

磁場 (mT)						
No.						
0 kGy	M1	M2	g1	g2	g3	g4
1	331.363	340.041	335.606	**	**	**
2	331.358	340.036	335.63	**	**	**
3	331.299	339.976	335.704	**	**	**
4	331.327	340.004	335.702	**	**	**
5	331.343	340.02	335.712	**	**	**
0.05 k Gy						
1	331.322	339.999	335.691	336.255	336.655	337.199
2	331.131	339.808	335.48	336.064	336.475	336.998
3	331.284	339.96	335.571	336.206	336.606	337.181
4	331.29	339.966	335.538	336.179	336.583	337.162
5	331.244	339.921	335.623	336.198	336.557	337.193
0.1 k Gy						
1	331.199	339.874	335.548	336.122	336.482	337.105
2	331.232	339.909	335.642	336.145*	336.504	337.098
3	331.261	339.938	335.609	336.174	336.543	337.168
4	331.273	339.951	335.694	336.197	336.576	337.181
5	331.238	339.915	335.623	336.155	336.505	337.11
1 k Gy						
1	331.258	339.935	335.104	336.171	336.54	337.145
2	331.022	339.698	334.911	335.937	336.297	336.908
3	331.096	339.774	334.943	336.02	336.389	336.994
4	331.121	339.798	334.873	336.039	336.397	337.011
5	331.153	339.829	335.027	336.079	336.434	337.06
3 k Gy						
1	331.289	339.965	335.145	336.216	336.577	337.182
2	331.166	339.842	335.015	336.089	336.451	337.053
3	331.1869	339.863	335.063	336.115	336.471	337.089
4	331.284	339.96	335.149	336.204	336.563	337.17
5	331.244	339.921	335.105	336.169	336.526	337.135
5 k Gy						
1	331.122	339.798	334.965	336.055	336.424	337.019
2	331.196	339.871	335.064	336.135	336.494	337.099
3	331.201	339.876	335.047	336.123	336.49	337.1
4	331.275	339.953	335.119	336.195	336.564	337.178
5	331.45	340.127	335.316	336.378	336.738	337.341

図 12-17 牛の骨チップから求められた ESR シグナルの磁場の値

* シグナルの“ピーク”と判別が難しいもの

** 拡大するとピークらしき物が見えるが、これは F A シリーズのダイナミックレンジが広い
ためであり、S/N の分離がよくない状態での判断である。よって、g 値は求めないことにする。

g 値						
No.						
0kGy	M1	M2	g1	g2	g3	g4
1	2.0329	1.981	2.0067			
2	2.0329	1.981	2.007			
3	2.0329	1.981	2.0062			
4	2.0329	1.981	2.0064			
5	2.0329	1.981	2.0064			
0.05 k Gy						
1	2.0329	1.981	2.0064	2.0031	2.0007	1.9975
2	2.0329	1.981	2.0066	2.0031	2.0006	1.9975
3	2.0329	1.981	2.0069	2.0031	2.0007	1.9973
4	2.0329	1.981	2.0071	2.0033	2.0009	1.9975
5	2.0329	1.981	2.0064	2.0029	2.0008	1.997
0.1 k Gy						
1	2.0329	1.981	2.0065	2.0031	2.001	1.9973
2	2.0329	1.981	2.0062	2.0032	2.001	1.9975
3	2.0329	1.981	2.0066	2.0032	2.001	1.9973
4	2.0329	1.981	2.0061	2.0031	2.0009	1.9973
5	2.0329	1.981	2.0063	2.0032	2.0011	1.9975
1 k Gy						
1	2.0329	1.981	2.0063	2.0032	2.0011	1.9975
2	2.0329	1.981	2.0093	2.0032	2.001	1.9974
3	2.0329	1.981	2.0096	2.0031	2.0009	1.9973
4	2.033	1.981	2.0101	2.0032	2.001	1.9974
5	2.0329	1.981	2.0094	2.0031	2.001	1.9973
3 k Gy						
1	2.0329	1.981	2.0095	2.0031	2.0009	1.9974
2	2.033	1.981	2.0095	2.0031	2.001	1.9974
3	2.0329	1.981	2.0094	2.0031	2.001	1.9973
4	2.0329	1.981	2.0094	2.0031	2.001	1.9974
5	2.0329	1.981	2.0095	2.0031	2.001	1.9974
5 k Gy						
1	2.0329	1.981	2.0096	2.0031	2.0009	1.9973
2	2.0329	1.981	2.0094	2.003	2.0009	1.9973
3	2.0329	1.981	2.0096	2.0031	2.0009	1.9973
4	2.0329	1.981	2.0096	2.0031	2.001	1.9973
5	2.0329	1.981	2.0094	2.0031	2.001	1.9974
平均	2.0329	1.981	2.0080	2.0031	2.0009	1.9974
SD	0.00005	0	0.0015	0.00008	0.00012	0.00011

図 12-18 牛骨チップから求められた ESR シグナルの磁場の g 値

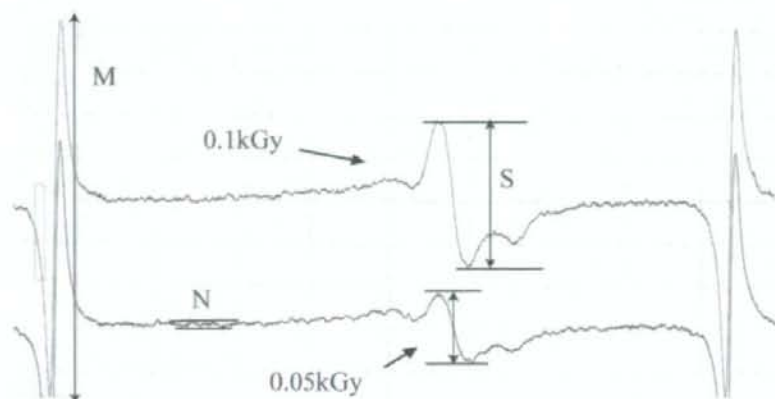


図 12-1.9 低線量照射したトリの骨チップの ESR スペクトル

以上のような結果からスペクトル上の各位置 (g 値) は、平均値がより正しい g 値であると考えられるが、実用範囲を想定して、次のような大まかな g 値を設定する。

M1 = 2.032 +/- 0.001, M2 = 1.981 +/- 0.001,
 g1 = 2.007 +/- 0.002, g2 = 2.003 +/- 0.001,
 g3 = 2.002 +/- 0.001,
 g4 = 1.997 +/- 0.001,

このさらに、実用的なシグナルの幅 (間隔) は、
 M1-M2 = 8.68 +/- 0.01 mT,
 g2-g3 = 0.38 +/- 0.01 mT,
 g3-g4 = 0.57 +/- 0.01 mT
 g2-g4 = 0.96 +/- 0.01 mT
 と、設定する。

照射量 : 0.05 kGy スペクトルについて

シグナル強度とノイズレベル : S/N = 191 / 27 = 7.07

マンガンマーカとの比較 : S/M = 191 / 1029 = 0.186

照射量 : 0.1 kGy スペクトルについて

シグナル強度とノイズレベル : S/N = 361 / 31 = 11.65

マンガンマーカとの比較 : S/M = 361 / 923 = 0.391

2つの骨チップは異なる個体から作成したものであるが、照射量は 2 : 1 であり、S/M の ESR 信号強度は約 2 : 1 であった。非照射の試料 (個体が異なる) の骨チップのシグナル。非照射ですでにバックグラウンドのシグナルが出ていることを考慮すれば、妥当な数字と考えられる。以上の結果から、0.05 k Gy であれば、S/N 比を 3 以上であること、また、照射量にある程度の直線性がみられることから、0.05 k Gy であれば、照射した試料と判断できる可能性がある。バックグラウンドの大きさにもよることから、実際の照射・未照射を判別するのは、S/N の "3" の 4 倍の値である 0.1 kGy が限界と思われる。

D 考察

以上の結果から、今回行った 5 個の試料に関しては、以下に示す線量以上の食品では、放射線照射が検知できる可能性が高いことがわかった。

今後、試験室間の実験を行うことで、さらにその可能性を確認することが望ましい。

別紙 1 ESR 測定条件

1. 共通部分

測定温度 室温 (測定は装置の電源を入

れ、マイクロ波出力を1mWで他の測定条件も設定後、1時間放置すること)

