

4	測定値の補正と判定	
page 8	<p>食物の種類、混合状態、血上の幾何学的位置などのファクターがありますから重量だけで画一的な補正はできないと考えます。</p> <p>通知法のTL比を算出するために試料皿中の食物質の重量を補正するという考え方は、CEN規格のTL比算出の方法論とは異なった考え方である。</p> <p>TL測定の際、放射線照射は均一では無く、放射線照射に対する感度も異なるのでGlow1、Glow2測定の前後での食物の損失を、重量補正出来る保証はありません。ENI788では、Glow1とGlow2の測定時に同一の試料を測ることを規定しています。(厳密には、試料の測定皿上での移動も発光量に影響すること考えます)</p>	<p>Glow1測定直前の重量に比べGlow1測定直後の重量が〇〇%以上の減少があった場合は、食物の埋入が多いと考えられるので食物分極方法を再直し、再測定する。Glow1測定後の重量に対し、Glow2測定後の重量が〇〇%以上の減少があった場合は測定値を採用してはならない。</p> <p>補正するのではなく、重量変動に基づき分析が妥当であったかの評価。</p>
	重量による補正	<p>発光量を単純な算術計算で重量補正することの見直し → CENの方法に準拠。かつ重量損失の発光条件の設定</p> <p>(食物の種類によって発光量は異なるため、単純な算術補正は最終的なTL比に影響を及ぼす可能性が高い。よって、重量補正するにしても国際整合性のあるものにする必要がある。)</p>
		<p>大幅な試料の増減があったときの測定を棄却する。ENI788 が認めているように試料を皿に固定する(シリコンスプレー等の利用)、大幅な輸送を避ける(=照射品の確定検査だけでも照射施設が付属する施設で再確認を実施)等の対策が考えられます。</p>
		<p>測定、アール、照射及び試料皿の移送に伴う食物の遺失量を確認するための秤量はよいと考えるが、重量補正については問題があると考えます。</p>
		<p>発光量を算出する際に、Glow1、Glow2の発光量を単位重量当りに換算する方法は、現行法でよいのではないかと考えています。TL測定(Glow1、Glow2)と再照射を同一の施設で行ったり、或いは、試料の移動距離がほとんどないことを想定しています。一方、日本におきましては、再照射施設を持たない学社のような試験分析機関は、必然的に試料を再照射施設に送付することになり、この際にも多少なりとも試料の損失は避けられないと考えます。従いまして、Glow1、Glow2それぞれ、その測定に先立って試料重量を測定しておき、単位重量当りの発光量で評価する手法は、妥当ではないかと考えています。</p>

