment with Electron-Beam Irradiation

Michiko MIYAHARA^{1*} and Makoto MIYAHARA²

¹Microbiology Division and ²Food Division, National Institute of Health Sciences, 1-18-1 Kamiyoga, Setagaya-ku, Tokyo 158-8501, Japan

Enterohaemorrhagic *Escherichia coli* O157:H7 causes severe illness in humans, especially young children and elder people. Some 2-3% salted vegetables (called Asazuke) contaminated with *E. coli* O157:H7 have caused food-poisoning and even death. The viability of *E. coli* O157:H7 in saline water and in salted vegetables was tested. During cold and frozen storage, the apparent decrease in the number of *E. coli* O157:H7 was not observed. However, electron-beam irradiation (0.534, 1.097 and 2.639 kGy) caused clear decrease in the numbers of *E. coli* O157:H7 in frozen salted Mizuna. The number of SPC and coliforms were also counted and compared with the changes in the number of *E. coli* O157:H7. (Accepted 25 July 2005)

Key words : Salted vegetable (塩漬け野菜)/*E. coli* O157:H7 (大腸菌O157:H7)/SPC (生菌数)/Coliforms (大腸菌群)/Electron-beam irradiation (電子線照射).

緒 言

野菜の漬物に関連した腸管出血性大腸菌 O157:H7 (O157以後略) の集団発生事例がいくつか発生し、高齢者施設で起こった事例においては、死亡者も報告されている。たとえば2000年6月のカブの浅漬け¹⁾、2001年8月和風キムチ²⁾、2002年6月キュウリの浅漬け³⁾、2002年7月ほうれん草の香味和え⁴⁾などが例としてあげられる。これらの野菜事例においては、調理形態として浅漬け¹⁾が多く、2-3%の食塩濃度で、比較的調理が簡単であることから、汎用されている。しかし、低濃度の食塩による静菌効果については実験

データに限られることから、食中毒発生の予防の観点から実証実験を行って報告することにした。

材料及び方法

使用菌株

使用菌株は *E. coli* O157:H7 で、保存培地より、TSB (Tryptic soy broth, DIFCO) 3 ml に接種し、1晩35℃培養し、滅菌精製水で2回遠心洗浄して、3 ml 滅菌精製水に懸濁して、使用菌液とした。菌濃度は10⁶希釈した液を0.1ml ずつ5枚の TSA (Tryptic soy agar, DIFCO) に塗抹し、出現集落数により、菌数測定を行った。

¹国立医薬品食品衛生研究所 衛生微生物部 〒158-8501 東京都世田谷区上用賀1-18-1 ☎03-3700-1141 (内線548)
²国立医薬品食品衛生研究所 食品部 〒158-8501 東京都世田谷区上用賀1-18-1 ☎03-3700-1141 (内線332)

実験方法

1) 食塩水中冷蔵保存における菌の消長

各塩濃度 (0, 2, 4, 8, 16%) 滅菌食塩水 10ml に 0.1ml の上記菌液を添加し、これを試料液 (3.1×10^7 cfu/10 ml) として 4°C で冷蔵保存実験を行った。1, 24, 168 時間毎によく攪拌し 0.1 ml の試料液と 10 倍希釈液を TSA (Tryptic soy agar, DIFCO) 塗抹し、24 時間培養した後、出現集落数により O157 の菌数を計測した。各塩濃度 5 試料液 (N=5) を用い、1 試料液あたり 1 計測とした。結果の解析は EXEL の TTEST 検定 (平均値の差の検定) により行った。

2) 各食塩濃度の冷蔵保存した水菜中の大腸菌群数と生菌数の解析

市販水菜をスーパーより購入し、25g ずつストマッカー袋に無菌操作により小分けした。食塩を各濃度 (0, 2, 8, 12, 16, 20%) になるように水菜の入ったストマッカー袋に添加し、全体に圧力をかけて漬物状態とした後に、4°C で冷蔵保存とした。冷蔵保存 1 日目、9 日目と 16 日目に生菌数と大腸菌群数を計測した。計測は各塩濃度 1 試料を用いた。ストマッカー袋に 225ml の滅菌生理食塩水を加え、ストマッキング後に滅菌生理食塩水にて適宜 10 倍段階希釈し、1 段階につき 2 回、デゾキシコレート培地で混釈重層 (大腸菌群測定) と Standard Plating Count 法での混釈による生菌数 (以下 SPC と略) 測定を行った。大腸菌群測定は 35°C、24 時間培養で、SPC は 35°C、48 時間培養を行った。大腸菌群では赤色集落を、SPC ではすべての出現集落を計測して菌数計算を行った。各希釈段階につき 2 回の測定を行った。

