

表-15 乾燥野菜の結果①

| 試料採取量   | 試料重量     | G1*   | TL供G1<br>使用量 | G1     | G<br>w2 | 温度       | G2*重量  | G' 2  | B2*重量 | G2   | 温度  | TL比判定  |          |        |       |       |     |      |       |
|---------|----------|-------|--------------|--------|---------|----------|--------|-------|-------|------|-----|--------|----------|--------|-------|-------|-----|------|-------|
|         |          |       |              |        |         |          |        |       |       |      |     |        | g        | mg     | mg    | mg    | mg  | mg   | nC/mg |
| 白菜      | 5 488.25 | 1.72  | 106.89       | 108.23 | 1.34    | 157.68   | 107.92 | 21.95 | 132   | 1.03 | 319 | 107.84 | 4227.11  | 107.83 | 21.41 | 4474  | 185 | 0.03 | 検知せず  |
| 野沢菜     | 5 509.66 | 1.97  | 106.7        | 108.2  | 1.5     | 121.66   | 108.12 | 20.79 | 71    | 1.42 | 240 | 108.05 | 4302.69  | 108.03 | 22.64 | 3218  | 189 | 0.02 | 検知せず  |
| イチゴ     | 1 29.46  | 3.66  | 106.79       | 108.23 | 1.44    | 341.26   | 108.2  | 23.68 | 225   | 1.41 | 351 | 108.12 | 43639.02 | 108.13 | 26.29 | 32547 | 174 | 0.01 | 検知せず  |
| グリーンピース | 5 503.02 | 1.98  | 106.74       | 108.22 | 1.48    | 341.03   | 107.7  | 19.15 | 335   | 0.96 | 193 | 107.64 | 1769.79  | 107.65 | 21.93 | 1921  | 180 | 0.17 | 検知する  |
| ほうれん草P  | 5 25.79  | 1.5   | 106.73       | 108.23 | 1.5     | 95.22    | 107.87 | 25.83 | 61    | 1.14 | 372 | 107.74 | 3022.36  | 107.7  | 23.93 | 3091  | 180 | 0.02 | 検知せず  |
| 小松菜P    | 5 25.79  | 1.92  | 106.9        | 108.39 | 1.49    | 80.93    | 108.2  | 25.32 | 43    | 1.3  | 379 | 108.01 | 2436.76  | 107.97 | 24.78 | 2254  | 182 | 0.02 | 検知せず  |
| ほうれん草F  | 2 106.07 | 8.53  | 106.85       | 108.29 | 1.44    | 150.33   | 108.07 | 56.79 | 77    | 1.22 | 373 | 108.04 | 4192.58  | 107.92 | 89.21 | 3835  | 190 | 0.02 | 検知せず  |
| 青しそF    | 2 101.01 | 2.42  | 106.45       | 107.93 | 1.48    | 116.35   | 107.7  | 22.55 | 75    | 1.25 | 327 | 107.6  | 4292.91  | 107.55 | 28.7  | 3877  | 187 | 0.02 | 検知せず  |
| ネギF     | 2 100.44 | 2.95  | 106.68       | 108.15 | 1.47    | 11294.61 | 108.11 | 26.5  | 7880  | 1.43 | 208 | 108    | 17332.65 | 107.94 | 35.69 | 13728 | 174 | 0.57 | 検知する  |
| 大根菜F    | 1 51.98  | 14.68 | 106.97       | 108.47 | 1.5     | 8592.74  | 108.44 | 24.89 | 5828  | 1.47 | 205 | 108.16 | 13806.93 | 108.1  | 40.66 | 12183 | 176 | 0.48 | 検知する  |
| にらF     | 2 102.86 | 1.77  | 106.87       | 108.36 | 1.49    | 22439.15 | 108.29 | 34.84 | 15778 | 1.42 | 203 | 108.16 | 11263.89 | 108.09 | 43.56 | 9197  | 177 | 1.72 | 検知する  |
| キャベツF   | 3 157    | 1.59  | 106.9        | 108.32 | 1.42    | 319.13   | 108.11 | 21.35 | 246   | 1.21 | 343 | 108.03 | 4771.66  | 107.98 | 40.06 | 4381  | 180 | 0.06 | 検知せず  |
| ゴボウF    | 1 105.15 | 2.57  | 106.6        | 108.04 | 1.44    | 420.24   | 107.96 | 27.65 | 289   | 1.36 | 346 | 107.86 | 15919.12 | 107.81 | 43.19 | 13121 | 171 | 0.02 | 検知せず  |
| 大根F     | 3 309.17 | 2.9   | 107.34       | 108.82 | 1.48    | 59.47    | 108.41 | 25.15 | 32    | 1.07 | 307 | 108.35 | 686.16   | 108.28 | 33.24 | 695   | 182 | 0.05 | 検知せず  |
| タマネギF   | 5 516.68 | 1.61  | 107.05       | 108.52 | 1.47    | 257.84   | 108.32 | 35.98 | 175   | 1.27 | 400 | 108.07 | 8331.32  | 107.99 | 35.08 | 8626  | 173 | 0.02 | 検知せず  |
| カボチャS   | 5 521.59 | 0.91  | 106.25       | 106.92 | 0.67    | 362.24   | 106.49 | 20.18 | 1425  | 0.24 | 195 | 106.49 | 323.13   | 106.49 | 30.21 | 1221  | 173 | 1.17 | 検知せず  |
| わさびFD   | 3 153.06 | 1.17  | 107.02       | 108.03 | 1.01    | 48.22    | 107.52 | 26.26 | 44    | 0.5  | 255 | 107.54 | 380.18   | 107.52 | 29.7  | 701   | 176 | 0.06 | 検知せず  |

表-16 乾燥野菜の結果② 鉍物が得られず分析を中止したもの

| 品目       | 鉍物捕集<br>作業回数 | 採取量    |      |
|----------|--------------|--------|------|
|          |              | g      | mg   |
|          | (回)          | SWL    | EW   |
| キャベツ     | 2            | 201.55 | 0.26 |
| コーン      | 2            | 202.24 | 0.03 |
| リンゴ      | 2            | 204.67 | 0.06 |
| 梅        | 2            | 200.64 | —    |
| 豆腐       | 2            | 201.57 | —    |
| にんじんP    | 1            | 5.01   | —    |
| カボチャP    | 1            | 5.09   | —    |
| レンコンP    | 1            | 5.03   | —    |
| ゴボウP     | 2            | 10.04  | 0.00 |
| 紫芋P      | 1            | 5.13   | —    |
| スイートコーンP | 1            | 5.04   | —    |
| ゆずP      | 1            | 5.17   | —    |
| 発芽米P     | 1            | 5.14   | —    |
| 黒米P      | 1            | 5.11   | —    |
| にんじんF    | 2            | 209.40 | 0.18 |
| トマトF     | 2            | 208.02 | —    |
| ゆずS      | 2            | 210.19 | 0.18 |