page9	ベースライン)による補正	バックグラウンドを差し引いた発光量の値は装置の計測値の絶対値ではないので、発光量についての適正な装置の密度、ばらつき、外部汚染を評価する場合は、バックグラウンドを差し引かない値を用いた方がよい。	バックグラウンド発光に影響を及ぼすのは、プランシェット上の汚染、光の漏れ、PMT暗電流、試料送済外線。(鉱物の発光量がB1やB2の発光量に比べ10~20倍?以上大きい場合は差し引かなくても発光量に与える影響は小さい。
		ピークの認識(バックグラウンドのベースラインのS/Nから評価する方法がTL法にはふさわしくない)	算定方法について明記する
		S/N比算定方法が明確でない	具体的な対策については、大いに議論の余地のあるところかと思いますが、EN1788では、空試験から求めたMDL(発光積分値)を考慮していますが、これについても最適かどうかは不明です。(MDLを70~400℃ぐらいまでの広範囲で求めた場合には発光量を使っても良いかもしれませんが)
		S/N比の計算法、現在、通知法ではGlow1'のピーク温度と同範囲での、バックグラウンド測定(G1B)からノイズ計算をして、その3倍以上の高さのGlow1'のピークを認定しています。しかし、このノイズ計算は、鉱物に依るTLシグナル以外のコンタミに依るノイズ等がほとんどキャンセルされており、非常に低いレベルになります。また、計算方法もGCやPLCクロマトグラム(半値幅の狭い鋭いピーク)に適用されるべきものです。そこで、照射を認める有意なピークの検出法は他の方法によるべきと考えます。	TLの発光ピークが、半値幅の広いピーク(おそろくピークの形状はX ² 分布に従うとされる)であることを考慮し、幅の狭いノイズピークを、照射品のTLピークと認定しないように排除し、なおかつピーク出現温度付近より十分な立ち上がりのある明瞭な極大を認定する方法を検討した方が良いでしょう。
		現行通知法はS/N>100以上のGlow'2ピークが確認出来れば測定成立と解釈出来ますが、ノイズ計算が小さく負荷もられる可能性があり、S/N>100で十分な発光量の鉱物を確保しているかは疑問です。	S/N計算も面倒ですし、照射に対して十分な感度を確保する鉱物を分離して測定していることを保証するために、測定成立するGlow2の発光量(積分値)で下限を設定することでかわらないと思います。(その際、再照射後に照射判定の温度帯に明瞭な発光ピークを確認していることと)、下限値がEN1788と同じMDL>10で十分かどうかは、これまでの測定例から検証しておく必要があります。積分温度範囲が狭い場合には不十分かもしれません。
	ピーク判定基準	MDLの測定値とMDLによるG2の最低限度値の設定は、鉱物の全分離工程による環境等からの汚染レベル(G1)を検証し、照射判定に必要なTL比>0.1の必要条件を個々のTL装置毎に規定することを意味する。このことにより、各TL装置の測定可能な最低の発光量(G2:鉱物量)を検証することができる。もし、国内でより厳しい基準を設定するならば、G1の発光量をMDLの2倍にし、CEN規格のG2>10×(MDL)の係数10を20にすることも考えられる。鉱物量は重量ではなく発光量にて規定することがCENの考え方であり、装置の閾値と装置感度に配慮した分析法の基本理念に基づいている。	ピーク認識以前に、G1及びG2の発光量がMDLで定義した下限値より大きいことを前提に、厳密なピーク認識(ピーク温度)が難しい場合はX ² 分布を含む±0度を中心に帰帰曲線を作成し評価するの1つの方法。
		TLの発光曲線では、鉱物の量、置入のラグ及びエネルギーのトラップの状況、多様な種類の鉱物の存在、配置等により複雑な曲線と示す。そのため液口のノイズ評価とは異なる要素がある。バックグラウンド測定において本規則に発生する大きいノイズは、その最高値(PH)と最小値(PI)に着目してピーク認識を行う場合、G1発光量の小さい材料などでは変動が大きくピーク認識ができなくなったりノイズをピークと判定する可能性も考えられる。	極大ピークの判定について、S/N比ではなくTL2の発光量による規定(MDLの採用)とすべきと考える。但し、TL1の極大ピークの規定についても、別途判断基準が必要と考えるが、現時点では提案できる考えは無い。
		TL装置及び測定結果の特性を考えた場合、ピーク判別に用いているS/N比という考え方は不適切である。国際整合性に乏しい試験方法は、国際的な商取引上好ましくない。	極大ピークの判定について、S/N比ではなくTL2の発光量による規定(MDLの採用)とすべきと考える。但し、TL1の極大ピークの規定についても、別途判断基準が必要と考えるが、現時点では提案できる考えは無い。
		バックグラウンド・ノイズが「十分に小さいこと」とありますが、十分に小さいことというのはどの程度と判断して良いのか示していただきたいと思いますが、これは、S/N比の計算の際にバックグラウンド・ノイズの高さに影響を受けるためです。	バックグラウンド・ノイズが「十分に小さいこと」とありますが、十分に小さいことというのはどの程度と判断して良いのか示していただきたいと思いますが、これは、S/N比の計算の際にバックグラウンド・ノイズの高さに影響を受けるためです。
		TL比が0.10以上の際にはS/N比を計算するようにしていますが、ピークと判断するかどうかについてはの指針を示していただきたいと思いますが、(チャート)を拡大してS/N比を計算すると大半のケースで3を超えるため。)。	TL比が0.10以上の際にはS/N比を計算するかどうかについてはの指針を示していただきたいと思いますが、(チャート)を拡大してS/N比を計算すると大半のケースで3を超えるため。)。