3) O157 を接種した水菜の種々食塩濃度での冷蔵保存における O157 菌数の推移

2) の実験と同様に処理した水菜漬けに O157 の菌液を適当倍した希釈菌液 0.1ml を各ストマッカー袋中に接種した (7.4×10^8 cfu/25g)。4°C で冷蔵保存とし、接種後 1 日と 7 日目に O157 の菌数測定を行った。各塩濃度 1 試料液とし、各希釈段階 2 枚の 0.1ml 塗抹培養を CHROMagar O157 (CHROMagar 社) 寒天培地上で行い、O157 とみられる赤紫色の集落を計測し、菌数を

推定した。

4) O157 接種壬生菜の冷凍保存実験

壬生菜を 25g ずつストマッカー袋に小分けした。塩漬け前野菜の大腸菌群と SPC を測定した。大腸菌群と SPC の計測は 2) の実験と同様に行った。食塩濃度は 2% のみで、食塩添加後押して漬物とした。4°C、一晚冷蔵後に O157 菌液を 0.1 ml ずつ接種し、接種後に冷凍保存とした (9.8×10^7 cfu/25g)。1 群を 2 検体として、1 検体に 2 回の測定を行った。-20°C 冷凍保存、1, 7 と 13 日後 (塩漬け保存から 2, 8 と 14 日後) に O157 の生残数、大腸菌群と SPC について前述と同様に測定を行った。

5) 冷凍保存塩漬け O157 接種壬生菜に対する電子線照射の効果

塩漬け、O157 接種後 14 日間冷凍保存した壬生菜を冷凍状態のまま輸送し、一晚冷蔵庫で検体の温度を 4°C とし、氷上で電子照射 (0, 0.534, 1.097, 2.639 kGy) を行った。照射後は冷蔵での輸送とした。O157 の生残菌数、大腸菌群それに SPC も併せて計測を行った。1 群 3 試料液で、希釈段階 3 段階について 1 試料液に 2 回の測定を行った。

結 果

1) 食塩水中冷蔵保存における菌の消長

図 1 に示したように、食塩による静菌効果はわずかであったが、表 1 に示したように平均値の差の検定の統計処理を行った結果、塩を加えない試料液に比較して、1 例を除く残りすべての食塩添

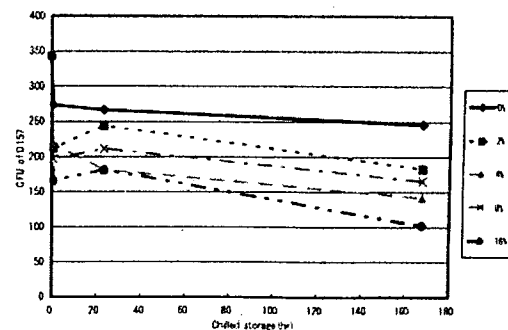


Fig.1. Survival of O157 in cold saline water

Table 1. P values for the comparison of the mean survival of O157 in saline water to that in water with no salt during chilled storage

Salt %	TTEST				
	0	2	4	8	16
Storage 1hr		0.0035	0.0105	0.0012	0.0001
Storage 24 hrs		0.1004	0.0017	0.0031	0.0016
Storage 7 days		0.038	0.0014	0.0056	0.0003

Table 2. Average number of O157 in cold saline water (comparative %)

Conc. of salt %	Storage at 4°C (hr)			
	0	1	24	168
0	344(100%)	274(100%)	267(100%)	246(100%)
2	344(100%)	213 (78%)	245 (92%)	184 (75%)
4	344(100%)	219 (80%)	182 (68%)	142 (58%)
8	344(100%)	197 (72%)	211 (79%)	165 (67%)
16	344(100%)	167 (61%)	182 (68%)	103 (42%)

加試料液で5%の有意差で静菌効果が確認された。表2に各塩濃度での平均菌数と食塩無添加群での菌数を100%とした場合の相対%を()内に示した。最大の静菌効果を示したのは、16%食塩添加7日間保存で、食塩無添加7日間保存に比較して、42%への減少であった。