表-17 生鮮野菜の結果③

| 品目    | 鉤物採取量<br>捕集<br>作業<br>回数<br>(回) | 試料量<br>mg | 皿重量<br>mg | G1'<br>重量<br>mg | TL 供G' 1<br>使用量<br>mg | G' 1<br>nC | B1' 重<br>量<br>mg | G1<br>nC/mg | G' W2<br>mg | 温<br>度<br>℃ | G2'<br>重<br>量<br>mg | B2'<br>重<br>量<br>mg | G2<br>nC/mg | 温<br>度<br>℃ | TL 比判定 |       |      |     |      |      |
|-------|--------------------------------|-----------|-----------|-----------------|-----------------------|------------|------------------|-------------|-------------|-------------|---------------------|---------------------|-------------|-------------|--------|-------|------|-----|------|------|
|       |                                | g         |           | 重量<br>mg        |                       |            |                  |             |             |             |                     |                     |             |             |        |       |      |     |      |      |
|       |                                | SWL       | DW        | G' 1W           |                       | G1         | B1W              | B1          | G' 2W       | T1          | G' 2W               | B2W                 | G2          | T2          | TL     |       |      |     |      |      |
| しいたけ  | 2                              | 628.94    | 0.21      | 106.62          | 106.95                | 0.33       | 72.62            | 106.91      | 19.66       | 183         | 0.29                | 191                 | 106.9       | 364.08      | 182    | 0.13  | 検知する |     |      |      |
| しょうが  | 1                              | 56.43     | 22.88     | 107.18          | 108.62                | 1.44       | 561.25           | 108.56      | 31.39       | 384         | 1.38                | 195                 | 108.34      | 3531.01     | 108.27 | 36.74 | 3206 | 182 | 0.12 | 検知する |
| 大根    | 1                              | 333.53    | 15.18     | 106.92          | 108.42                | 1.5        | 317.68           | 108.38      | 24.96       | 200         | 1.46                | 192                 | 108.39      | 3476.12     | 108.3  | 38.26 | 2491 | 188 | 0.08 | 検知せず |
| タマネギ  | 1                              | 29.38     | 2.7       | 107.37          | 108.85                | 1.48       | 568.63           | 108.82      | 20.48       | 378         | 1.45                | 191                 | 108.74      | 4955.86     | 108.73 | 33.35 | 3619 | 183 | 0.1  | 検知する |
| ネギ(太) | 1                              | 304.39    | 125.45    | 106.95          | 108.41                | 1.46       | 428.83           | 108.32      | 20.52       | 298         | 1.37                | 192                 | 108.21      | 2200.31     | 108.19 | 36.52 | 1745 | 183 | 0.17 | 検知する |
| ほうれん草 | 1                              | 271.34    | 76.32     | 106.48          | 107.96                | 1.48       | 533.46           | 107.92      | 25.23       | 353         | 1.44                | 208                 | 107.84      | 1837.75     | 107.82 | 41.28 | 1341 | 186 | 0.26 | 検知する |
| レタス   | 2                              | 261.86    | 1.76      | 106.94          | 108.39                | 1.45       | 278.91           | 108.35      | 20.62       | 183         | 1.41                | 185                 | 108.29      | 2733.97     | 108.28 | 36.54 | 2013 | 182 | 0.09 | 検知せず |
| レンコン  | 1                              | 226.73    | 4.08      | 106.99          | 108.49                | 1.5        | 536.19           | 107.95      | 20.88       | 537         | 0.96                | 186                 | 108.03      | 1909.75     | 107.93 | 35.46 | 1994 | 180 | 0.27 | 検知する |
| ネギ(細) | 1                              | 136.3     | 2.39      | 106.99          | 108.4                 | 1.41       | 231.94           | 108.39      | 24.21       | 148         | 1.4                 | 201                 | 108.37      | 1270.92     | 108.3  | 38.4  | 941  | 194 | 0.16 | 検知する |
| じゃがいも | 1                              | 18.04     | 14.12     | 106.9           | 108.38                | 1.48       | 169.95           | 108.12      | 21.38       | 122         | 1.22                | 250                 | 108.01      | 1210.85     | 107.93 | 34.93 | 1142 | 184 | 0.11 | 検知する |



表-19 加工食品の結果 鉱物が得られず分析を中止したもの

| 品目         | 鉱物捕集作業<br>回数(回) | 採取量      |
|------------|-----------------|----------|
|            |                 | g<br>SWL |
| チリソース(非照射) | 2               | 203.48   |
| チリソース(照射)  | 2               | 202.74   |

表-20 生鮮野菜の TL1 及び TL2 の S/N

| 検体    | 測定  | S     | N       | S/N  |
|-------|-----|-------|---------|------|
|       |     | (nA)  | (nA)    |      |
| シイタケ  | TL1 | 0.259 | 0.00473 | 55   |
|       | TL2 | 2.39  | 0.00389 | 610  |
| ショウガ  | TL1 | 1.55  | 0.00559 | 277  |
|       | TL2 | 21.5  | 0.00461 | 4700 |
| 大根    | TL1 | 1.11  | 0.00478 | 230  |
|       | TL2 | 20.6  | 0.00421 | 4900 |
| タマネギ  | TL1 | 1.12  | 0.00391 | 290  |
|       | TL2 | 31.3  | 0.00338 | 9300 |
| ネギ(大) | TL1 | 1.97  | 0.00450 | 440  |
|       | TL2 | 14.2  | 0.00366 | 3900 |
| ハウレン草 | TL1 | 1.15  | 0.00621 | 190  |
|       | TL2 | 9.78  | 0.00399 | 2500 |
| レタス   | TL1 | 1.44  | 0.00429 | 340  |
|       | TL2 | 20.1  | 0.00378 | 5300 |
| レンコン  | TL1 | 1.65  | 0.00383 | 430  |
|       | TL2 | 12.8  | 0.00365 | 3600 |
| ネギ(細) | TL1 | 0.760 | 0.00518 | 150  |
|       | TL2 | 6.75  | 0.00393 | 1700 |
| ジャガイモ | TL1 | 0.156 | 0.00322 | 48   |
|       | TL2 | 6.80  | 0.00481 | 1400 |

表-21 乾燥野菜の TL1 及び TL2 の S/N

| 検体     | 測定  | S(nA) | N(nA)   | S/N |
|--------|-----|-------|---------|-----|
| カボチャ S | TL1 | 3.57  | 0.00617 | 580 |
|        | TL2 | 1.89  | 0.00384 | 490 |
| わさび FD | TL1 | 1.55  | —       | —   |
|        | TL2 | 2.55  | 0.00392 | 650 |

わさび FD は TL 比 < 0.10 のため TL1 計算せず。

表-22 遠心分離と静置操作による検討試験の結果

| 項目                    | ターメリック (中国)          |            | ターメリック (インド) |            |             |
|-----------------------|----------------------|------------|--------------|------------|-------------|
|                       | 遠心分離                 | 静置         | 遠心分離         | 静置         |             |
| 鉱物捕集量                 | 21.91 mg             | 10.75 mg   | 24.86 mg     | 4.84 mg    |             |
| 試料搭載重量                | 1.50 mg              | 1.41 mg    | 1.45 mg      | 1.50 mg    |             |
| 試料皿の重量 (DW)           | 106.96 mg            | 107.26 mg  | 106.57 mg    | 107.23 mg  |             |
| 第一発光の測定               | 極大温度 (T1)            | 196 °C     | 181 °C       | 188 °C     |             |
|                       | 発光量 (G' 1)           | 7078.41 nC | 41940.16 nC  | 13699.8 nC | 29724.43 nC |
|                       | バックグラウンド発光量 (B1)     | 32.10 nC   | 41.45 nC     | 31.82 nC   | 38.67 nC    |
|                       | 第一発光測定後の試料皿の重量 (B1W) | 108.48 mg  | 108.67 mg    | 108.00 mg  | 108.87 mg   |
| 第二発光の測定               | 極大温度 (T2)            | 174 °C     | 161 °C       | 165 °C     | 170 °C      |
|                       | 発光量 (G' 2)           | 3074.93 nC | 25704.03 nC  | 5190.67 nC | 15919.65 nC |
|                       | バックグラウンド発光量 (B2)     | 26.61 nC   | 32.86 nC     | 30.37 nC   | 32.94 nC    |
|                       | 第二発光測定後の試料皿の重量 (B2W) | 108.16 mg  | 108.61 mg    | 107.74 mg  | 108.76 mg   |
| 第二発光の測定後の試料重量 (GW' 2) | 1.20 mg              | 1.35 mg    | 1.17 mg      | 1.53 mg    |             |
| TL 発光比 (G1/G2)        | 1.82                 | 1.56       | 2.17         | 1.74       |             |