掃引幅	10mT
マイクロ波周波数	9.4GHz (サンプルで変動する)
出力	0.2~2mW
変調周波数	100kHz
変調磁場幅	0.1×2mT
時定数	0.1秒
掃引時間	1分

マンガンマーカ: 測定対象によってマーカ信号を固定すること。

F 学会発表等

(1) 第12回 ESR フォーラム 2008年7月5~6日: 宮崎大学医学部

放射線被曝線量計としての ESR の適用について基礎的検討

(崇城大学・薬) ○増水章季、竹下啓蔵 (原子燃料工業株式会社)、吉田 哲生、武川 哲也 (日本アイソトープ協会) 廣庭 隆行 (国立医薬品食品衛生研究所) 宮原 誠

(2) Joint Conference of the 13th In Vivo ESR/EPR Spectroscopy & Imaging and the 10th International EPR Spin Trapping/Spin Labeling: Biomedical Redox Navigation (EPR2008): 9月28(日)~30(火) 会場: JAL リゾート シーホークホテル福岡

On the Use of ESR (Electron Spin Resonance) Spectroscopy Method for Detection of Irradiated Foods, 1Toshiki Masumizu, 2Tetsuo Yoshida, 2Tetsuya Takekawa, 3Masahito Okano, 4Hideyuki Hara, 5Takayuki Hironiwa, 6Makoto Miyahara

1Faculty of Pharmaceutical Sciences, Sojo University, Kumamoto, Japan. 2Nuclear Fuel Service Industries, LTD, 3JEOL Ltd., 4Bruker Biospin K.K., 5 Japan Radioisotope Association, 6National Institute of Health

Sciences, On the Use of ESR (Electron Spin Resonance) Spectroscopy Method for Detection of Irradiated Foods ; ○Toshiki Masumizu, 2Tetsuo Yoshida, 2Tetsuya Takekawa, 3Masahito Okano, 4Hideyuki Hara, 5Takayuki Hironiwa, 6Makoto Miyahara

(3) 第47回電子スピンサイエンス学会年会 (SEST2008), 2008年10月1日(水)~3日(金) 会場: 九州大学医学部百年講堂

① ESR による照射乾燥果実の検知に関する基礎的研究その1 照射糖類の ESR シグナルについて、○吉田 哲生・武川 哲也・廣庭 隆行・岡野 和史・原 英之・増水 章季・宮原 誠、原子燃料工業株式会社・日本アイソトープ協会・ブルカー・バイオスピン株式会社・崇城大学・国立医薬品食品衛生研究所

② 骨付き肉および魚介類の照射食品検知に関する ESR 法の研究、○増水 章季・吉田 哲生・武川 哲也・岡野 和史・原 英之・廣庭 隆行・宮原 誠、崇城大学・原子燃料工業株式会社・ブルカー・バイオスピン株式会社・(社)日本アイソトープ協会・国立医薬品食品研究所

③ ESR を用いたセルロースを含む照射食品検知に関する研究

○廣庭 隆行・吉田 哲生・岡野 和史・原 英之・増水 章季・宮原 誠、(社)日本アイソトープ協会・原子燃料工業株式会社・ブルカー・バイオスピン株式会社・崇城大学・国立医薬品食品研究所

(4) SFRBM's 15th Annual Meeting, November 19-23, 2008 - Marriott Hotel Indianapolis, Indiana USA, (Thurs - Sat:)

On the Use of ESR (Electron Spin Resonance) Spectroscopy Method: A Step Towards The Improvement of Sensing Technique for Irradiated Foods, 1Toshiki Masumizu, 2Tetsuo Yoshida, 2Tetsuya Takekawa, 3Masahito Okano, 4Hideyuki Hara, 5Takayuki Hironiwa, 6Makoto Miyahara, 1Faculty of Pharmaceutical Sciences, Sojo University, Kumamoto, Japan. 2Nuclear Fuel Service Industries, LTD, 3JEOL Ltd., 4Bruker Biospin K.K., 5 Japan Radioisotope Association, 6National Institute

of Health Sciences,

(5) 第25回 日本薬学会九州支部大会、日時:

平成20年12月6日(土)~7日(日)

放射線照射食品に対するESRを用いた照射検知の
検討

崇城大学・薬1、原子燃料工業㈱2、日本電子㈱3、

ブルカー・バイオスピン㈱4、(社)日本アイソトープ

協会5、国立医薬品食品研究所6 増水草季1、

吉田哲生2、武川哲也2、岡野和史3、原 英之4、

廣庭隆行5、宮原 誠 6

薬学会・九州支部会総会 12/6-7 (発表

は7日)

平成 20 年度 厚生労働科学研究
食品の安心・安全確保推進研究事業

放射線照射食品の検知法に関する研究
放射線照射食品の ESR 検知法（糖）の試験に関する研究
原子燃料工業株式会社 吉田哲生 赤土雄美

○研究要旨

ESR による照射乾燥果実の検知法についての技術的な検討を行なった。取り組んだ検討項目は、1) 試料形態の影響確認、2) 乾燥条件の影響確認、3) 保管期間の影響確認、4) 線量の影響確認である。これらの検討結果より、検知法の原案を作成し、その実用性を、実験室内再現性試験により調査した。この結果、本試験に使用した 8kGy 照射乾燥果実試料 5 種類のうち、マンゴー、バナナ、パイン、及びアップ

ルの 4 種類については、照射の検知が可能であることを確認した。

A 研究目的

ESR による照射乾燥果実の検知についての技術的な検討を行ない、検知法の原案を作成することを目的とする。

B 実験方法

1. 試料、装置、条件等

1-1 試料

- ・ シュークローズ (Sigma-Aldrich 社製 SigmaUltra, >99.5% GC)
- ・ フルクトース (Sigma-Aldrich 社製 SigmaUltra)
- ・ 乾燥果実 5 種類 (マンゴー, バナナ, パイン, アップル, 及びココナッツ (表 B-1 参照))

1-2 装置、実験器具

- ・ 照射装置 (原子燃料工業(株)が所有する IBA

社製 電子線加速器ロードトロン TT-300)

・ ESR 測定装置 (Bruker BioSpin 社製 e-scan (図 B-1 参照))

・ アラニンペレットの ESR 測定用ホルダー (Bruker BioSpin 社製 専用ホルダー)

・ 電子天秤 (メトラー製 AT400)

・ デシケーター (直径 300mm 程度, 高さ 300mm 程度のもの)

・ 真空ポンプ (アルバック機工製 DOP-40D)

・ メス

・ 竹ひご (径 2mm 程度のもの)

・ ふるい (粒度を 63 ~ 125 μ m (目開き) に揃えることができるもの)

・ ビーカー及びガラス棒 (糖を粉砕する際に使用するもの)

1-3 試薬等

表 B-1 乾燥果実試料の一覧

試料の種類	マンゴー	バナナ	パイン	アップル	ココナッツ
原材料	マンゴー, 砂糖, クエン酸, 漂白剤 (亜硫酸塩), 着色料 (黄色 4 号, 黄色 5 号)	バナナ, 漂白剤 (亜硫酸塩)	パイン, 砂糖, パイン果汁, クエン酸, 漂白剤 (亜硫酸塩)	りんご, 砂糖, クエン酸, 漂白剤 (ピロ亜硫酸ナトリウム), 香料	ココナッツ, 砂糖, 食塩, 漂白剤 (亜硫酸塩)
原産国	タイ	タイ	タイ	中国	タイ

(注) 上記乾燥果実試料は、東京都内のスーパーマーケットで、2009 年 9 月に購入した。

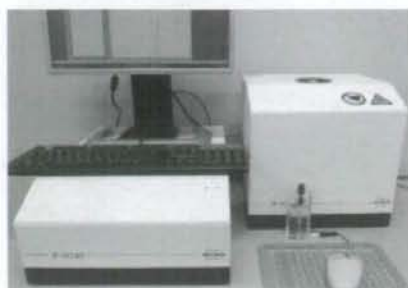


図 B-1 e-scan の外観の写真

- ・石英製 ESR 試料管 (Norell 社製 S-5-EPR-250S)
- ・五酸化リン 25g 入 (関東化学製 特級品)
- 1-4 標準品
- ・アラニンペレット (表 B-2 参照)
- ・Mn マーカー
- 1-5 ESR 測定条件