2) 各食塩濃度の冷蔵保存した水菜中の大腸菌群数とSPCの解析

図2に示したが、塩漬け水菜のSPCは冷蔵1週間では菌数変動は少ないが、2週間目に測定するとSPCは減少していた。それに比して、大腸菌群は低塩濃度では冷蔵1週間後に菌数が減少するが、14日目には8%以上の食塩添加群では、大腸菌群の増加がみられた。

3) O157を接種した水菜の種々食塩濃度での冷蔵保存におけるO157菌数の推移

図3に示したように、この実験においては、4°C7日間保存で2%食塩添加群での菌数減少効果が一番高く、食塩添加していないものに比較して、10%への菌数減少が見られた。4、8、12%食塩添加群では、食塩添加していないものに比較して30-40%へのO157菌数減少であった。

4) O157接種壬生菜の冷凍保存実験

図4に示したように2%塩漬け壬生菜中では接種されたO157菌数減少率は冷凍保存後1日目でも大きかったがそれ以後の減少は緩やかであった。

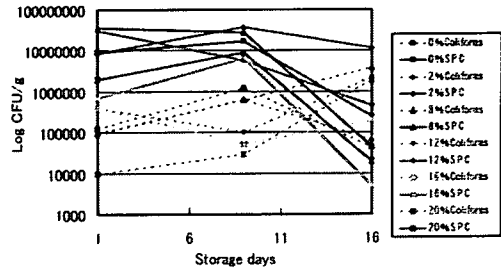


Fig.2. Coliforms and standard plating counts (SPC) of salted mizuna during chilled storage

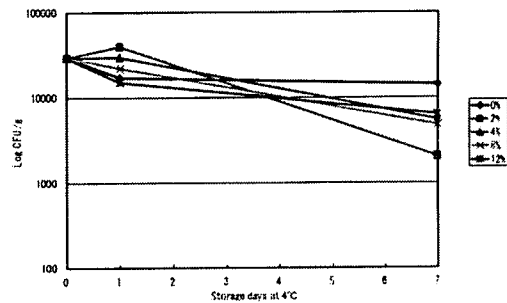


Fig.3. Survival of O157 in salted mizuna

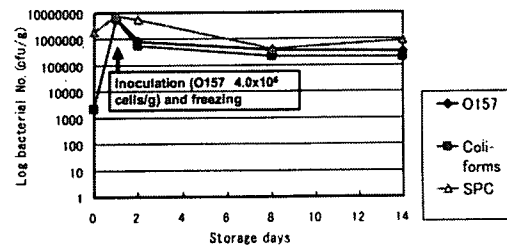


Fig.4. Survival of O157, coliforms and SPC in frozen mizuna

大腸菌群数とSPCともに菌数変動はO157と同様であった。

5) 冷凍保存塩漬けO157接種壬生菜に対する電子線照射の効果

表3に電子線照射による殺菌効果を示した。照射しない場合のO157菌数は平均 1.5×10^5 、大腸菌群は平均 1.0×10^5 で、SPCは平均 6.0×10^3 cfu/gであった。今回の実験0.534kGyの最小出力の照射により、接種時残存していたO157、 1.5×10^3 cfu/gの菌が10倍希釈検液の0.1ml塗抹培

Table 3. Effect of EB irradiation on O157, coliforms and SPC

O157 cfu/g	EB			
	No irradiation (0kGy)	irradiation (0.534kGy)	irradiation (1.097kGy)	irradiation (2.639kGy)
1	150000	0	0	0
2	160000	0	0	0
3	150000	0	0	0
Mean	153333			
SD	5774			
Coliforms				
1	91000	0	0	0
2	120000	0	0	0
3	95000	10	0	0
Mean	102000	3		
SD	15716	6		
SPC				
1	520000	1100	120	70
2	390000	6300	220	110
3	910000	1400	240	45
Mean	606667	2933	193	75
SD	270617	2919	64	33

EB: Electron-Beam

SD: Standard deviation

SPC: Standard plating count

養で集落を検出できなかった。つまり菌数が約 10^3 分の1以下に減少したことになる。それ以上の照射線量1.097と2.639kGyにおいても、同様にO157を検出できなかった。大腸菌群は最小出力照射群(0.534kGy)の1枚で2個の赤色集落を検出したが、それ以外の照射群から集落の検出はなかった。しかしながら、SPCにおいては2.639kGyの今回の最大出力照射によっても集落が出現した。いくつか集落を掻き取り、グラム染色を行って検鏡したところ、グラム陽性の芽胞菌が多く観察された。