page 10		<p>自然放射線由来のシグナルも含めてTL比を算出することに対する根拠データの提示がない。</p>	<p>第44回日本食品放射線研究会シンポジウムにおいて(独)東京国立産業技術センター山崎正夫氏が発表されましたように照射された食品と非照射食品の混ぜられた物や照射された食品へ故意に非照射食物を添加しTLを0.1未満に操作することが可能であることからTL比は0.1未満でも極大温度がX以下であった場合、再測定の実施やサンプリング数を増やすなど、何らかの対応をされたら如何でしょうか。</p>
	<p>判定基準についてEU法のようにTL比(G1/G2)が0.1未満であっても発光極大温度がX(X=100+29(261.1°C))以下である場合の対応も考慮すべきではないでしょうか。</p>	<p>1つの検体から2つ以上の試料で試験し、1つがプラスならアウトでは測定上のコンタミを懸って検知を判定してしまふ恐れが考えられます。</p>	
	<p>照射判定基準</p>	<p>「1つの検体から2つ以上の試料を用いて測定を行い」とある。この文からは、以下の2つの解釈ができる。 ①1つの抽出動物から2つの測定試料を作成し測定する。 ②2つの抽出系列からそれぞれ1つずつ測定試料を作成して測定する。</p>	<p>より具体的な文とする。</p>
		<p>CEN規格のTL比は、通知法のような重量補正の項はなく、分離される動物は種類も形状も多様ということを前提としている。そのため両方で得られるTL比は同等でない。また通知法で0.1を閾値とする科学的根拠はなされていない。</p>	
		<p>EN1788では、TL比0.1未満でも照射ピークと判定される温度帯にピークが確認されれば、照射と判断して措置(この場合は表示違反ですが)されます。現行の通知法では、プレント品を戻す可能性もあります。これについては、以下の可能性について行政側も理解しておく必要があると思います。 * プレント品が国内流入する可能性 * 通知法に則って国内機関で陰性とした検体が海外機関で照射と判定される可能性</p>	
			<p>Glow1のピーク形状からピークの有無を判定する手法(アルゴリズム)が確立されれば、装置メーカーとしてその手法に則ったソフトを製作し標準ソフトにアドオンする形でご提案することが出来、この分野へ貢献できるのではと思います。今後分析手法についての研究がなされること期待します。</p>

page 11	5 分析の適用範囲と信頼性保証		
通用可能な食品	<p>1. 前文の「...試験可能な食品を追加する等」と注1)の「...」から試験に必要な量の放射物が得られることが確認されている」という説明が対応するのであるが、後者では「試験可能」と直接書っていないので違和感がある。また、限りなくある食品の中でこれらの食品以外は検知できないのが混乱する。(放射物が得られるものなら試験可能と考えべきと考ええる。)</p>	<p>前文は「今般、試験に必要な放射物が得られることが確認された食品を追加する等」と変更すべきと考ええる。</p>	
		<p>今後の検知法の適用食品の一つとして輸入生鮮果実(マンゴ、グレープフルーツ、パパイヤ、バナナ等)に取り組むべきと思います。</p> <p>TL法は、確認照射を行うことで、偽陰性が起こりにくい優れた方法であり、更なる対象物の増加を望む。</p>	<p>今後の検知法の適用食品の一つとして輸入生鮮果実(マンゴ、グレープフルーツ、パパイヤ、バナナ等)に取り組むべきと思います。</p> <p>TL法は、確認照射を行うことで、偽陰性が起こりにくい優れた方法であり、更なる対象物の増加を望む。</p>
信頼性保証	<p>装置の校正条件、保守管理基準が必要。(TL装置の加熱板やフィルターの汚れ、装置状態のチェック)</p> <p>クリーンディスプレイラック(OGBK) : 洗浄した試料皿(試料なし)に1kGyの照射を行い、その試料皿をTL装置で複数回測定し、その平均値(OGBK)とSD(SDCD)を求め、 OGBK<(TLBK)+3×(SDTL); 試料皿の汚染なし OGBK≧(TLBK)+3×(SDTL); 試料皿の汚染あり</p> <p>フルプロセスプラント(全工程プラント)(FPBK) : 分析で用いる試料皿、試薬、水、器具類、空調からの放射粒子の汚染の程度を評価するため、全ての操作工程の空試験を複数回おこなってG1測定(FPBK)を行う。そのSD値(SDFP)を求める。FPBK<(OGBK)+3×(SDOD); 試薬/器具からの汚染なし FPBK≧(OGBK)+3×(SDOD); 試薬/器具からの汚染あり</p> <p>空試験の実施とMDL(最小検出限界値)の決定 : MDL=FPBK+3×(SDFP)と定義される。</p> <p>メーカー側からの、ヒーター温度と表示温度の確認法についてのご提案も期待したい</p>	<p>試料なしの条件でTL装置で測定を複数回実施。その平均値(TLBK)とSD(SDTL)を求める</p> <p>使用前の試料皿の汚染評価 : 未照射の放射粒子の付着の推定→汚染判定はGlow2を高めるのでTL比を下げる→偽陰性の評価に繋がる。 →再洗浄が必要。</p> <p>放射した石英、炭石のように発光量が非常に多いものがある。試験室の管理状況を確認するために必要である。</p> <p>現実的には、試料を測定する条件(試料皿を使用して)での標準素子(TLD-100)があるいは、オーセンティックな温度ヒューズを複数持つもの)の測定、確認がよろしいかと思えます。</p>	
	<p>TLD素子を利用する場合、照射が必須</p> <p>空試験について</p>	<p>メーカーやガンマ線照射施設の協力に依る定期的な供給体制を整える必要があるかと思えます。</p> <p>長石など自然放射線による温度ヒューズを標準とすることも考えられますが、標準品がTL測定について非常に高精度な微粉末であることを考えると、実験室での測定系へのコンタミを避けるためそのままでも利用しない方がよいと思います</p> <p>精度管理のためにENI788にあるようなフルプランクテスト(空試験)は導入すべきかと思いません。試薬、器具からのコンタミの確認とTL測定(Glow2)の検出下限の設定にはENI788と同様の考え方で、有効に利用出来ると思えます。</p>	