本研究における ESR 測定条件を表 B-3 に示す。マイクロ波パワーについては、ESR シグナル強度が飽和していない領域 (図 B-2 のグラフで右側からの直線性が保たれている領域) で、できるだけ

表 B-2 アラニンペレット (Gamma-Service 社製) の仕様

比率 (アラニン/バイリンダー)	0.96 / 0.04
重量	63.2 ± 0.6 mg
直径	4.80 ± 0.04 mm
高さ	2.99 ± 0.02 mm
密度	1.17 ± 0.02 g/cm ³

(注) 本研究では、90Gy 照射品を使用。線量は、英国 NPL に測及可能。

表 B-3 ESR 測定条件

マイクロ波周波数	9.8 GHz
マイクロ波パワー	0.576 mW
中心磁場	351 mT
掃引磁場	15 mT
変調強度	0.209 mT
変調周波数	86 kHz
積算回数	8 回
データポイント	512 ポイント
サンプリング時間	10.24 ms
掃引時間	5.24 S
時定数	40.96 ms
ゲイン	1.0 × 10 ⁻³

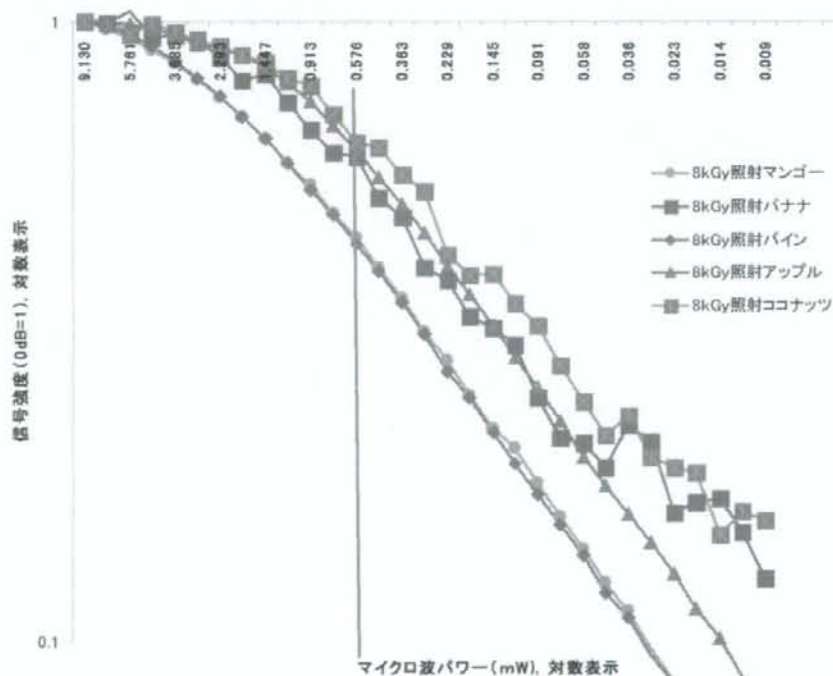


図 B-2 マイクロ波パワーと照射乾燥果実の ESR シグナル強度の関係

大きいシグナルが得られるように、0.576mW に設定した。

1-6 ESR シグナル強度の規格化の方法

以下の方法により、アラニンペレット（100Gy 相当）のメインピークの ESR シグナル強度を基準として、対象試料の ESR シグナル強度を規格化した。規格化に関する計算式を表 B-4 に示す。

- (1) Mn マーカー※1 を使用して、アラニンペレット（既知線量照射品※2）の ESR シグナル強度を測定する。
- (2) 「アラニンペレット（既知線量照射品）のメインピークの ESR シグナル強度」に対する「Mn マーカーの第 4 ピークの ESR シグナル強度」の比 R' を求める。（図 B-3 参照）

- (3) 「アラニンペレット（100Gy 相当）のメインピークの ESR シグナル強度」に対する「Mn マーカーの第 4 ピークの ESR シグナル強度」の比 R を計算する。※3

- (4) 乾燥果実等の対象試料を、(1) と同じ Mn マーカーを使用して、(1) と同一条件で測定する。
- (5) 「Mn マーカーの第 4 ピークの ESR シグナル強度」に対する「対象試料のメインピークの ESR シグナル強度」の比 S' を求める。
- (6) (3) 及び (5) より、「アラニンペレット（100Gy 相当）のメインピークの ESR シグナル強度」に対する「対象試料のメインピークの ESR シグナル強度」の比 S を求める。

※1 (2) の R' が 0.5 ～ 2 倍程度となるように、

表 B-4 ESR シグナル強度の規格化に関する計算式

項目	記号（計算式）
アラニンペレット（既知線量照射品）の線量 (Gy)	D
「アラニンペレット（既知線量照射品）のメインピークの ESR シグナル強度」に対する「Mn マーカーの第 4 ピークの ESR シグナル強度」の比	R'
「アラニンペレット（100Gy 相当）のメインピークの ESR シグナル強度」に対する「Mn マーカーの第 4 ピークの ESR シグナル強度」の比	$R = R' / (100 / D)$
「Mn マーカーの第 4 ピークの ESR シグナル強度」に対する「対象試料のメインピークの ESR シグナル強度」の比	S'
「アラニンペレット（100Gy 相当）のメインピークの ESR シグナル強度」に対する「対象試料のメインピークの ESR シグナル強度」の比	$S = S' \times R$

（注）ESR シグナル強度は、ピーク最大値と最小値の差とすること

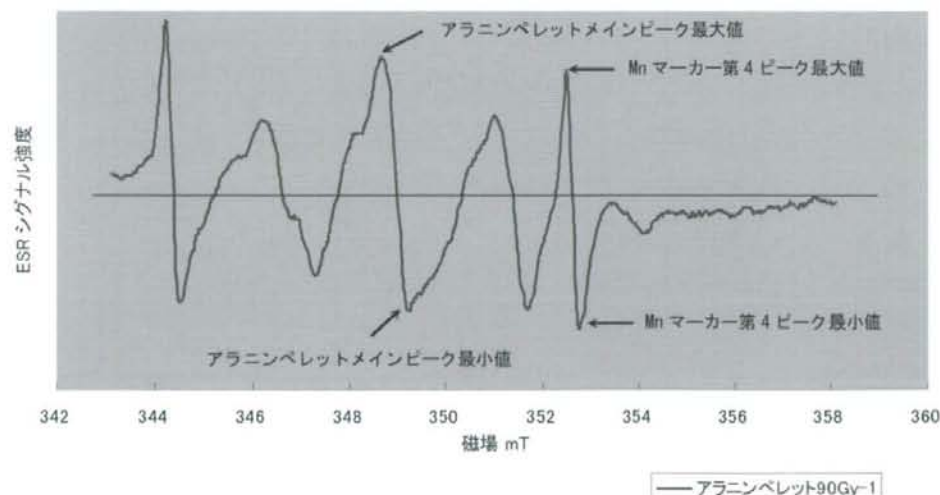


図 B-3 アラニンペレット（既知線量 90Gy 照射品）の ESR スペクトル

Mn マーカーの量を予め調整する。

※2 線量は、100Gy 程度とする。本研究では、90Gy 照射品を使用した。

※3 アラニンペレット (100Gy 相当) の ESR シグナル強度は、アラニンペレット (90Gy 照射品) の ESR シグナル強度の $100/90 = 1.11$ 倍として計算する。

2. 検討試験

2-1 ESR 測定装置の安定性確認試験

本研究に使用する ESR 測定装置の安定性を確認するため、Mn マーカーを使用してアラニンペレット (既知線量照射品) を、同一の測定条件で繰り返し 10 回測定し (アラニンペレットを毎回取り出して再挿入)、「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 マーカーの第 4 ピークの ESR シグナル強度」の比の再現性を確認した。

2-2 試料の形態の影響確認試験

ESR シグナル強度は試料の形態により変化する。特に、試料管内での試料の高さは、ESR シグナル強度に及ぼす影響が大きいと考えられる。本試験では、試料の高さ 5 ~ 20mm の範囲について、試料の高さを変えて ESR 測定を実施し、試料の高さが ESR シグナル強度に及ぼす影響を調査した。

本試験に使用する試料について、乾燥果実では、試料管内での試料の高さ以外の要因 (含まれる糖の量のばらつき等) で ESR シグナル強度がばらつきと予想され、試料の高さが ESR シグナル強度に及ぼす影響を評価することは、困難であると予想された。このため、本試験では、乾燥果実の代わりに、試薬のシュークロースを使用した。シュークロースは、乾燥果実の試料形態を十分に模擬できる試料ではない可能性はあるが、試料の高さの影響を評価するための試料としては、適当であると思われる。