考 察

今回の実験によって、O157は食塩添加による静菌効果はあまり高くないことが明らかになった。また、冷蔵保存によって、SPCが減少しても、それに伴った大腸菌群の減少は観察されなかった。冷蔵保存によって大腸菌群の比率が高まる結果が観察された。O157を各種塩濃度水菜に接種して菌数の推移を検討したところ、この実験では2%食塩添加で、7日後冷蔵保存ではO157が10%まで菌数減少し、4、8、12%添加群では40%位の

減少が見られた。試験管での反応と比較して、水菜に添加した場合には差が見られた。2%の塩添加が水菜のような野菜検体に行われた場合、均一な条件設定が困難であるためと思われる。野菜そのもののSPC、大腸菌群数には非常にばらつきがあり、また、実験に使用した検体数と採取量で、その野菜の代表的な検査値として評価するには問題があると思われるが、一般的には測定した試料の測定値で評価するのが通例である。緒言で示した食中毒事件から考えても、野菜浅漬けによる静菌効果は多くを期待できないこと、また、それらの損傷菌は人体に入った場合再増殖を始めることなどが推測される。直接加熱無しに食される野菜の浅漬けは原料が汚染されていた場合には食中毒を引き起こす可能性が考えられる。冷凍保存においてはSPC、大腸菌群そして、接種したO157ともに冷凍保存解凍によると考えられる菌数減少以外での減少は観察されなかった。

昨年の米国においては、サラダ用ハウレン草によるO157食中毒事件⁹⁾とレタスでのレストランチェーン店でのO157食中毒事件⁷⁾と2つの大きな生野菜による事件が起こった。これらのことから、米国では、生野菜の衛生管理を強化してきた⁸⁾。我が国においても、生野菜の実態調査等さらに強化していく必要があると思われる。

さらに、この報告では、加熱しない野菜の殺菌を目的として、試験的に電子線照射を検討した。我が国で起きたO157食中毒事例で、死亡者が発生したのは、高齢者施設であり、食品の嗜好から考えて、高齢者施設での浅漬け等の食品に関しては微生物等の衛生管理を厳しくすべきであると思われる。WHOの勧告によれば、食品に対しては10kGy以下の照射が容認されていることから⁹⁾、現在我が国においては「食品を製造し、または加工する場合もしくは保存の目的で食品に放射線を照射してはならない」と規格されているが¹⁰⁾、殺菌のための照射を試みに検討した。照射量は0.534、1.097、2.639kGyの3段階とした。前に報告した実験の結果では¹¹⁾、4℃での電子線殺菌の D_{10} 値は0.48kGyであった。その結果と比較すると今回の実験では 6.0×10^6 cfu/gのO157が0.534kGy照射によって、少なくとも 10^3 分の

1に減少したことになり、塩漬け、あるいは冷凍保存による相乗効果が発揮されたものと思われる。さらに電子線照射による格別なにおいや色の変化もなかったことから、今後のさらなる検討が期待される。また、従来照射による栄養の損失等の大きな課題もあるが¹²⁾、食中毒等の防止の観点から、さらに検討を行ってみる予定である。

なお、この研究は照射関連部分においては厚生労働研究費補助金「放射線照射食品の検知技術に関する研究」により行われた。

結 論

O157の冷蔵保存において、食塩による殺菌効果を検討した。試験内においては統計処理5%有意水準では有効だが、殺菌の程度は最大16%食塩水中168時間(7日間)冷蔵で42%への減少であった。水菜でのSPCと大腸菌群数への影響は9日間冷蔵保存ではどちらの菌に対しても食塩添加による菌数への影響はほとんど見られなかった。16日間の冷蔵保存においては、SPCは減少が明らかとなったが、大腸菌群では減少はほとんどみられなかった。この大腸菌群における耐塩性と同様に、O157も食塩添加による菌数減少は少なかった。2%食塩添加7日間冷蔵で最大効果が見られたが、10%への減少であり、少量菌で発病が報告されているO157の殺菌法としては不十分と考えられる。O157大量菌接種(1.5×10⁸cfu/25g検体)冷凍浅漬け壬生菜に電子線照射(0.534, 1.097, 2.639 kGy)を行ったところ、CHROMagar O157寒天培地上にO157が検出されなかった。著効を示し、食塩添加と冷凍での電子線照射の組み合わせは殺菌法として有効と考えられた。

文 献

1) 上原怜子, 倉持一江, 赤坂 実, 福田健治, 天

下井昭, 沢田俊之, 山口正則, 岸本 剛, 正木宏幸, 新階敏恭, 砂川富正, 藤井逸人, (2001), かぶの浅漬けに関連した老人保健施設における腸管出血性大腸菌O157感染症の集団発生—埼玉県, *IASR*, **21**, 272-273.