page 12			<p>植物の採取の部分はトレーニングにより担当者の技能を評価しています。機器測定や試験の成立条件は通知法に細かく規定されているので、それをクリアすることによりデータが保護されると考えています。</p> <p>外部精度管理を行うシステムが望まれます。</p> <p>国内で照射検知を目的として使用されているTL装置は、実質的にThermo製TLD3500とナノグレイ製TL2000の2機種のみであり、台数も限られています。そこで、Thermo代理店のセイコージャーアンドジー株式会社様、及びナノグレイ代理店のメジャーワークス株式会社様が主体となって、統一保守点検プログラムを作成していただくのも一つの考え方ではないかと思えます。</p>
		<p>TLD100によるX線の設定はどのくらいの頻度で行う必要があるのでしょうか？一度設定すると、後はメーカー等が行う定期点検(N=6)時において大きな誤差が生じていないことを確認すればよいのでしょうか？</p>	<p>1) 試験に対して、しっかりとした検定条件の設定を行う必要があると考える。定性分析的な性質が強い本試験において重要なことは、有機物含量の少ない抽出を得ることが最も重要であり、必要な抽出物が得られているか否かの判断をする為にも、TL2発光量に対するMDLの基準を設ける必要があると考える。</p> <p>2) 照射判定の極大ピーク温度について、TL装置の機械的特性を考えると標準素子を用いた温度補正を前提とする必要があると考える。</p>
	<p>分析の妥当性評価</p>		<p>分析法の種々の問題が解決されることが前提ですが、性能基準を設定し、分析性能を評価するための統一的手段を設定することが、適用可能性の判断や分析値の妥当性を担保する上で効果的ではないでしょうか。</p>
6	今後		
page 13		<p>現在、炭化水素及びアルキルシクロブタノンの検射を進めていると思いますが、両方法はいずれも脂肪族の生成物が試験対象なので、これらの方法をどのような取り扱おうかと考えているか？</p> <p>たとえば、①どちらを行って判定してもよい。②片方が確認試験扱いなど</p>	<p>通知法にスクリーニング検査（確定検査ではなく、一次スクリーニングの後照性については別の確定検査（＝TL法）をする）を取り入れることが可能であれば、検査の必要性の多い香辛料等を対象にPSL法を導入出来るようにして、検査効率をアップした方が良いと思います。</p> <p>EN規格に対応する主な検査法（Type II）を中心に整備した方が良いという考え方も出来ますが、実際、EUの市場モニタリングで利用されている方法は圧倒的にTL、PSLが多くのなっています。通知をするということが、一定量のモニタリングの開始を意味するのであれば、無駄に検査だけがが増えて関連業界があらねないような配慮は必用かと思えます。</p> <p>ESRが使えれば、マトリックスに依っては便利、脂質含有食品については、炭化水素、シクロブタン両法が整備出来れば、当面、想定される実際の食品への対応は可能ではないでしょうか。</p> <p>対象品目として、海外での照射実績を加味して海産物（冷凍エビ等）の対応を考えておかれた方がよろしいかとも思います。</p>
			<ul style="list-style-type: none"> ・ PSL法について ・ TL法と同様に、香辛料など鉱物質が付着した食品の照射検知法であるPSL法をスクリーニング法の一つとして、通知法に採用していただければと考えます。 ・ PSL法は、付着鉱物質が少なくてもスクリーニング法としては十分な精度を持つと考えます。さらに、再照射（1kGy）を行うことで、鉱物が付着していないために発光していない試料（PSL適用不可香辛料）を除外することも可能です。 <p>当所では、26種類（射100サンプル程度）の香辛料に対して、照射／非照射の判定可否を検討しており、これらの香辛料で判定可能とのデータを得ているとことです。TL法のみによる検知法に加えて、TL法を確認試験とするPSL法によるスクリーニング法を通知法としていただいても良いのではないかと考えます。</p>