表-23 遠心操作及び静置操作の結果のまとめ

| 項目         | 結果                                  |
|------------|-------------------------------------|
| 試料捕集量      | 遠心操作を行う方が2～5倍多く捕集出来る。               |
| 発光極大温度     | T1, T2ともに両方法に明確な差を認めなかった。           |
| 発光量        | T1で4～6倍, T2では3～8倍, 静置操作の方が強い発光を示した。 |
| 発光曲線       | 図-3及び4に示した。                         |
| TL2後の試料残存量 | 両方法ともに明確な減少を認めなかった。                 |

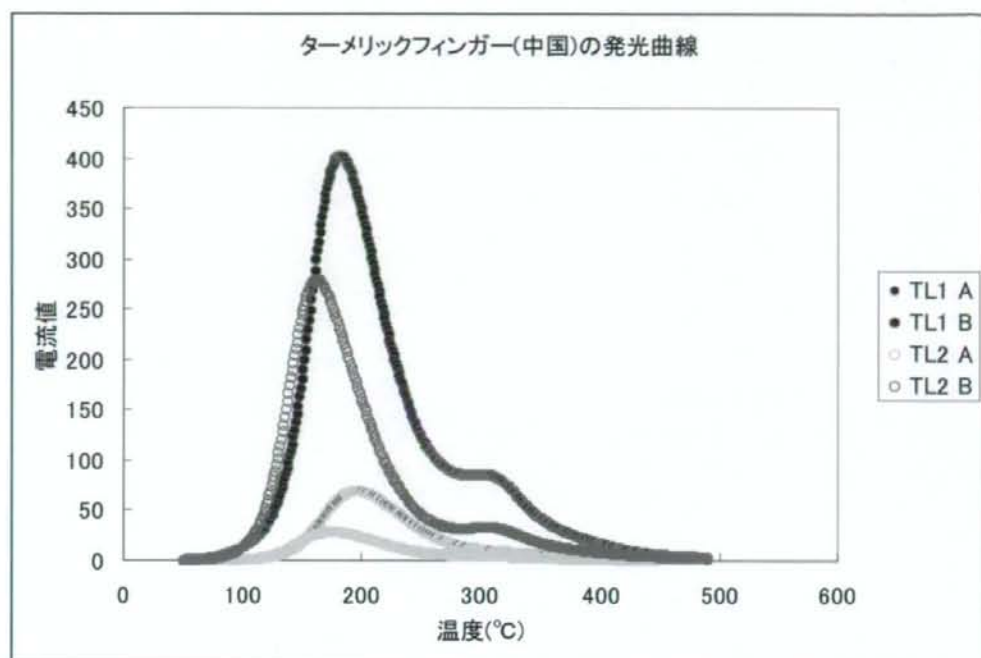


図-3 ターメリックフィンガー(中国)の発光曲線

A: 遠心分離(水色), B: 静置操作(赤)

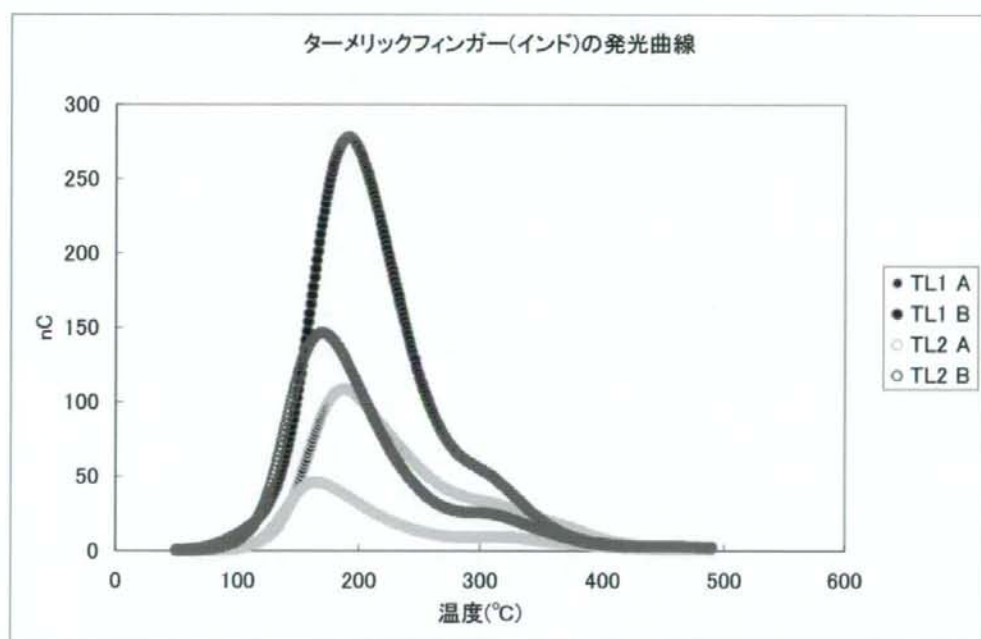


図-4 ターメリックフィンガー(インド)の発光曲線

A: 遠心分離(水色), B: 静置操作(赤)

## 放射線照射食品のESR検知法(骨)の試験に関する研究

研究分担者 増水 章季 学校法人 君が淵学園 崇城大学

### [研究要旨]

ESRによる照射乾燥骨の検知法について技術的な検討を行った。行った項目は次の通り。①試料形態および加工の影響確認 ②乾燥条件の確認 ③保管期間の影響 ④線量の影響 これらの結果より、検知法の原案を作成し、その実用性を再現性試験とした。また、本研究に用いた、牛骨(肉つき)、鳥骨(肉つき)、さば(肉つき)、かいがら(ハマグリ、肉つき)の4種類において検知可能であることを確認した。

### A 目的

骨を含む照射食品についてESRによる検知試験法を確立するため、ヨーロッパ公定法を元に研究を行う。これらの結果から実験室内の再現性を調べ、今年度はESR検知法のプロトタイプを確立する。

5. 再現性の検討: 3~5回同じ操作(放射線照射、前処理、測定)
6. 線量依存性の検討
7. 経時変化の検討
8. 検知手順の検討と手順書の作成

### B 実験方法

1. 使用機器器材・測定試料の検討  
使用する測定機器、試料管などの選定を行なった。また、測定対象の事前検討を行なった。

2. ガンマ線による放射線照射  
原子力燃料工業及び日本アイソトープ協会研究所が所有する電子線照射装置およびコバルト60を用いたMDSノーディオン社製JS-7500型ガンマ線照射装置にて各試料に放射線を照射し、線量測定をおこなった。

3. 前処理の検討  
試料が試料管に入るよう小片化する際の条件を検討し、さらに水分があるとESRは測定できないため、乾燥期間について重量変化を測定した。

4. 測定条件の検討  
試料ごとに最適な測定条件を調査した。

### [実験内容および結果]

1. 使用機器器材・測定試料の検討
  - 1.1. 使用機器及び器具
    - ・ガンマ線照射装置 MDS ノーディオン社製 JS-7500 (日本アイソトープ協会)  
Co-60 5.6TBq (H20年9月現在)
    - ・日本アイソトープ協会製アラニン線量計 当研究所で所有する電離箱線量計を、国家基準を所有する、産業技術総合研究所にて校正し、この電離箱線量計にて、アラニン素子を校正することで、日本の国家基準にトレーサビリティのある線量計としている。
    - ・アラニンベレット線量計 3.0Gyの基準照射された市販のアラニンベレット線量計
    - ・マンガンマーカ
    - ・ESR測定装置 日本電子株式会社製 JES-FA100
    - ・5mmφ石英製試料管 (Wilma 製ラボテックにて切断: 内径4mm 長さ15cm)
    - ・キムタール・キムワイブ (試料の下敷き)