- 2) 大塚佳代子, 倉園貴至, 尾関由姫恵, 山口正則, 岸本 剛, 青羽信次, (2002), 「和風キムチ」を原因食品とする腸管出血性大腸菌O157集団感染事例—埼玉県, *IASR*, **22**, 290-291.
- 3) 福岡市保健環境研究所保健化学部門(微生物), (2004), 「キュウリの浅漬け」が原因と考えられた保育園における腸管出血性大腸菌O157集団感染事例—福岡市, *IASR*, **24**, 132-133.
- 4) 長谷充啓, 若林里美, 宇賀神貞夫, (2003), 病院および老人保健施設で発生した腸管出血性大腸菌O157による集団食中毒事例—宇都宮市, *IASR*, **23**, 318-319.
- 5) 宮尾茂雄, (2005), 漬物と微生物, *日食微誌*, **22** (4), 127-137.
- 6) <http://www.cdc.gov/foodborne/ecolispinach/100606.htm> October 6, (2006), *E. coli* O157:H7 Outbreak From Fresh Spinach, October, 2006
- 7) <http://www.cdc.gov/ecoli2006/december/121406.htm> December 14, (2006), Multistate Outbreak of *E. coli* O157 Infections, November-December 2006
- 8) <http://www.fda.gov/bbs/topics/NEWS/2007/NEW01584.html> March 12, (2007), Guide to Minimize Microbial Food Safety Hazards of Fresh-cut Fruits and Vegetables
- 9) WHO Library, (1994), Safety and nutritional adequacy of irradiated food, World Health Organization, Geneva.
- 10) 食品, 添加物等の規格基準の一部改正, (1972), 厚生省告示第257号, 昭和47年8月8日.
- 11) 宮原美知子, 宮原 誠, (2002), ガンマ線と電子線照射による嫌気性菌と通性嫌気性菌の生存への影響, *国立衛研報*, **120**, 75-80.
- 12) 宮原 誠, (2003), 照射食品安全性検証の歴史, *食品照射*, **38**, 37-54.

X線並びに γ 線を照射した食品に生じる誘導放射能

食品部 宮原 誠

Induced Radioactivity in Irradiated Foods by X Ray or gamma Ray

Summary

In the course of the archival studies on safety of irradiated foods by the US Army, experimental records conducted by Glass & Smith, and Kruger & Wilson were investigated, based on our experimental experience. Food irradiation by Co-60 or 4~24MeV X ray can induce small amount of radioactivity in the foods. The principal mechanisms of the nuclear reactions are (γ, n). The resulting nuclear products found in irradiated target solutions were Ba-135m, Pb-204m, Hg-199m, Ag-107m, Ag-109m, Cd-111m, Cd-113m, Sn-117m, Sn-119m, Sr-87m, Nb-93m, In-113m, In-115m, Te-123m, Te-125m, Lu-178m, Hf-160m by the (γ, n) reaction. The total radio-activities in beef, bacon, shrimp, chicken, and green beans were counted at 60 days after irradiation by Cs-137, Co-60, and fuel element. The activities more than background were found in irradiated bacon and beef by Co-60.

and activities were found in most foods when foods were irradiated by high energy X ray and the fuel element. The results were understood as the neutron activation by (γ, n) or (n, γ) reaction. Therefore, high energy X ray and spent fuel element were not used for food irradiation.

As the results of this study Co-60 has been used with small amount of induced radioactivity in food.