試験方法を以下に示す。

(1) 試料

シュークロースを本試験の試料とした。

(2) 照射前の試料調製

シュークロースをピーカーに入れて、ガラス棒により粉砕した。粉砕した粒子をふるいにかけて、粒度を 63 ~ 125 μ m (目開き) に揃えた。

高さ (mm)	目標値 (mm)	高さ 測定値 (mm)	重量 測定値 (mg)
5		5	36.9
10		11	84.1
15		14	124.9
20		18	168.5

(3) 試料の照射

目標線量を 0.5kGy として 10MeV 電子線照射を実施した。試料表面の線量測定結果は、0.5kGy であった。

(4) 照射後の試料の調製

試料の高さが、5、10、15、20mm (目標値) の 4 水準となるように、重量を測定した試料を試料管に挿入した。試料管内での試料の高さを測定した。重量及び高さの測定結果を表 B-5 に示す。

(5) ESR 測定

表 B-3 に示した条件で、ESR 測定を実施した。

2-3 乾燥条件の影響確認試験

乾燥果実試料に含まれる水分量を減らすことにより、ESR シグナルが得られやすくなることが期待できる。本試験では、乾燥条件により含有水分率がどの程度変化するか調査し、また、乾燥条件が ESR シグナル強度に及ぼす影響を調査した。試験方法を以下に示す。

(1) 試料

乾燥果実 5 種類 (マンゴー、バナナ、パイナップル、ココナッツ) を本試験の試料とした。

(2) 照射

ESR 測定用の試料に対し、目標線量を 1kGy として 10MeV 電子線照射を実施した。試料表面の線量測定結果は、1.0kGy であった。

(3) 乾燥処理の条件

以下に示す 3 通りの乾燥条件について調査した。

乾燥条件 1: 乾燥処理なし

乾燥条件 2: 五酸化リンを設置したデシケーター内で、室温で 2 日間真空乾燥

乾燥条件 3: 五酸化リンを設置したデシケーター内で、室温で 5 日間真空乾燥

(4) 乾燥処理

乾燥果実試料を、ハサミまたはメスを使用して 10 ~ 20mm 程度の大きさに切り取った。切断片を開

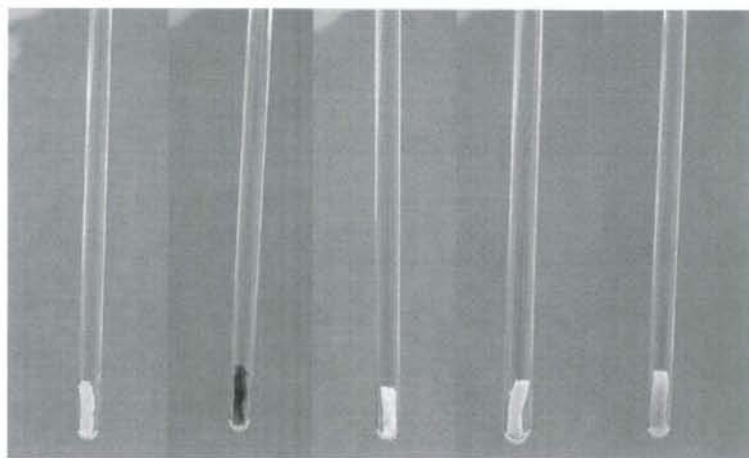


図 B-4 乾燥果実を挿入した試験管の写真

(左から順に、マンゴー、バナナ、パイナップル、アップル、ココナッツ)

放した容器に入れて、この容器をデシケーター内に設置した。また、五酸化リン (25g 入り) のビンの蓋をはずして、このビンデシケーター内に設置した※4。真空ポンプを使用して、室温にて真空乾燥を実施した。

※4 直径が 300mm 程度、高さが 300mm 程度のデシケーターを使用した。五酸化リン (25g 入り) の設置本数は、乾燥果実試料の切断片の数量により変更した。(五酸化リン 1 本当たり、切断片が 20 個程度以下となるようにした。) また、真空乾燥の途中で五酸化リンの表面が湿って吸水力が十分ではないと思われる場合には、真空乾燥を中断して五酸化リンを交換し、真空乾燥を再開した。

(5) 含有水分率の評価

下記方法により、各乾燥条件の試料について、含有水分率を求めた。

含有水分率の評価方法:

乾燥果実の外側部分の糖分が多く含まれていそうな部位から、目標重量を 50mg として切り取り、切り取った試料の重量 W_1 (mg) を測定する。この切り取った試料に対し、 105°C で 24 時間の熱処理を実施してから、重量 W_2 (mg) を測定する。ここでの重量変化量 $W_1 - W_2$ (mg) を、本試験における水分量と定義する。含有水分率は、 $(W_1 - W_2) / W_1 \times 100$ (%) となる。

(6) ESR 測定用の試料の調製

照射後の試料から、乾燥条件 1 と、乾燥条件 2 の

試料を用意した。各乾燥条件の試料について、乾燥果実の外側部分の糖分が多く含まれていそうな部位から、長さが 5 ~ 10mm 程度で目標重量を 50mg として切り取って、重量を測定し、ESR 試験管に挿入した。試験管の写真を図 B-4 に示す。

(7) ESR 測定

表 B-3 に示した条件で、ESR 測定を実施した。

2-4 保管期間の影響確認試験

照射乾燥果実の保存中に、照射乾燥果実に含まれる糖ラジカルが減少していき、ESR シグナル強度が減衰していく可能性が考えられる。本試験では、照射から ESR 測定までの保管期間の長さが ESR シグナル強度に及ぼす影響を調査した。試験方法を以下に示す。

(1) 試料

乾燥果実 5 種類 (マンゴー、バナナ、パイナップル、アップル、ココナッツ) を本試験の試料とした。

(2) 照射

目標線量を 8kGy として 10MeV 電子線照射を実施した。試料表面の線量測定結果は、8.1kGy であった。

(3) 乾燥処理

照射後の試料を、2-3(3) の乾燥条件 2 (五酸化リンを設置したデシケーター内で、室温で 2 日間真空乾燥) により、乾燥させた。乾燥処理の方法は、2-3(4) に示した通りである。

(4) 試料の調製

乾燥処理後の試料について、乾燥果実の外側部分の糖分が多く含まれている部位から、長さが5～10mm程度で目標重量を50mgとして切り取って、重量を測定し、ESR試料管に挿入した。

(5) 保管期間及び保管方法

照射からESR測定までの保管期間は、3、16、38、56日間とした。試料管内（大気圧）にて室温で保管した。

(6) ESR測定

表B-3に示した条件で、ESR測定を実施した。

2-5 線量の影響確認試験

乾燥果実試料及びシュウクロースについて、線量とESRシグナル強度の関係を調査した。試験方法を以下の(1)～(7)に示す。また、含有する主要な糖類がシュウクロースである乾燥果実試料※5については、同じ線量が照射されたシュウクロースとのESRシグナル強度の比較により、含有する糖分の比率を評価した(8)参照)。

※5 本研究に使用した照射乾燥果実試料の

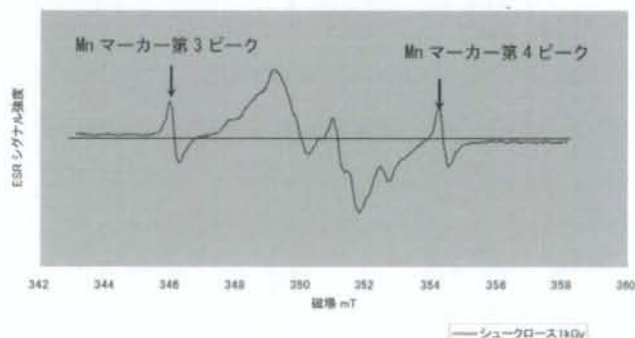
ESRスペクトルを、照射シュウクロースのESRスペクトルと比較したところ、マンゴー、パイン、アップルについては、ESRスペクトルの波形がシュウクロースと類似していることが確認された(図B-5～B-8参照)。このため、これら3種類は、含まれている主要な糖類がシュウクロースであると考えられる。なお、各乾燥果実試料のG値、線幅については、「4. 実験室内再現性試験」で求めた。