- ・竹ひご (骨髄除去用、試料管に試料を押し込むための器具)
- ・歯形ドリル (新潟精器 (株) 極細ドリルセット 0.3~1.5mm: 骨髄除去用)
- ・電子天秤 (ASONE Type sefi IBX-400)
- ・真空ポンプ (東京理化学機器 EYELA FDU-220型+真空ポンプ ULVAC GCD051X)
- ・電動のこぎり (骨の切断)
- ・骨きりばさみ (大型)
- ・ピンセット
- ・針金 (骨髄除去、試料を試料管より取り出すために使用)
- ・試験管 および 試験管立て
- ・グラインダードリル機動部 (浦和工業 (株) ユーホビーセット: UHB-1)
- ・グラインダー (ダイヤモンド歯 ASONE ダイヤモンド Bセット外径1 cm、ノクトモ (株) 軸付き精密加工用ダイヤモンドミニセット外径2.35 cmの円盤形)
- ・スパーテル (骨髄除去など)
- ・医療用ステンレスはさみ (サバなどの骨の切断用)
- ・金属製トレー (食材一時保管・サンプル作成時一時保管)
- ・セラミックナイフ (肉の除去)
- ・ハンマー (ソフトハンマー (ハンマー部分がプラスチック) 貝殻の粉碎用)
- ・特殊カッター (歯形カッターナイフ: 骨の切断用)
- ・デシケーター (サンプルの乾燥用)
- ・シリカゲル (東海化学工業所、トーカイゲル)
- ・五酸化二りん (和光純薬 162-02342)
- ・温湿度計
- ・真空バック機
- ・二重バック (ジブロック)
- ・-40度冷凍庫 (試料保管)
- ・ビーカー (100ml、200ml)
- ・サランラップ (一時保管用、デシケーター内蓋用)
- ・パラフィルム (試験管の蓋)
- ・メノウ乳鉢、乳棒 (貝殻の粉碎・微小化)
- ・ふるい (各種 今回使用したのは150  $\mu$ m、メツ

シュ100)

## 1.2. 測定試料の検討

### 1.2.1 試料

カエル、サバ、ハマグリ、トリ、牛骨、今回の測定資料を以下の5つとした。

カエル: トルコ産輸入、(東京都内で購入)

サバ: 中型 熊本市場で購入 (購入時に頭と尻尾を切断)

ハマグリ: 中型 熊本市場で購入

トリ: 大腿部以下全部 熊本市場で購入 (鶏・国産ブロイラー生後52、3日)

骨付きもも肉と呼ばれている部分)

牛骨: あばら骨一式 (1頭)

その他: 東京のスーパーマーケットで購入 (カエルのみ同じ)

## 2. 放射線照射

原子力燃料工業の電子線照射施設あるいは日本アイソトープ研究所のガンマ線照射装置により、以下の照射を行った。

### 2.1.

実際に使われる放射線量が3 k Gy程度と思われるため、以下の線量とした。

0, 0.05, 0.1, 3, 5 k Gyの照射の照射。いずれかを用いて、線量依存性用・再現性調査用・経時変化用試料 1組あるいは5組の試料数とした。

## 3. 前処理方法

前処理は、各試料に、以下の条件を検討した。乾燥後、ESR用試料管に各試料を約30~40 mm程度充填し、試料高さ重量を記録し、測定試料とした。

### 3.1 カエル

①冷凍したサンプルを水道水で解凍。

②肉・組織をナイフ・ピンセットで除去

③室温にて1~2日間 乾燥

④足の骨の両端を切断し、ピンセット・針金で骨髄を除去

⑤骨髄を除去できない場合は、骨を横に切断して除去。

⑥室温にて半日から1日放置。

⑦各骨は試験に入れ、重量測定。

⑧パラフィルムで軽くふたをしてデシケーターに

設置。

⑨真空乾燥機でデシケーターを真空乾燥。(— 120度、10 p a、2—3日この値は目安)。

⑩乾燥終了後 重量測定

⑪骨をE S R試料管に設置。

⑫試料の重量測定。

⑬重量(あるいは長さ・厚みなど)を測定

⑭E S R測定

⑮測定後、保管用デシケーターに試験管に移して保管

### 3. 2. サバ

①冷凍したサンプルを水道水で解凍。

②肉・組織をナイフ・ピンセットで除去。

③骨をステンレストレーに集める。

④骨についている肉・組織をナイフ・ピンセットで除去。

⑤骨を試験に集める。

⑥室温にて半日から1日放置。

⑦重量測定。

⑧パラフィルムで軽くふたをしてデシケーターに設置。

⑨真空乾燥機でデシケーターを真空乾燥。(— 120度、10 p a、2—3日、この値は目安)

⑩乾燥終了後 重量測定

⑪骨を1—2mmに切断しE S R試料管に設置。

⑫骨の高さを調整。2—3cmの高さになるよう調整。

⑬E S R測定

⑭測定後、保管用デシケーターに試験管に移して保管

### 3. 3. ハマグリ

①冷凍したサンプルを水道水で解凍。

②肉・組織をナイフ・ピンセットで除去。

③貝殻をトレーに集める。表面の組織をピンセット・タオルなどでできる限り除去。

④貝殻をキムタオルに包みハンマーで粉砕。

⑤貝殻の破片を試験管に集める。

⑥室温にて半日から1日放置。

⑦メノー乳鉢・乳棒で貝殻を粉末に粉砕。

⑧粉末をふるいで粉末を採取(ふるい: 150  $\mu$  m、メッシュ100)

⑨粉末および残りを試験管に移し重量測定。

⑩パラフィルムで軽くふたをしてデシケー

ターに設置。

⑪真空乾燥機でデシケーターを真空乾燥。(— 120度、10 p a、2—3日)

⑫乾燥終了後 重量測定

⑬骨をE S R試料管に設置。

⑭重量・高さを調整

⑮E S R測定

⑯測定後、保管用デシケーターに試験管に移して保管

### 3. 4. トリ (骨付きも肉)

①冷凍したサンプルを水道水で解凍。

②肉・組織をナイフ・ピンセットで除去。

③骨をトレーに集める。表面の組織をピンセットなどでできる限り除去。

④室温にて半日から1日放置。

⑤骨の両端を切断。(電動のこぎり、グラインダー使用)

⑥骨を両端のからまっすぐに切断(断面が長方形になる)

⑦骨髄をグラインダー・ピンセットなどで除去

⑧試料管に入るようにチップを作成。表面の組織をグラインダーなどで除去

⑨サンプルを試験管に保管

⑩パラフィルムで軽くふたをしてデシケーターに設置。

⑪真空乾燥機でデシケーターを真空乾燥。(— 120度、10 p a、2—3日)

⑫乾燥終了後 重量測定

⑬E S R試料管に設置(試料管に入る大きさに微調整)

⑭重量・長さ・厚みなどを測定

⑮E S R測定

⑯測定後、保管用デシケーターに試験管に移して保管

### 3. 5. 牛骨

①冷凍したサンプルを水道水で解凍。

②表面の肉・組織をナイフ・ピンセットで除去。

③骨をトレーに集める。表面の組織をピンセットなどでできる限り除去。

④室温にて半日から1日放置。

⑤骨の両端を切断。(電動のこぎり、グラインダー使用)