Keywords: food irradiation; induced radioactivity; nuclear reaction

1. はじめに

数MeVの電子線を食品に照射すると食品中に誘導放射能が発生するので、IAEA (International Atomic and Energy Agency) は食品照射のGMPを提案し、規制をするように促した。前報¹⁾でその論拠となった論文を現代の知識を基に精査した。

日常食べる食品の放射化は老若男女を問わず放射性物質の摂取量を増大させ、体内被曝を増加させ、種々のガンを引き起こすなどの危険性があり、放射線処理食品の安全性を考える上で重要である。ここで扱う元のデータは古いがその後食品中の誘導放射能についての研究はほとんどなく、現在でもいわば最新の研究成果であり、現在までの照射食品の安全性論議などに大きな影響を与えてきた重要な内容である。しかし、軍のペールのなかで研究されたこともあって、詳細なデータは学術報告などとして広く公表されてこなかった。そのため現在でも詳細な文献を入手することは難しく、2005年の食品安全委員会の調査報告書にもこのNatick研究所の放射化の研究に言及がない^{2,3)}。さらに千ページにならんとするNatick研究所の報告書をまとめた資料もみあたらないので、煩瑣をいとわずデータや実験手法を記載し、後日のこれらのデータを検証する際の参考となるようにした。

2002年から2004年頃にかけて、照射食品の安全性調

査研究に資する目的で調査研究し、今回、高エネルギーX線による放射化を中心に調べたので報告する。

1-1 調査方法

アメリカ合衆国農務省図書館 (NAL) で現地調査を行い、同図書館の参考員からの聞き取り調査、アメリカ東部農業研究所フィラデルフィア支所 セイヤー博士の文献コレクションを調査した。実際の資料は同国コロラド州大学ボールディ校Norlin図書館、アメリカ合衆国・国立公文書館 (NARA) オーデオビジュアル部、デンバー市立図書館、カルフォルニア大学ロスアンゼルス校Hugh & Hazel Darling 法律図書館、ロサンゼルス市立図書館などで文献検索等を実施し、我が国では入手できない文献を収集した。同国大使館農務部の協力のもと3年間の調査期間を要した。1万ページを超える塊集された報告書はマイクロフィッシュに記録されており、その中から、放射化に関連する資料を探し出す作業を行った。

1-2 主な報告書

理論的な組み立てと検証実験はKrugerとWilsonによって1958年会計年度から1960年まで実行され、種々の線源の中性子束を測定し、実際の食品の放射化を測定した⁴⁾。1962年にアメリカ合衆国陸軍Natick研究所はさらにスタンフォードのGlassとSmithに高エネルギー電子線照射装置による放射化について、理論構築と実験を行わせた⁵⁾。

引き続いて同じNatick研究所の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⁷⁾。これをさらに発展させ、1979年に彼はNatick研究所に報告している⁹⁾。その後、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⁹⁾。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、規模は極めて小さいが、わが国でもアイソトープ協会が中心となって実験が行われ、同様な結論を得た^{10) 11)}。1995年WHOは5MeVまでのX線照射についての安全性を検討する中で、放射化の問題を理論的に論じている¹²⁾。さらに最近ではIAEAが前述の報告書を出している¹³⁾。本小論では実際の実験を行った結果を取り扱い、特定の断りがないときは、以下に示す実験結果はGlassとSmith^{14,15)}と KrugerとWilson^{4, 16)}らが1960年頃に書いたもので、IAEA⁷⁾が計算の論拠としたものでもある。

2. 食品照射用線源と照射条件・線量測定法

当時の誘導放射能の測定方法と生成量の少ない核種や半減期の短い核種の検出手法は前の報告を参照されたい。¹⁾

2-1 使用済み核燃料棒を用いるγ線照射

バリウム140—ランタン140崩壊系列からでる2.5MeVのガンマ線を利用する。試料と線源は空気中または水中に置き、線量管理は時間と距離で行った。試料は金属製のカンまたはステンレス容器に格納して、室温で照射した。Vallecitos (アメリカ最初の商用沸騰水型原子炉Vallecitos boiling water reactor (VBWR)) のあったところで1957年から1963年まで操業、カルフォルニア州Pleasantonに所在)のGE (General Electronics) 実験施設にある装置を主に用いた。

線量測定はセリウム線量計を用い、10%の誤差で測定した。表面線量は4Mrad/h (40 kGy/h) で平均10から20Mrad (100kGy ~200kGy)の吸収線量を与えて測定した。