(1) 試料

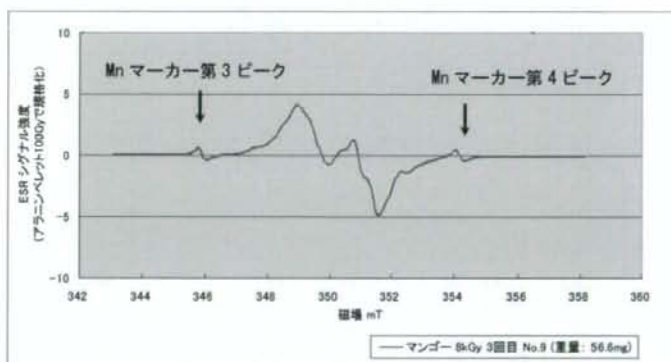
乾燥果実5種類(マンゴー、バナナ、パイン、アップル、ココナッツ)シュウクロース、フルクトースを本試験の試料とした。

(2) 照射前のシュウクロース(フルクトース)の調製

試薬のシュウクロース(フルクトース)をビーカーに入れて、ガラス棒により粉砕した。粉砕した粒子をふるいにかけて、粒度を63～125 μ m(目開き)に揃えた。



図B-5 照射シュウクロースのESRスペクトル



図B-6 照射マンゴーのESRスペクトル

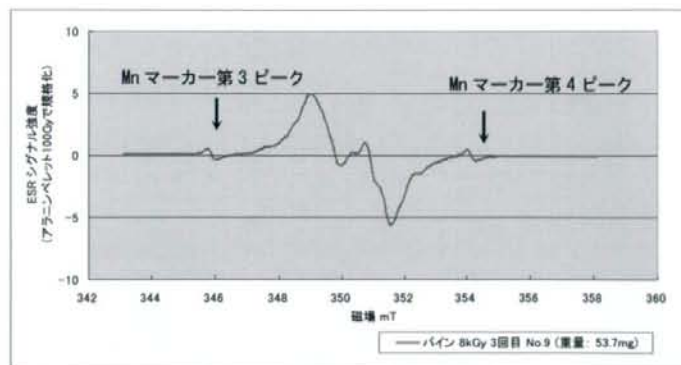


図 B-7 照射パインの ESR スペクトル

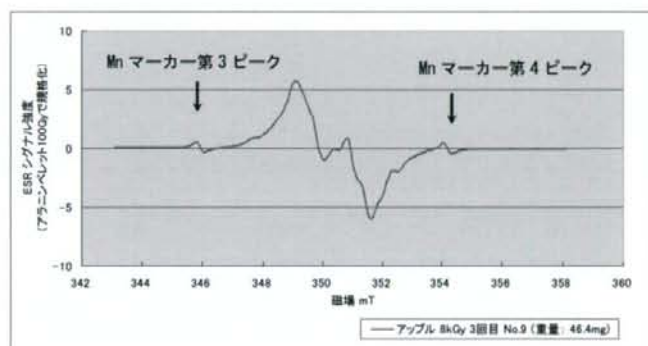


図 B-8 照射アップルの ESR スペクトル

(3) 照射

10MeV 電子線照射を実施した。目標線量及び試料表面の線量測定結果を表 B-6 に示す。

(4) 乾燥果実試料の乾燥処理

2-3(3) の条件 2 (五酸化リンを設置したデシケーター内で、室温で 2 日間真空乾燥) により、乾燥させた。乾燥処理の方法は、2-3(4) に示した通りである。

(5) 乾燥果実試料の調製

乾燥処理後の試料について、乾燥果実の外側部分の糖分が多く含まれていそうな部位から、長さが 5 ~ 10mm 程度で目標重量を 50mg として切り取って、重量を測定し、ESR 試料管に挿入した。

(6) 照射後のシュークロース (フルクトース) の調製

試料の高さが 5mm 程度となるように、重量を測定した試料を試料管に挿入した。

表 B-6 線量測定結果

目標線量 (kGy)	試料表面の線量測定結果 (kGy)
0 (未照射)	
0.5	0.5
1	1.0
2	2.0
5	5.1

(7) ESR 測定

表 B-3 に示した条件で、ESR 測定を実施した。

(8) 含有する糖分の比率の評価

マンゴー、パイン、アップルについて、同じ線量が照射されたシュークロースと ESR シグナル強度 (試料の重量により規格化した値) を比較して、下記 2 つの仮定のもとで、含有する糖分の比率を評価した。

仮定 1: 乾燥果実に含まれる糖類がすべてシュー

クローズであると仮定。

仮定2: 同一線量を照射した試料のESRシグナル強度が糖の量に比例すると仮定。

3. 検知法の原案の作成

検討試験の結果に基づき、検知法の原案を作成した。検知法の原案には、試料の乾燥処理の方法、調製方法、ESRシグナル強度の規格化の方法、ESR測定方法、照射の有無の判定方法等を定めた。

4. 実験室内再現性試験

検知法の原案の実用性を評価するため、照射乾燥果実試料に対して、検知法の原案に従い検知を繰り返し試みて、結果の再現性を確認した。試験方法を以下に示す。

(1) 試料

乾燥果実5種類（マンゴー、バナナ、パイナップル、ココナッツ）を本試験の試料とした。なお、ココナッツについては、検知法の原案の対象食品とはしなかったが（「C 実験結果」の「3. 検知法の原案」参照）、参考データを得るため、他の種類の乾燥果実と同様に試験を実施した。

(2) 試験回数及び試料数

各種類の試料について、試験回数を3回とし、試験1回当たりの試料数をn=3とした。

(3) 照射

目標線量を8kGyとして10MeV電子線照射を実施した。試料表面の線量測定結果は、1回目8.1kGy、2回目8.0kGy、3回目8.0kGyであった。

表C-1 ESRシグナル強度の比の再現性確認結果

	「アラニンベレット（90Gy照射品）のメインピークのESRシグナル強度」に対する「Mnマーカーの第4ピークのESRシグナル強度」の比
1回目	1.022
2回目	1.025
3回目	0.997
4回目	1.022
5回目	1.019
6回目	1.020
7回目	1.018
8回目	0.991
9回目	1.013
10回目	1.044
平均	1.017
標準偏差	0.0148
CV (%)	1.46

(4) 保管期間

照射からESR測定までの保管期間は、3～9日間（作成した検知法の原案の手順中の乾燥処理の時間を含む）とした。

(5) ESRによる検知

作成した検知法の原案に従い、照射試料の検知を試みた。なお、本試験の試料は、照射/非照射が未知の試料ではない（照射試料である）ため、検知法の原案の手順のうち、標準線量照射に関する手順は省略した。

C 実験結果

1. 試料、装置、条件等

本研究に関する試料、装置、条件等は、「B 実験方法」の「1. 試料、装置、条件等」に示した。検討試験結果、検知法の原案、実験室内再現性試験結果を次項以降に示す。

2. 検討試験

2-1 ESR測定装置の安定性確認試験

「アラニンベレットのESRシグナル強度」に対する「MnマーカーのESRシグナル強度」の比の再現性確認結果を表C-1に示す。1回目のESRスペクトルを図C-1に示す。

ESRシグナル強度の規格化のためのデータを表C-2に示す。本研究においては、Mnマーカーの第4ピークのESRシグナル強度の大きさを0.915として、乾燥果実等の対象試料のESRシグナル強度を規格化した。

2-2 試料の形態の影響確認試験

0.5kGy照射シュークローズの試料重量に対するESRシグナル強度の関係を図C-2に示す。これより、測定した範囲内（重量40～170mg程度）では、ESRシグナル強度と試料重量とは、比例関係に近いことが確認できた。