図5-1 ハマグリの前処理

- a) ハンマーで砕いたところ
- b) 右グラインダーで削った粉、左乳鉢で粉碎した粉
- c) 乳鉢で粉碎している様子



図5-2 牛骨付き肉の骨 (a) 水洗いをして肉を除去して表面を乾燥させた。(b) 骨を縦に切り、骨髓をかき出し乾燥前の状態。



図5-3 使用した機材、グラインダー、骨のカッター

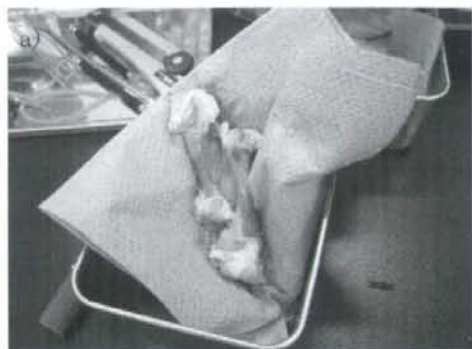
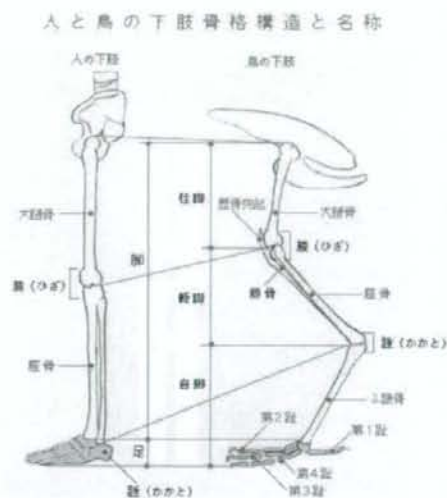


図5-4 とりの骨とカエルの骨（大腿部），（a）とり（b）カエルの大腿骨  
（c）カエルの骨髓は緑色。これを針金で除去。

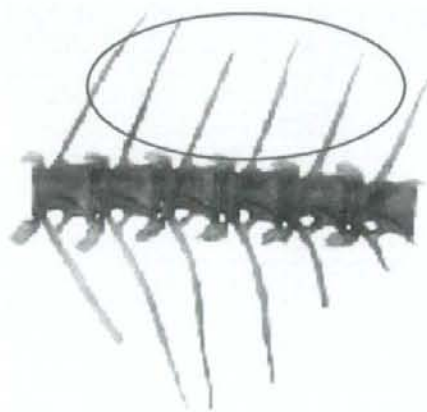


図5-5 サバの保存状態（a）と取り出した骨（b）

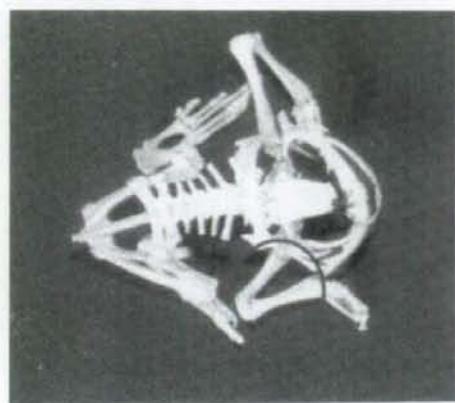
図5-5 参考図 使用した骨の部分



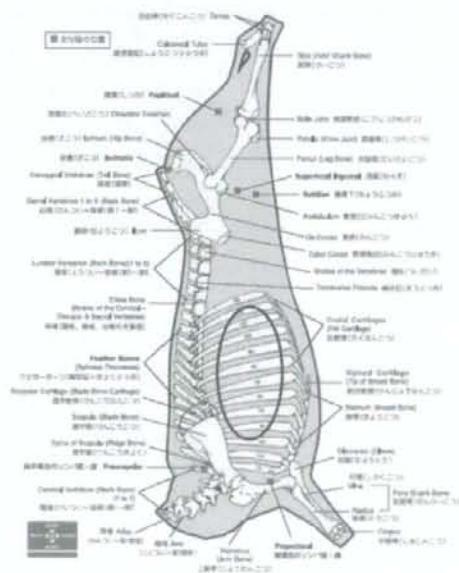
鳥の骨の使用部分 (○の部分)



サバの骨の使用部分 (○の部分)



カエルの骨の使用部分 (○の部分)



牛骨の使用部分 (○の部分)

⑥骨が大きいので骨の筋に沿って切断。(牛骨のあばらは扁平なので、切断面が長方形になるように切断)

⑦骨髄をグラインダー・ピンセットで除去

⑧試験管に入るようにチップを作成。表面の組織をグラインダーなどで除去

⑨チップ、残りを試験管に移し、パラフィルムで軽くふたをしてデシケーターに設置。

⑩真空乾燥機でデシケーターを真空乾燥。(—120度、10 Pa、2-3日目安)

⑪乾燥終了後 重量測定

⑫チップをESR試験管に設置。

⑬重量・長さ・厚みなどを測定

⑭ESR測定

#### 4. 測定条件の検討

ESRの測定条件について以下の方法で調査した。試料の各種類によってESR測定条件を検討した。

##### 4.1. マイクロ波パワーの適正値の設定

ESR測定装置 JES-FA100にて、5 k Gyを照射した各試料について、マイクロ波パワーを、0.1から10 m Wに変化させてゆき、測定対象であるラジカルのピークの高さを測定し、シグナル強度および平方根(マイクロ波パワー)の関係からの飽和領域および直線領域を求め決定した。

##### 4.2. モジュレーションの最適値の検討

ESR測定装置 JES-FA100にて、5 k Gyを照射した各試料について、モジュレーションを、0.32から2 m Tに変化させてゆき、測定対象であるラジカルのラジカルピークの高さを測定し決定した。

##### 4.3. 掃引速度・時定数・掃引回数の検討

マイクロ波出力および磁場変調領域と、レゾネーターの内標準物質のMnのシグナルとを考慮し、測定範囲で磁場掃引幅は5 m Tと設定した。また、シグナルの状態より、時定数は0.1秒、掃引時間は1~2分と決定した。掃引回数は1回である。

#### 5 標準品

キャピティの内標準である日本電子(株)製のマンガンマーカ―とGamma-Service社製アラニンペレット 30 Gy照射 を用いた

#### 5.1. ESRシグナル強度の規格化の方法

ESR装置そのものが各ロットで性能に若干のばらつきがあること、また、水分含量および試料の形状によって感度変動することから、定量的なデータの保証が困難になると想定し、Mnマーカ―とアラニンペレット(既知線量照射品)のESRシグナルから試料のシグナルの規格化を行った。

(1) Mnマーカ―(各試料によって設定値; 測定部への挿入量が異なる)を使用して、アラニンペレット(既知線量照射品)のESRシグナル強度を測定する。

(2) アラニンペレットのメインピークのESRシグナル強度に対するMnマーカ―のESRシグナル(6本線のうち3本め)強度の比R'を求める。

(3) アラニンペレット(30 Gy)のメインピークのESRシグナル強度に対するMnマーカ―(6本線のうち3本め)のESRシグナル強度の比Rを計算する。

(4) 試料を(1)と同じMnマーカ―を使用して、(1)と同じ条件で測定する。

(5) Mnマーカ―(6本線のうち3本め)のESRシグナル強度に対する試料のESRシグナルをの強度の比S'を求める。

(6) (3)と(5)より、アラニンペレット(既知線量品)のESRシグナル強度に対する試料のESRシグナル強度の比Sを求める。

○Mnマーカ―のシグナル強度は測定部に挿入されるマーカ―の長さ依存しているため、各試料で固定しておくこと。途中で挿入量を変えると計算が必要になる。

○日本電子製のFAシリーズの場合、600~800の目盛りの挿入量を使用した。この量を調整する場合、高線量の試料のシグナルが大きいため、低線量の試料でそろえた。

○アラニンペレットは今回30 Gyの物を使用した。

上記方法の計算式

アラニンペレット(既知線量照射品)の線量D(Gy)、アラニンペレット(既知線量照射品)のESRシグナル強度(DI)に対するMnマーカ―(6本線のうち3本め)のESRシグナル強度(M)

の比 ( $R' = M/DI$ )

アラニンペレット ( $X Gy$ ) の ESR シグナルの強度に対する Mn マーカー (6 本線のうち 3 本め) の比 ( $R = R' / (X/D)$ )、Mn マーカーのシグナル強度 ( $M$ ) に対する試料の ESR シグナルの強度 ( $I$ ) の比 ( $S' = I/M$ )  
アラニンペレット ( $X Gy$ ) の ESR シグナルの強度に対する試料の ESR シグナルの強度の比 ( $S = S' \times R$ )