表1 中性子量の測定法

測定対象	熱中性子					速中性子		
	インジ ユウム In-115	ジスプロ シウム Dy-164	金 Au-197	リン P-31	イオウ S-32	アルミ ニウム Al-27	アルミ ニウム Al-27	バナジウ ム V-51
使用核反応	(n, γ)	(n, γ)	(n, γ)	(n, p)	(n, p)	(n, p)	(n, α)	(n, α)
共鳴エネルギー (MeV)	1.46	4.9	—	—	—	—	—	—
反応閾値(MeV)				2.5	2.8	4.6	8.1	11.5
生成核	In-116	Dy-165	Au-198	Si-31	P-32	Mg-27	Na-24	Sc-48
半減期	54m	139m	2.7 d	2.6 h	14.5d	9.5m	14.8h	44h
測定したβ線の エネルギー (MeV)	1	1.25	1	1.5	1.71	1.7	1.4	0.64
測定素子の厚さ (mil)	5.4	7	2.7	30	30	30	30	30
最小検出フラック クス量 n/cm ² sec	1.6	0.2	10.6	170	50	210	80	30

Kruger, P., Wilson, C.R. "Study to Determine Neutron Fluxes in Food Irradiation Facilities", DA-19-129-QM-741, 1960.

2-2セシウム137とコバルト60を用いたガンマ線照射

食品試料50~200gをガラス製の容器に詰めて、室温で照射を行った。線量率は0.4と1.4Mrad(4~14kGy)であった。

セシウム照射装置はジョージア工科大学の12000Ci (144TBq)、コバルト60照射装置はSRI (Stanford Research Institute, Menlo Park California, 以下SRI) の2500Ci (92.5TBq) とLRL (Lawrence Radiation Laboratory, Berkeley,

CA で現在のErnest Orlando Lawrence Berkeley National Laboratory, 以下LRL) の2000Ci (74TBq) のガンマセルを用いた。セシウム照射装置の線量測定はフリック線量計、コバルトのそれにはセリウム線量計を用い、それぞれ5,10%の誤差で測定した。表面線量率はセシウムで1.4 Mrad/h, SRIで0.4 Mrad/h, LRLで6Mrad/h (60kGy/h) で、平均吸収線量はそれぞれ1-10 Mrad (10-100kGy/h), 10-500/Mrad (100-5000kGy/h), 15-30Mrad (150-300kGy/h) の吸収線量を与えた。

2-3 X線照射装置による照射

X線は加速器から出てくる電子線を重金属製の変換器にあててX線を発生させる。この実験に使用した装置のうち1MeVの装置はSRIに設置された装置で、共振変換電子加速器を装備している。タングステン製変換器から5インチの位置で照射した。線量測定にセリウム線量計を

用い、表面線量率10 Mrad/h (100 kGy)、平均吸収線量10 Mrad (100 kGy) であった。同様に4MeV, 8 MeV,

16 MeV/24 MeVの装置はそれぞれファンデグラフ型、Lバンドリニアック型、Sバンドリニアック型の加速器を用い、金、タングステン、タンタル/タングステンの変換器を用いて、0.5, 5, 6/18インチの位置で照射した。線量測定はそれぞれセリウム、ブルーセロファン、ブルーセロファン/ガラスを用い、平均吸収線量は10, 2, 6-15/0.01-1 Mrad (100, 20, 60~150/0.1~10 kGy) で測定した。

3. 中性子線量の測定方法

中性子の量を測定するために、用いた種々のターゲットを表1示す。金、イリジウムなどを木ではさんで照射した。

4. 結果と考察

4-1 使用済み燃料による食品照射

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γ線を照射食品の線源にしようと試みた。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¹⁷⁾。

表2 使用済み燃料棒を線源とするγ線照射装置中の中性子フラックス (個/cm²sec)

施設名	熱中性子				エピサーマル中 中性子		高速中性子		
	In	Dy	Au	平均	In	Au	P	S	Al
測定素子					Φ _r	φ f	Ee	Ee	Ee
					(1.46)	(4.9)	(2.5)	(2.8)	(8.1)
Dugway Proving Grounds(air)	4.1	9.9	—	7	0.5	—	<170	—	<80
Argonne National Lab (water)	168	172	160	167	4	1	—	—	<80
Materials Testing Reactor(water)	1700	1300	1300	1400	12	7	<170	—	<80
Savannah River Project(Water)	13000	8000	11000	11000	200	200	6650	—	<80
			18000				—	1100	<80

Krugar, P., Wilson, C.R. "Study to Determine Neutron Fluxes in Food Irradiation Facilities", DA-19-129-QM-741, 1960.

バックグラウンド：元の報告書には記載がないが、中性子なので基本的にはゼロと考えられる。