	<ul style="list-style-type: none"> 炭化水素法とアルキルシクロブタン法について 今後の貿易構築により、照射肉などが国内に輸入される可能性もあります。高精度で照射有無を判定出来る炭化水素法とアルキルシクロブタン法を通知法に採用していただければと考えます。
	<p>現在研究されている方法以外にも、できるだけ多くの方法を検討されることを希望します。</p> <p>微生物法につきましても他の方法にはない点がありますので、今後導入の検討を希望します。</p>
	<p>1) TL法のスクリーニング分析としてのPSL(OSI)</p> <p>その他に導入する場合でも、対象品目および試験方法としての位置づけを明確にしたうえで、国際整合性の取れた形での導入検討が必要と考えます。</p>
	<p>○ESR法（セルロース、糖、骨）</p> <p>○PSL法（香辛料、乾燥野菜、健康食品）</p> <p>PSL法については海外ではTL法とともにもっとも多く検知法と使用されているので、欠点を周知した上でTL法とともにも有効な使い方を考えます。</p> <p>○シクロブタン法（脂質）</p>
	<ul style="list-style-type: none"> ESR法 糖や骨を対象としたESR法は、比較的感受度も高く、照射後の減衰も大きくなく、未照射の試料にバックグラウンドも少ないことや前処理が比較的楽なことから、積極的に導入すべきと考えます。セルロースを対象としたESR法は、照射後の経過時間が比較的短時間であるものは、検知が可能であるため、推進すべきと考えます。 微生物法 放射線照射の主な目的は、微生物の殺菌であり、その微生物の特性を調べることで多くの情報を得ることが可能である。特に、付着生存菌の菌種とその抵抗性を調査することで、滅菌法の区別がづく可能性が高い。
	<ul style="list-style-type: none"> PSL法（TL法のスクリーニング法として） <ul style="list-style-type: none"> ESR法 アルキルシクロブタン法 炭化水素法

放射線照射食品検知技術に関する研究
研究分担報告書

放射線照射食品検知技術の妥当性評価に関する研究 2.

研究代表者 宮原 誠 国立医薬品食品衛生研究所食品部第二室長
研究分担者 松田りえ子 国立医薬品食品衛生研究所食品部部長

研究要旨

検疫所検疫・検査センターで TL 法により検査された検体の発光曲線を、EN1788 の判定基準で解析し、通知法による判定と比較して、判定法の差が結果に及ぼす影響を明らかにすることを目的とした。この結果、150-250℃に明瞭なピークが認められる場合は、通知法と EN1788 の判定は一致した。明瞭でないピークが得られる場合は、通知法と EN1788 の判定が異なった。また、本検討により、1) 通知法にあるように積分温度範囲上限を 490℃に拡大すると、照射された検体とされない検体の TL 発光比が近づくため、照射の区別が困難になる事例が認められること、2) ピークの判定時に使用される S/N 比が、測定対象と同一ではないノイズを使用しているため、S/N 比が正確に求められない可能性があること、が明らかになった。これらの事項に対しては、積分温度範囲上限の見直し、ブランク測定値の標準偏差による極大ピーク管理の導入、鉍物の知見を集積による判定時の Glow2 の発光パターンの参照などが、より精度の高い判定結果を得る上で検討すべき課題として考えられる。