試料の高さに対する単位重量当たりESRシグナル強度の関係を図C-3に示す。これより、測定した

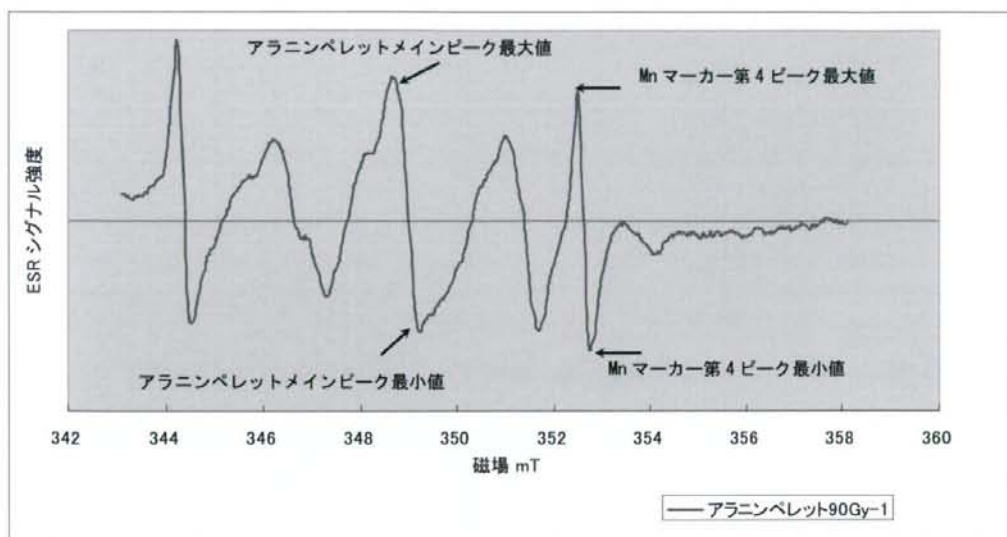


図 C-1 アラニンペレット（既知線量 90Gy 照射品）の ESR スペクトル

表 C-2 ESR シグナル強度の規格化のためのデータ

	値	備考
「アラニンペレット（90Gy 照射品）のメインピークの ESR シグナル強度」に対する「Mn マーカーの第 4 ピークの ESR シグナル強度」の比	1.017	2-1 ESR 測定装置の安定性確認試験結果の平均値
「アラニンペレット（100Gy 相当）のメインピークの ESR シグナル強度」に対する「Mn マーカーの第 4 ピークの ESR シグナル強度」の比	0.915	$1.017 / (100 / 90) = 0.915$

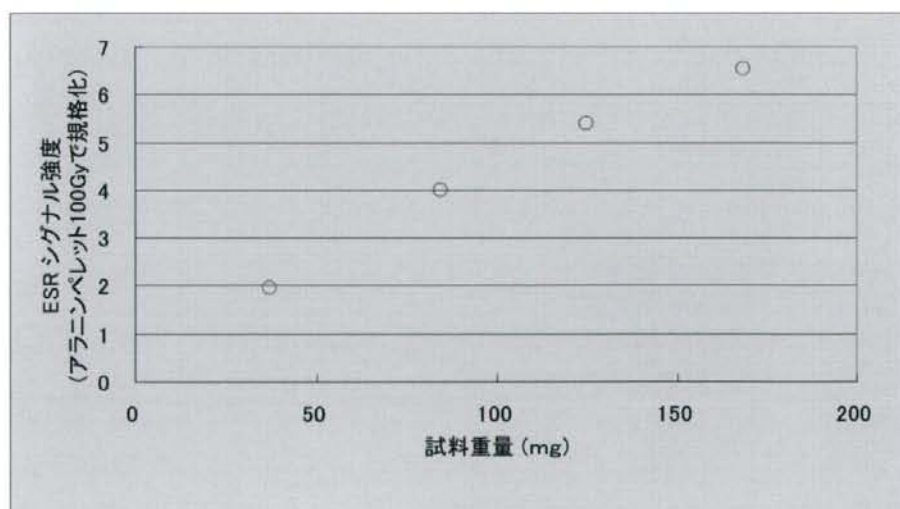


図 C-2 試料重量に対する ESR シグナル強度の関係 (0.5kGy 照射シュエクロース)

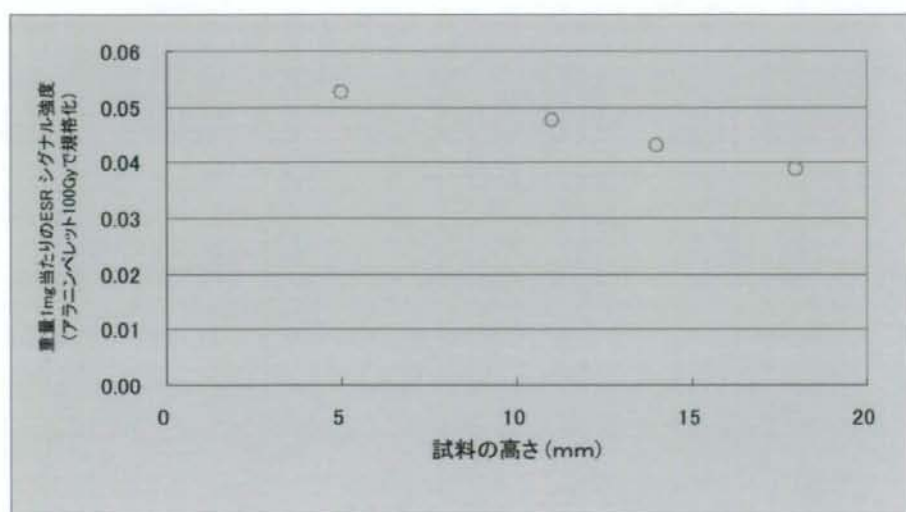


図 C-3 試料の高さに対する単位重量当たりの ESR シグナル強度の関係

(0.5kGy 照射シェークコース)

範囲内 (試料の高さ 5 ~ 18mm 程度※6) では、試料が高くなるほど単位重量当たりの ESR シグナル強度は小さくなったが、試料の高さが 5mm の場合と 18mm ※6 の場合を比較しても単位重量当たりの ESR シグナル強度は 30% 程度しか変化しないことが確認できた。

※6 目標値 20mm として用意した試料の高さの実測値が 18mm であった。

2-3 乾燥条件の影響確認試験

乾燥果実試料について、五酸化リンを設置したデシケーター内 (室温) での真空乾燥時間と含有水分率の関係を図 C-4 に示す。詳細な測定データは添付表 1 に示す。マンゴー、バナナ、パイン、アッ

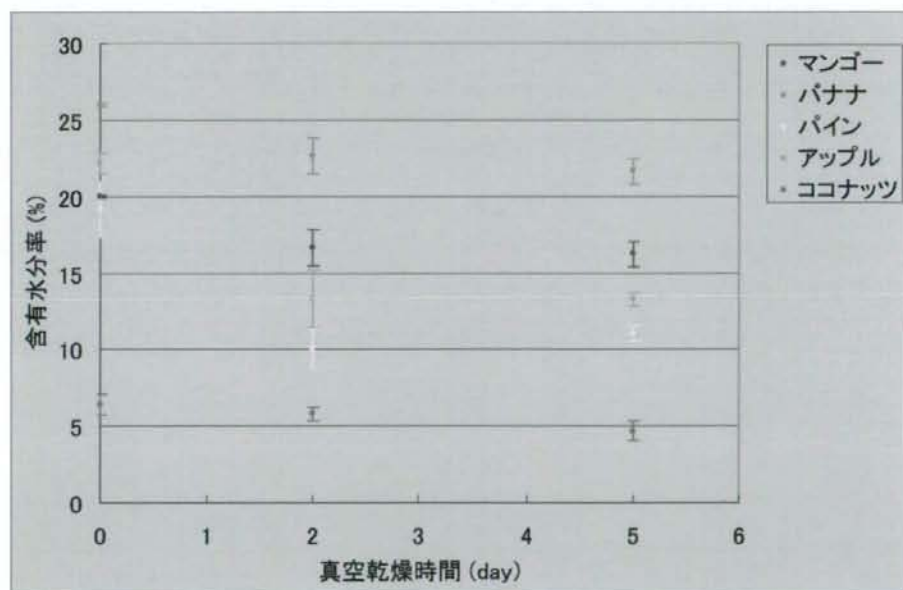


図 C-4 真空乾燥時間と含有水分率の関係

(試料数 n=3 グラフ表示方法: 平均値±標準偏差)

ブルについて、真空乾燥2日間の含有水分率は、真空乾燥0日間よりも減少していることが確認できた。真空乾燥2日間と5日間の含有水分率を比較したところ、有意差は確認できなかった。

各種類の照射乾燥果実試料について、真空乾燥0日間と2日間でESRシグナル強度を比較した結果を、図C-5～C-9に示す。いずれの試料についても、真空乾燥によるESRシグナル強度の有意差は、