○今回の実験では、アラニンペレットは 30 Gy を使用した。

○アラニンペレット (既知線量照射品) を今回は上記 30 Gy で照射した物を使ったことにする。

○ESR は微分波形であるため、“山一谷” (peak to peak: pp) をシグナル強度にする。

#### 6. ESR 装置再現性試験

##### 試料固定の再現性

アラニンペレット (30 Gy) を日本電子 (株) 特製のアラニン専用試料管に設置し、試料管の装着・取り出しの再現性の検討を行った。アラニンペレットは円筒状であるため、試料管では方向性がないものとし、ただし、試料管の測定部のぶらつきがあることを考慮し、試料管に印をつけ、ある一定の位置に試料管が測定部におさまるように考慮した。試験結果は表 1 の通り。

信号強度は アラニンペレットの中央の ESR シ

表 5-1 ESR 装置の再現性

| 試行番号   | ESR 強度 |
|--------|--------|
| 1      | 693    |
| 2      | 680    |
| 3      | 689    |
| 4      | 701    |
| 5      | 703    |
| 6      | 685    |
| 7      | 700    |
| 8      | 680    |
| 9      | 709    |
| 10     | 695    |
| 合計     | 6935   |
| 平均     | 693.5  |
| 標準偏差   | 9.94   |
| CV (%) | 1.432  |

グナルと、Mn マーカー (6 本のうちの 3 本め) の相対強度である。

##### ESR パラメータ

Fre Q: 9402.464 MHz

Field Cent.: 335.228 mT /

Width +/- : 10 mT

Micro Power: 1 mW

Sweep Time: 4 min.

Time Const.: 0.3 sec

Accum.: 1

##### 7-1 ESR 試料としての形状の検討

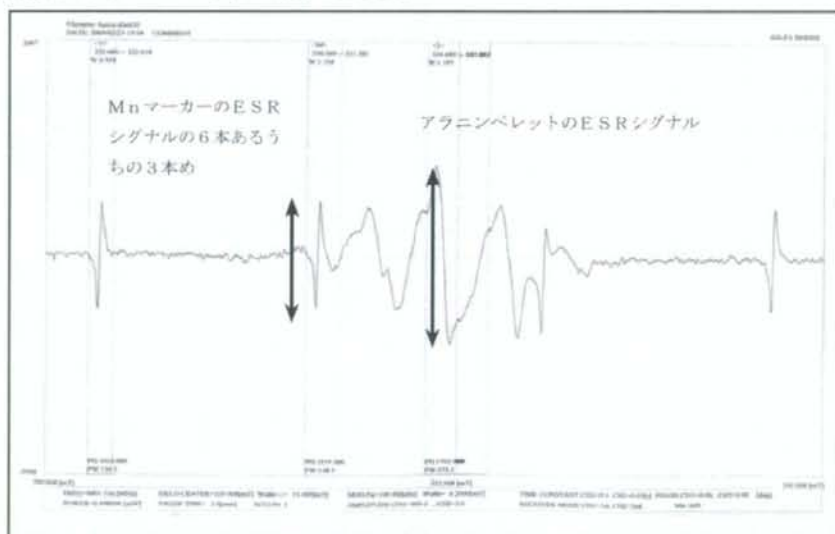


図 5. 6 アラニンペレット (30 Gy) と Mn マーカーの ESR スペクトル

ESR装置は、試料管の大きさある程度変えて測定可能であるが、研究班内で統一した規格を用いることになった。ただし、メーカーによって若干の規格差が生じている。この研究においてはラボテック（株）の石英試料管を15 cmに加工して用いた。規格は次のとおり。

LST-5HS

外径：5.0 mm

内径：4.0 mm

肉厚：0.5 mm

ストレート管（元の長さは30 cm）

外径、内径ともに精度の保証なし。

本製品がWilmad社で加工・日本電子規格の特注品であり、元の製品より長さを30 cmで加工している。元の製品は、710-SQ-250Mという型番の製品である。カタログによれば、外径および内径は上記の規格しか保証していない。

そのため、ブルカ製e-scanでは外径が規格外（おそらく数マイクロの誤差）でフォルダーにおさまらないという現実に直面したが、今回は食品がサンプルであり、試料の加工による精度が、試料管精度による影響を上回ると予測したため、上記の試料管を使用した。

#### 《試料の形状》

カエル： 大腿骨の骨髄を除去後、そのまま使用。ただし、試料管に入らない場合は、カッターなどで切断し調整。サイズは約1.6～2.0 cm

サバ： 背骨から出ている側骨を採取（背骨を加工すれば測定可能であることは確認）ただし、骨の大きさがまちまちであるため、試料管に入れる時の充填率の問題が生じるため、1～2 mmに切断が、試料管に設置。竹ひごで空隙がなくなるように押し込んだ。

ハマグリ： 貝の表面をガーゼやタオルなどで柔らかい組織をとるのも限界があり、ハンマーで粉砕したあとのメノウ乳鉢で微細粉末にし、ふるいをかけた粉末を試料管に充填した。この場合、一定の大きさの貝を使用しているが、重量については個体差があることを確認。また、粉末の色の差が生じていることも確認した。

トリ： 断面が楕円形を合わせた形状になってい

ることから、グラインダーで切り出し、約30～40 mmの長さで試料管に入る幅に調整。形状的に扁平のような形をとりねじれた形をとり、また、試料管に入らない部分はカッター等で切断した。

牛骨： トリの形状より扁平な形をしているが、骨表面の筋にそって扁平に切断し、骨の厚みが大きい場合は棒状に加工した。牛骨においても骨の個体差（あばら骨の部位）があった。

#### 7-2 ESR試料の乾燥状態の検討

ESR装置は、試料の水分含量や測定条件の微妙な変動により、ピーク高さが変化する。そこで、標準となるマンガンマーカ―を同時に測定し、このマーカ―との比を示すことで、異なる試料のピーク高さを規格化する測定法が一般的である。これは、水分含量が高い場合などで、感度が低下する場合、マンガンマーカ―の値も低くなることを利用している。そのため、測定部に設置した試料内部の水分含量によるマイクロ波の吸収が大きい場合、Mnマーカ―のシグナル強度を観測し試料の再調整の必要を確認できる。しかしながら、サバ、貝などは組織・肉を除去するだけで、ESR測定が可能となることから、水分含量が少ないと思われる。ただし、ESRデータを試料重量で補正する必要があるため、デシケータに設置する前後の重量を測定した。重量は試験管と試料を併せた値である。

乾燥条件：①室温放置 約2日、②デシケータ内（五酸化りん存在下）真空ポンプ 約3日、③デシケータ内（五酸化りん存在下）放置 約7日  
結果は以下の通り

表7-1 カエルの乾燥結果

| 照射量<br>(k Gy) | 番号     | 乾燥前<br>(g) | 乾燥後<br>(g) | 差 (g)  |
|---------------|--------|------------|------------|--------|
| 5             | 1      | 7.943      | 7.929      | 0.014  |
| 5             | 2      | 7.968      | 7.895      | 0.073  |
| 2             | 3      | 8.004      | 7.959      | 0.045  |
| 0.5           | 4      | 7.989      | 7.928      | 0.061  |
| 0             | 5      | 7.898      | 7.835      | 0.063  |
|               | 平均値    | 7.9604     | 7.9092     | 0.0512 |
|               | SD     | 0.042      | 0.047      | 0.023  |
|               | CV (%) | 0.525      | 0.600      |        |



表7-2 サバの乾燥結果

| 照射量<br>(k Gy) | 番号     | 乾燥前<br>(g) | 乾燥後<br>(g) | 差 (g)  |
|---------------|--------|------------|------------|--------|
| 5             | 1      | 8.175      | 8.097      | 0.078  |
| 5             | 2      | 8.032      | 7.919      | 0.113  |
| 2             | 3      | 8.288      | 8.132      | 0.156  |
| 0.5           | 4      | 8.198      | 8.063      | 0.135  |
| 0             | 5      | 8.16       | 8.075      | 0.085  |
|               | 平均値    | 8.1706     | 8.0572     | 0.1134 |
|               | SD     | 0.0920     | 0.0815     | 0.033  |
|               | CV (%) | 1.126      | 1.013      |        |