A. 研究目的

報告書第一部に示したように、TL 法の評価会において通知法と EN1788 の TL 測定法及び判定方法に差があることが、指摘された。そこで、横浜及び神戸の検疫検査センターで行われた、TL 法による輸入食品モニタリング検査結果を、EN1788 に従って解析し、判定法の差が結果に及ぼす影響を明らかにすることを目的とした。

B. 研究方法

横浜検疫所検疫・検査センター及び神戸検疫所検疫・検査センターで実施された、スパイス・乾燥ハーブ・乾燥野菜・シャコの TL 法による検査により、陽性であったデータ全て（14 検体）及び陰性であったデータ 200 件を対象とした。

それぞれのデータについて、EN1788 に示された判定基準を適用し、通知法による判定と比較した。以下に判定基準を示す。

判定基準

1. Glow1における発光ピークの存在

通知法 ベースラインを差し引いたピーク高さが、バックグラウンドから求めたノイズの3倍以上の時、ピークと判定し、ピーク温度が TLD100 のピーク温度+29°Cの場合に照射によるピークと判定する。

EN1788 明瞭な極大を示す場合をピークと判定し、ピーク極大温度が 150-250°Cの場合に照射と判定する。但し、ピークの定義は明らかにされていないことから、今回は目視でピーク前の上昇と、ピーク後の降下が認められる場合にピークと判定した。

TLD100 のピーク温度は、横浜検疫・検査センター229°C、神戸検疫・検査センター230°Cであった。

2. TL 発光比

通知法 積分温度範囲を 70-490°Cとして TL 発光比を測定し、0.1 以上の場合に照射と判定する。

EN1788 積分温度範囲を 150-250°Cとして TL 発光比を測定し、0.1 を超える場合に照射と判定する。TL 発光比の計算には重量補正を行わなかった。上記の1と2の両方を満足した場合に照射有りとして判定した。

EN1788 では明瞭なピークが存在すれば、TL 発光比<0.1 でも照射ありとされる場合があるとしているが、今回の解析ではこれは考慮しなかった。

C. 結果

通知法で照射ありと判定された検体

事例1 試料1の Glow1において220°C、試料2では223°Cに、明瞭な発光の極大が認められた。TL 発光比は、試料1は2.39、試料2は3.83であったため、照射ありと判定した。

事例2 試料1の Glow1において226°C、試

料2では224°Cに、明瞭な発光の極大が認められた。TL 発光比は、試料1は5.06、試料2は9.86であったため、照射ありと判定した。

事例3 試料1の Glow1において206°C、試料2では208°Cに、明瞭な発光の極大が認められた。TL 発光比は、試料1は1.80、試料2は1.41であったため、照射ありと判定した。

事例4 試料1の Glow1において195°C、試料2では195°Cに、明瞭な発光の極大が認められた。TL 発光比は、試料1は2.08、試料2は2.25であったため、照射ありと判定した。

事例5 試料1の Glow1において179°C、試料2では176°Cに、明瞭な発光の極大が認められた。TL 発光比は、試料1は2.23、試料2は2.23であったため、照射ありと判定した。

事例6 試料1の Glow1において161°C、試料2では160°Cに、明瞭な発光の極大が認められた。TL 発光比は、試料1は1.45、試料2は1.82であったため、照射ありと判定した。

以上の6例は、通知法の判定と EN1788 の基準による判定が一致した。発光曲線を Fig.1-6 に示す。

事例7 試料1の Glow1において190°C、試料2では189°Cに、発光の極大が認められた。TL 発光比は、試料1は0.03、試料2は0.06であった。Glow1の発光ピークの極大温度が照射と判定される150-250°Cにあったが、TL 発光比が0.1以下であったため、EN1788の基準では照射なしと判定された。通知法では TL 発光比が0.33であったため照射と判定され、通知の判定と EN1788 の基準による判定は異なる結果となった。