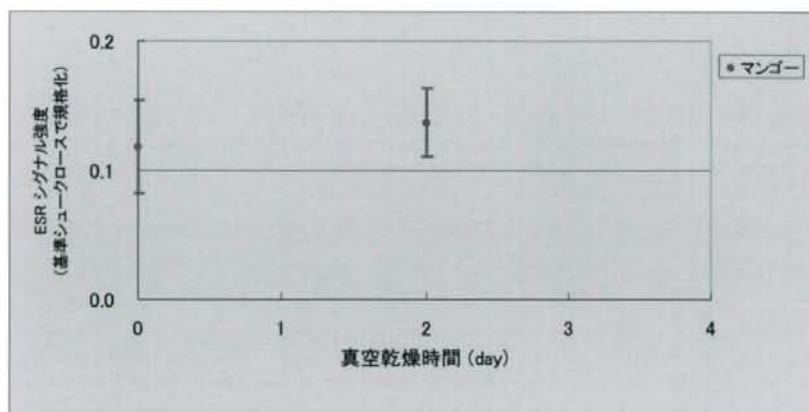


図 C-5 真空乾燥時間と ESR シグナル強度の関係 (1kGy 照射マンゴー 50mg 換算)
 (ESR シグナル強度は、同線量を照射したシュクロース 50mg を基準として規格化)
 (試料数 n=3 グラフ表示方法：平均値±標準偏差)

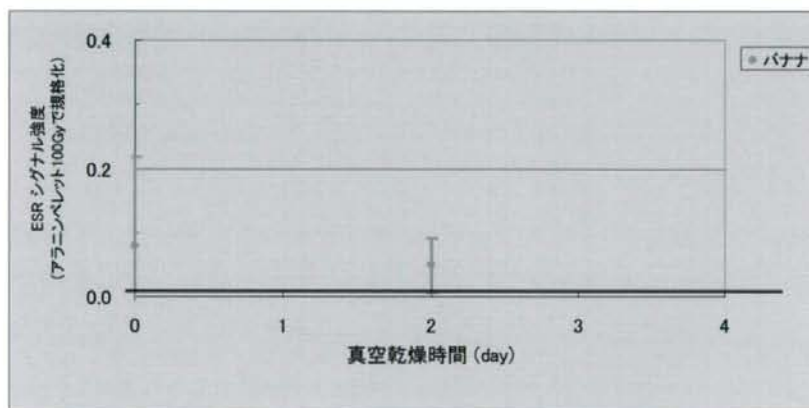


図 C-6 真空乾燥時間と ESR シグナル強度の関係 (1kGy 照射バナナ 50mg 換算)
 (試料数 n=3 グラフ表示方法：平均値±標準偏差)

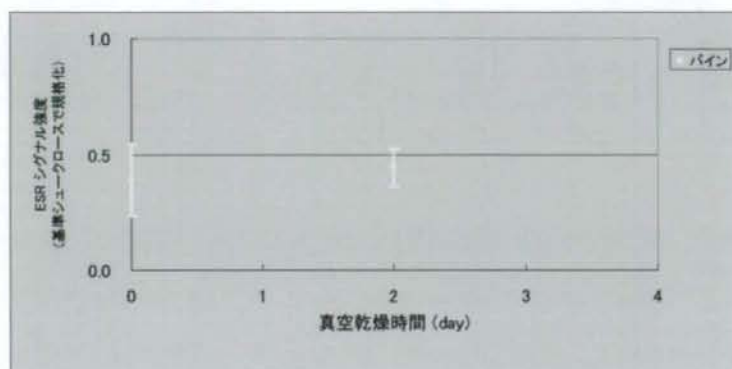


図 C-7 真空乾燥時間と ESR シグナル強度の関係 (1kGy 照射パイン 50mg 換算)
 (ESR シグナル強度は、同線量を照射したシュエークローズ 50mg を基準として規格化)
 (試料数 n=3 グラフ表示方法: 平均値±標準偏差)

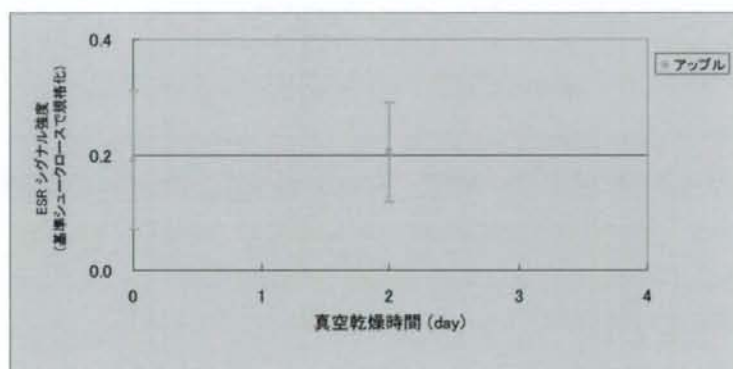


図 C-8 真空乾燥時間と ESR シグナル強度の関係 (1kGy 照射アップル 50mg 換算)
 (ESR シグナル強度は、同線量を照射したシュエークローズ 50mg を基準として規格化)
 (試料数 n=3 グラフ表示方法: 平均値±標準偏差)

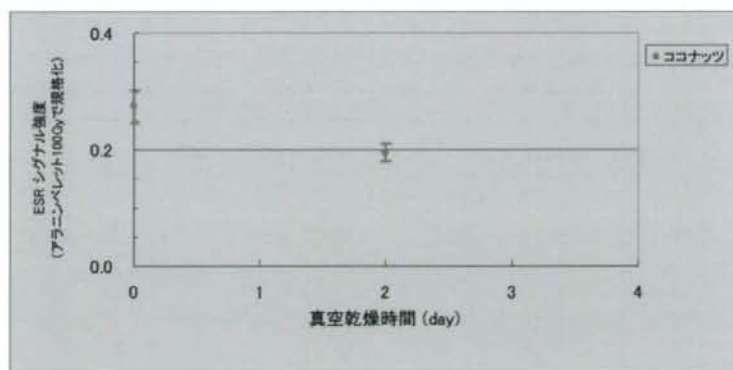


図 C-9 真空乾燥時間と ESR シグナル強度の関係 (1kGy 照射ココナッツ 50mg 換算)
 (試料数 n=3 グラフ表示方法: 平均値±標準偏差)

確認できなかった。

2-4 保管期間の影響確認試験

各種類の照射乾燥果実試料について、照射後の

保管期間と ESR シグナル強度の関係を図 C-10 ~ C-14 に示す。マンゴー、バナナ、パイナップル、アップルについては、約 2 ヶ月間の保管期間では、ESR シグナル強度の減衰を、確認できなかった。ココ

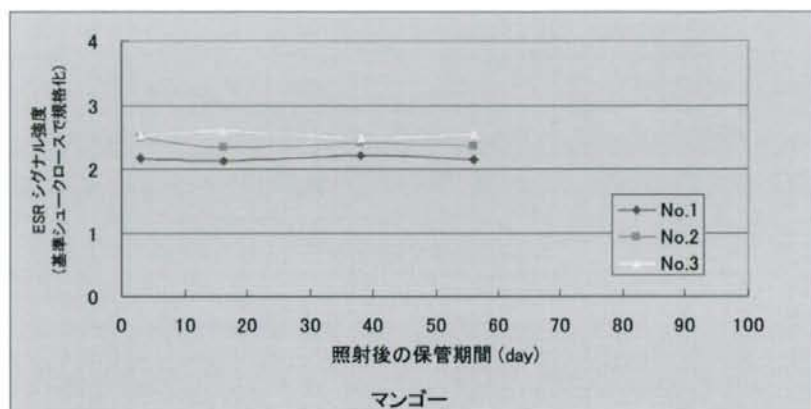


図 C-10 照射後の保管期間と ESR シグナル強度の関係 (8kGy 照射マンゴー 50mg 換算)
(ESR シグナル強度は、1kGy を照射したシュクロース 50mg を基準として規格化)