表7-3 ハマグリ乾燥結果

| 照射量<br>(k Gy) | 種類 | 番号     | 乾燥前<br>(g) | 乾燥後<br>(g) | 差 (g)  |
|---------------|----|--------|------------|------------|--------|
| 5             | M  | 11     | 10.5058    | 10.48      | 0.0258 |
| 5             | G  | 10     | 8.377      | 8.377      | 0      |
| 5             | M  | 9      | 10.556     | 10.384     | 0.172  |
| 5             | G  | 8      | 8.417      | 8.411      | 0.006  |
| 5             | H  | 7      | 8.175      | 8.171      | 0.004  |
| 2             | G  | 6      | 8.456      | 8.453      | 0.003  |
| 2             | M  | 5      | 10.381     | 10.356     | 0.025  |
| 0.5           | G  | 4      | 8.467      | 8.461      | 0.006  |
| 0.5           | M  | 3      | 10.675     | 10.639     | 0.036  |
| 0             | G  | 2      | 8.422      | 8.418      | 0.004  |
| 0             | M  | 1      | 10.497     | 10.472     | 0.025  |
|               |    | 平均値    | 9.3571     | 9.356      | 0.027  |
|               |    | SD     | 1.140      | 1.127      | 0.013  |
|               |    | CV (%) | 12.187     | 12.04      |        |

M: メノー乳鉢で粉砕 G: グライNDERで粉末化, H: ハンマーで粉砕

表7-4 トリの乾燥結果

| 照射量<br>(k Gy) | 番号     | 乾燥前<br>(g) | 乾燥後<br>(g) | 差 (g)  |
|---------------|--------|------------|------------|--------|
| 5             | 1      | 8.901      | 8.688      | 0.213  |
| 5             | 2      | 10.545     | 9.973      | 0.572  |
| 5             | 3      | 8.893      | 8.672      | 0.221  |
| 2             | 4      | 8.1788     | 8.072      | 0.1068 |
| 2             | 5      | 8.866      | 8.618      | 0.248  |
| 0.5           | 6      | 8.527      | 8.345      | 0.182  |
| 0.5           | 7      | 8.819      | 8.541      | 0.278  |
| 0             | 8      | 9.105      | 8.781      | 0.324  |
|               | 平均値    | 8.979      | 8.71125    | 0.2681 |
|               | SD     | 0.356      | 0.273      | 0.085  |
|               | CV (%) | 3.966      | 3.131      |        |

表7-5 牛骨の乾燥結果

| 照射量<br>(k Gy) | 番号     | 乾燥前<br>(g) | 乾燥後<br>(g) | 差 (g) |
|---------------|--------|------------|------------|-------|
| 5             | 1      | 11.42      | 10.727     | 0.693 |
| 5             | 2      | 10.49      | 9.84       | 0.65  |
| 5             | 3      | 10.567     | 9.805      | 0.762 |
| 2             | 4      | 11.537     | 10.757     | 0.78  |
| 2             | 5      | 10.408     | 10         | 0.408 |
| 0.5           | 6      | 11.076     | 10.201     | 0.875 |
| 0             | 7      | 10.445     | 9.88       | 0.565 |
| 0             | 8      | 12.475     | 11.475     | 1     |
| 0             | 9      | 10.442     | 9.985      | 0.457 |
| 0             | 10     | 11.797     | 10.928     | 0.869 |
|               | 平均値    | 11.066     | 10.360     | 0.706 |
|               | SD     | 0.884      | 0.684      | 0.230 |
|               | CV (%) | 7.995      | 6.604      |       |

## 8. カエル

## 8.1. カエル大腿骨の条件設定

## (1) ESRの測定条件 1

キャピティの内標準物質であるマンガンマーカールの6本のシグナルのうち、3番目と4番目の間に照射後のシグナルが検出できることから、これらのESRシグナルが現在の装置で問題なく測定可能である条件を設定した。なお、照射強度によりシグナル変化から、シグナル強度は照射量に依存し、また、複数のシグナルが重なっていると判断されたため、5 k Gyの照射した試料のシグナルをもとに磁場変調においては、スペクトル全体がゆがまず、かつ、最大信号強度付近になる値を設定した。

この値は磁場変調周波数100 kHz/0.2 mTである。また、マイクロ波出力においては、信号強度と平方根(出力値)の関係が直線になる値を求めた。その結果、1 mWと決定した。

試料の高さ(長さ)は、16.5~19.8 mm、重量は6.2~9.2 mgで行った。これら試料の重量のばらつきは大きい、高さについてはCV

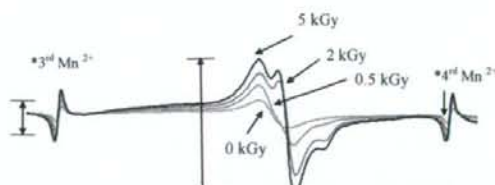


図8-1 カエルの骨の信号強度と照射量の関係

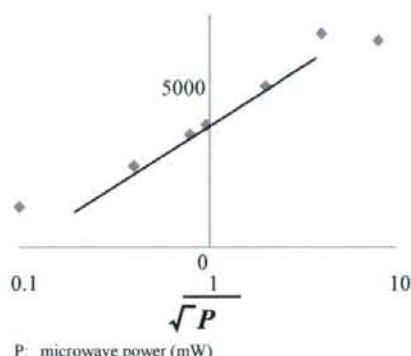


図8-2 カエルの骨(照射量5 kGy)とマイクロ波出力値の関係

(%)が7%であるため、ここでの目的がESRの測定条件であるため、照射試料のラジカル量に与える影響は微小と考へ補正は行わなかった。

カエルの大腿部のESR条件(例)

Microwave: 9431.318MHz /1mW \*

Field: 335.709 ± 5mT \*

modulation: 100kHz/0.2mT

TC: 0.1sec, Sweep Time: 2min \*

AMP: × 800 \*

マーカーの値: 600~800 \*

\*マイクロ波周波数は、サンプルの試料の大きさ・形状(曲がり・直線性など)によって、また、若干の水分含量などによって共鳴周波数の値は変動する。

\*共鳴磁場は、上記の共鳴周波数によって決定するため(操作上の優先順位のため)、マンガンマーカーを含めた全体のシグナルが低磁場側あるいは高磁場側へ若干ずれることがある。この場合は、左右のマンガンマーカーのシグナルが1.0mTの磁場掃引幅に入るように設定する。

\*時定数(Time Constant: TC)と掃引時間は、磁場掃引幅とS/N比の関係から、最適値があるためこの値とした

\*AMP(拡大・縮小)においては、今回使用した日本電子製のESR装置(FAシリーズではダイナミックレンジが広く取られている)がデジタル信号処理され、スペクトル表示される。よって、標準表示で提供される幅の中でこの値を決定し

た。

## (2) ESR測定条件 2

マンガンマーカーのキャビティへの挿入値は、試料の0.5 kGy照射したものを参考にして、決定した。ただし、ロットによってマンガンマーカーは、同一条件下において線幅および信号強度にばらつきが生じる可能性がある。600~800の値とした。

## (3) ESRスペクトルの同定

照射していない骨と照射した骨の差スペクトルをとり、g値の計算を行った。その結果、低磁場側の照射していない骨においても確認されるシグナルのg値は2.004、差スペクトルから得られたg値は、2.002および1.999であった。このことから、非照射においてあるいは照射後にも確認される低磁場側のシグナルは、カーボンあるいは有機ラジカルと推定され、一方、照射量に依存してシグナル強度が大きくなる物は、骨の構成成分であるハイドロキシアパタイトが骨組織に内包されてラジカル化されているものと判断した。

g値の算出には、マンガンマーカーのg値とそのマーカー信号の間隔から、試料スペクトルに記

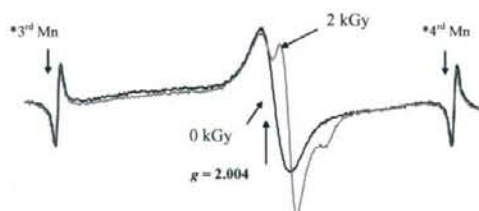


図8-3 非照射と2 kGy照射したカエルの骨のESRスペクトル

非照射: 1本のシグナル、照射: 二本のシグナル

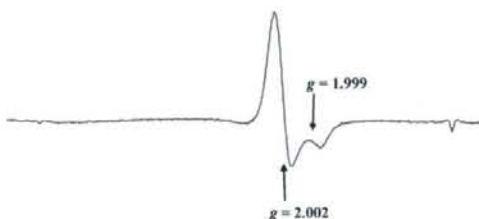


図8-4 カエルの大腿骨の差スペクトル(図8-3より作成)

した矢印の  $g$  値を算出した。これには日本電子製の F A シリーズの機能である周波数によるマンガンマーカの  $g$  値補正プログラム (標準装備) で行った。図 8-3 および 4 から判断されることは、

- ①非照射の ESR シグナル ( $g=2.004$ ) は骨髄由来のカーボンラジカル (有機ラジカル) と思われる。
- ②カーボンラジカルは照射量に応じてシグナル強度が強くなる傾向がある。
- ③ハイドロキシアパタイトラジカル ( $g=2002$ ) は、カーボンラジカルのシグナルと重なっているので、高線量の照射では確認できる。
- ④ハイドロキシアパタイトラジカル ( $g=2002$ ) は、差スペクトル (未照射・照射) を作成すると、確

認できる。

以上のことから、カエルの大腿骨の照射量依存的な判断は難しいと推定される。

## 8.2 カエル大腿骨の ESR シグナル照射量依存性の確認

コバルト 60 による照射量は、 $0.05 \cdot 0.1 \cdot 1 \cdot 3 \cdot 5$  kGy である。0 kGy は本研究室で保管した物を用いた。各照射量に対して個体数 5 個以上、照射後、凍結保存し、解凍後、グラインダーで切屑・骨髄除去後、大腿骨を試料とした。を行った。(3.1 カエルの骨のプロトコール参照) 一匹のカエルより大腿骨および脛骨は各 2 本を一組として、骨髄あり・なしの試料を作成した。

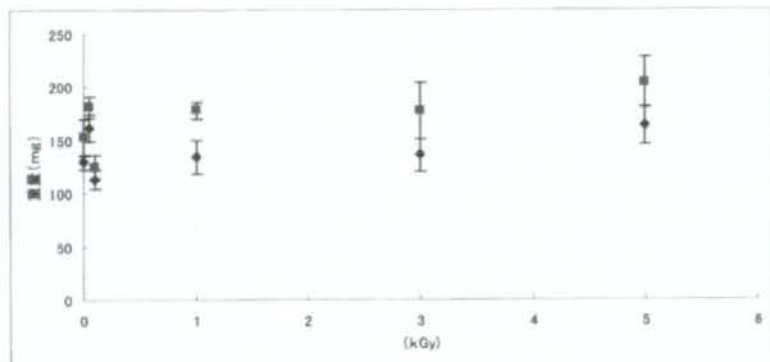


図 8-5 カエルの大腿骨の重量 (mg) と照射量の関係

各照射プロットのバーは平均重量の標準偏差を示す。

正方形：骨髄あり ダイヤ：骨髄除去 ( $n=3 \sim 8$ )

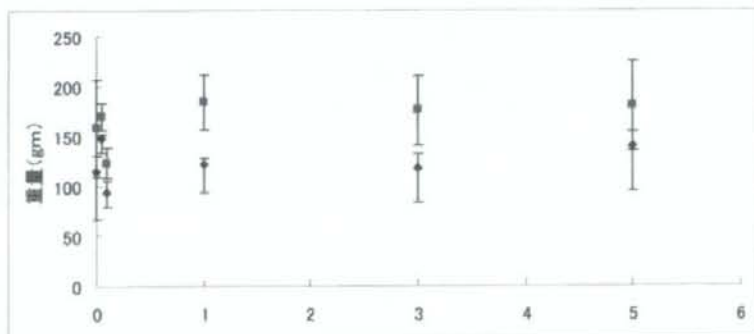


図 8-6 カエルの脛骨の重量 (mg) と照射量の関係

各照射プロットのバーは平均重量の標準偏差を示す。

正方形：骨髄あり ダイヤ：骨髄除去 ( $n=3 \sim 8$ )

図8-5・6からわかるように、骨髄の除去によって、重量は変化した。しかしながら、脛骨は2本の細い筒状の骨が重なっており、骨髄を取り除くことは難しい。一方、大腿骨は容易に針金やヤスリのような形状の加工用品で容易に取り除くことができるが、完全に取り除くのは難しい。

### 8.3 カエル骨チップのESRパターンとその検知のための要素

カエルの骨について、大腿骨と脛骨、さらに骨髄を除去したものと除去しない試料についてスペクトルパターンを4つの図に示す。

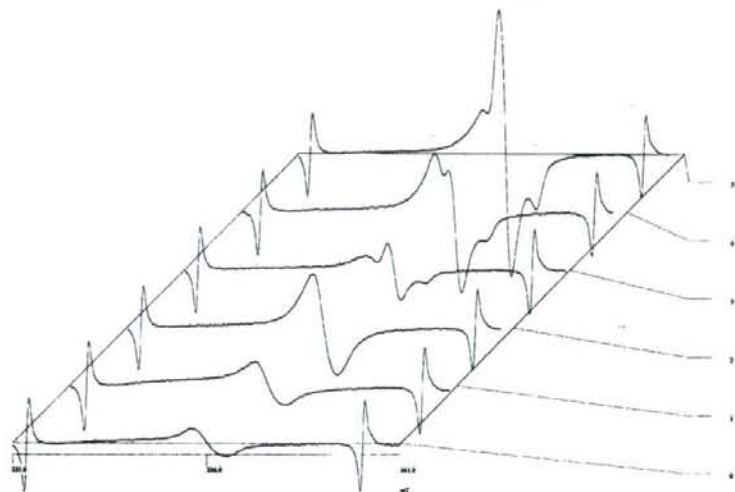


図8-7 カエルの大腿骨 骨髄除去  
下から、0, 0.05, 0.1, 1, 3, 5kGyの照射量

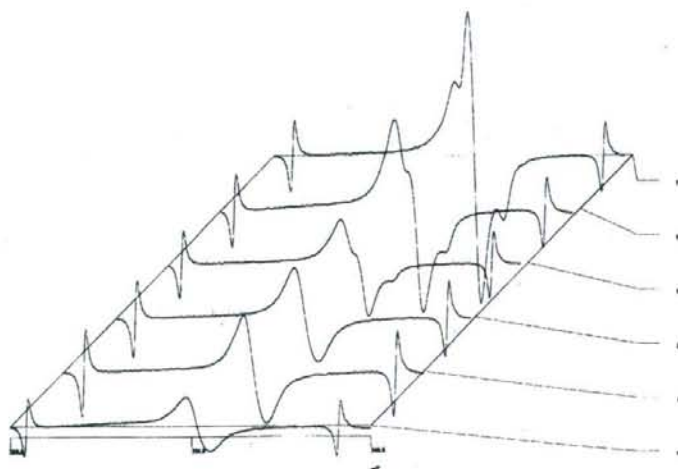


図8-8 カエルの大腿骨 骨髄除去せず(有り)  
下から、0, 0.05, 0.1, 1, 3, 5kGyの照射量