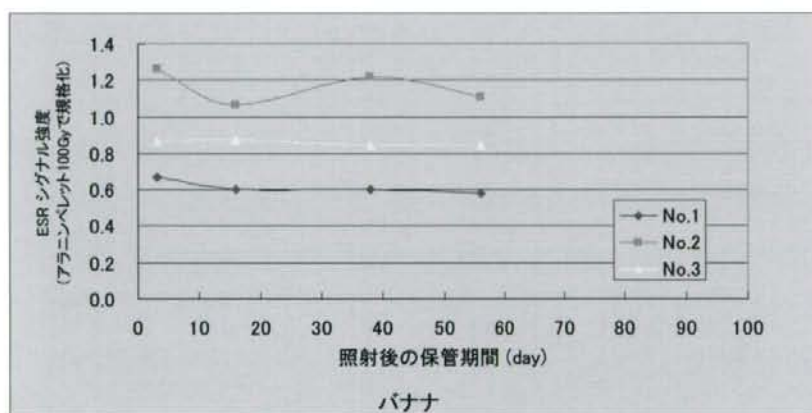


図 C-11 照射後の保管期間と ESR シグナル強度の関係 (8kGy 照射バナナ 50mg 換算)

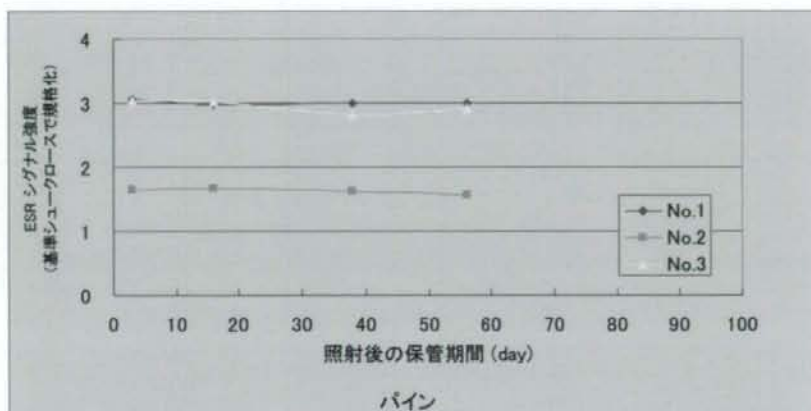


図 C-12 照射後の保管期間と ESR シグナル強度の関係 (8kGy 照射パイン 50mg 換算)
(ESR シグナル強度は、1kGy を照射したシュクロース 50mg を基準として規格化)

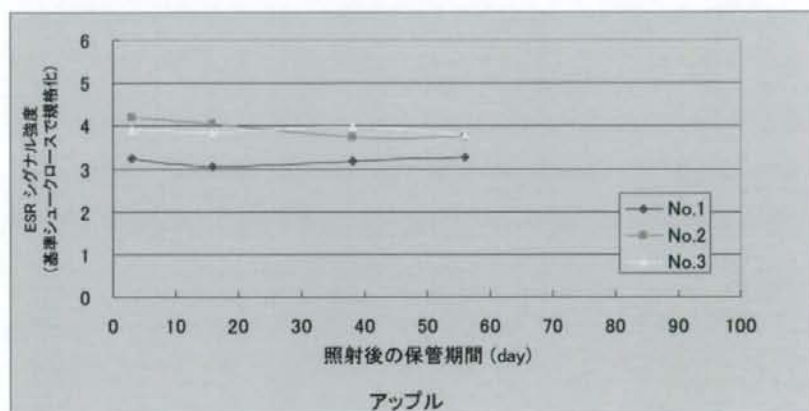


図 C-13 照射後の保管期間と ESR シグナル強度の関係 (8kGy 照射アップル 50mg 換算)
(ESR シグナル強度は、1kGy を照射したシュクロース 50mg を基準として規格化)

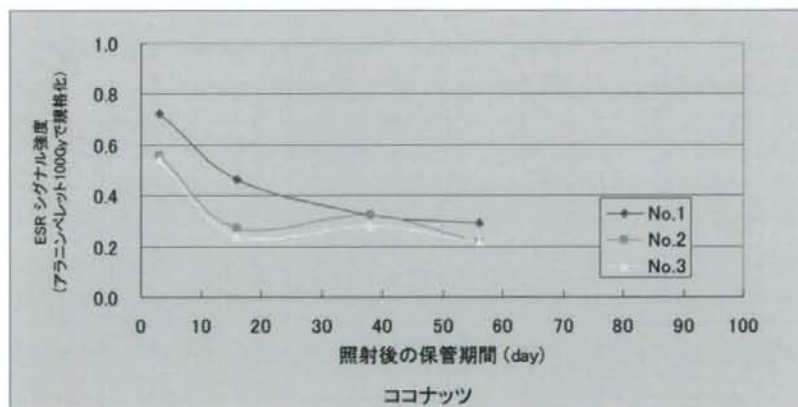


図 C-14 照射後の保管期間と ESR シグナル強度の関係 (8kGy 照射ココナッツ 50mg 換算)

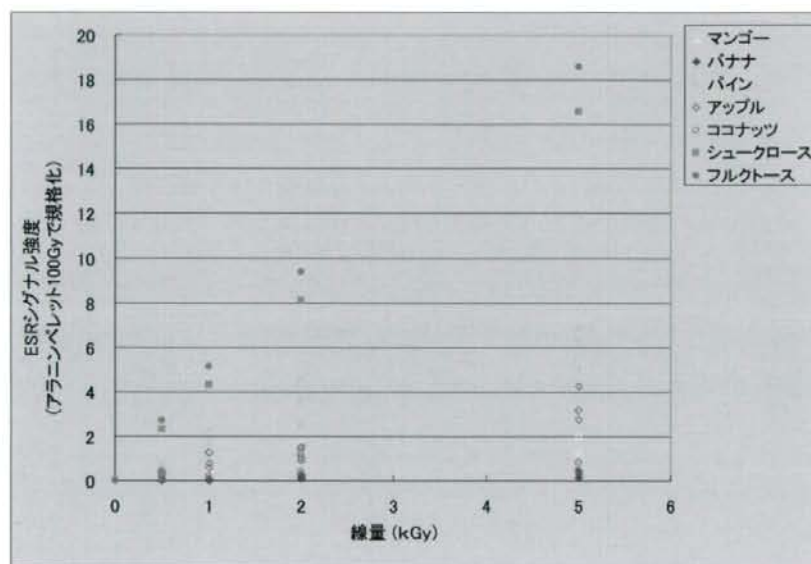
ナッツについては、照射後2週間以内の期間で、ESRシグナル強度が大きく減衰した。

2-5 線量の影響確認試験

線量とESRシグナル強度の関係を図C-15に示す。乾燥果実試料の種類により、図C-15の縦軸の大きさを変更して表示したものを図C-16～C-20に示す。シュエクロース及びフルクトースについては、線量とESRシグナル強度が比例する傾向が見られた。乾燥果実試料については、ESRシグナル

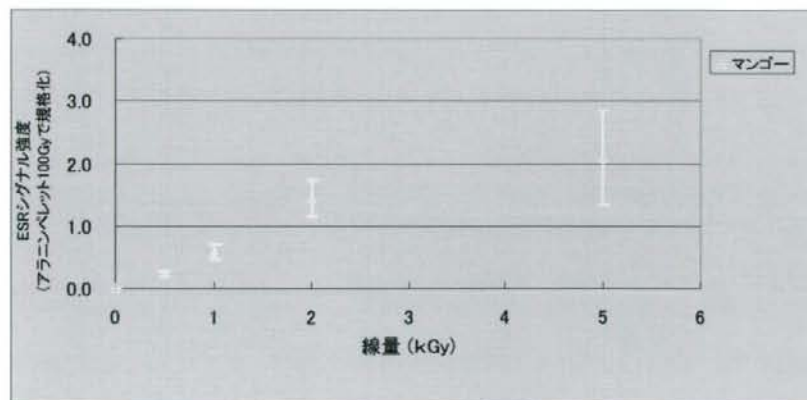
強度のばらつきが大きかったものの、全体的には、線量とESRシグナル強度が比例する傾向が見られた。

含有する主要な糖類がシュエクロースであると推定される試料（マンゴー、パイナップル、アップル）について、同じ線量が照射されたシュエクロースとのESRシグナル強度の比較により、含有する糖分の比率を評価した。評価結果を表C-3～C-5に示す。



図C-15 線量とESRシグナル強度の関係 (50mg換算)

試料数：シュエクロース n=1, フルクトース n=1, 乾燥果実試料 n=3



図C-16 線量とESRシグナル強度の関係 (マンゴー 50mg換算)

(試料数 n=3 グラフ表示方法：平均値±標準偏差)