事例8 1 試料の結果のみ提供された。150-250°Cには極大を示すピークは認められ

ず、TL 発光比も 0.04 であったため、EN1788 の基準では照射無しと判定された。通知法の評価方法では、250°C 付近の盛り上がりに基づきベースライン処理を行い、 $S/N > 3$ のピークがあると判定された。このピークの極大温度が 250°C 以下であるかの判定は困難であるが、通知法では TLD100 のピーク温度 +29°C、つまり 259°C までを照射ピークとしているため、この盛り上がりは照射ピークとされ、さらに TL 発光比は 0.19 であったため照射ありと判定された。

事例 9 1 試料の結果のみ提供された。150-250°C には極大を示すピークは認められず、TL 発光比も 0.01 であったため、EN1788 の基準では照射無しと判定された。通知法の評価方法では、200°C 付近の盛り上がりに基づきベースライン処理を行い、 $S/N > 3$ のピークがあると判定し、TL 発光比は 0.14 であったため照射ありと判定された。

事例 10 1 試料の結果のみ提供された。150-250°C には極大を示すピークは認められず、TL 発光比も 0.02 であったため、EN1788 の基準では照射無しと判定された。通知法の評価方法では、200°C 付近の盛り上がりに基づきベースライン処理を行い、 $S/N > 3$ のピークがあると判定し、TL 発光比が 0.10 であったため照射ありと判定された。

事例 11 1 試料の結果のみ提供された。150-250°C には極大を示すピークは認められず、TL 発光比も 0.01 であったため、EN1788 の基準では照射無しと判定された。通知法の評価方法では、200°C 付近の盛り上がりに基づきベースライン処理を行い、 $S/N > 3$ のピークがあると判定し、TL 発光比が 0.11 であったため照射ありと判定された。

事例 12 1 試料の結果のみ提供された。

150-250°C には極大を示すピークは認められず、TL 発光比も 0.03 であったため、EN1788 の基準では照射無しと判定された。通知法の評価方法では、200°C 付近の盛り上がりに基づきベースライン処理を行い、 $S/N > 3$ のピークがあると判定し、TL 発光比が 0.14 であったため照射と判定された。

事例 13 試料 1 の Glow1 では 150-250°C には極大を示すピークは認められなかったが、試料 2 では 166 度に極大を持つ小さな発光ピークが認められた。しかし、TL 発光比は、試料 1 は 0.00、試料 2 は 0.01 であったため、EN1788 の基準では照射無しと判定された。通知法の判定では試料 2 の TL 発光比が 0.11 となったため照射ありと判定された。

事例 15 試料 1 の Glow1 では 150-250°C には極大を示すピークは認められなかった。試料 2 では極大を持つ発光ピークが認められ極大の温度は 250°C であった。TL 発光比は、試料 1 は 0.01、試料 2 は 0.03 であり、EN1788 の基準では照射無しと判定された。通知法では、試料 1 についても 200°C 付近の盛り上がりをもピークと判定し、TL 発光比も試料 1 が 0.13、試料 2 が 0.15 であったことから照射ありと判定された。

事例 7 から 15 までの 8 検体では、通知法による判定と EN1788 の基準での判定結果が異なった。全ての試料において、EN1788 の積分温度範囲では 0.1 以下の TL 発光比が得られたが、通知法のように広い積分範囲を設定すると 400°C 以上の発光量上昇部分及び天然放射線に由来すると思われる 300°C 以上の発光ピークも積分するため、TL 発光比が 0.1 を超える結果となっている。また、発光ピークの判定も、300°C 以上に極大を持つピークの肩に乗った盛り上がりをもベースライン処

理を行って判定しているため、照射ありと判定される結果となっている。

通知法で照射なしと判定された検体

通知法で照射なしとされた 200 検体の発光曲線を、EN1788 の基準で判定した結果は全て照射なしであり、通知法と EN1788 それぞれの基準による判定の結果に相違は見られなかった。

D. 考察

ピークの判定

事例 7-14 の発光曲線の拡大図を Fig.17 に示す。これらの中で、明瞭な極大が認められたのは事例 7、事例 13 の試料 2、事例 14 の試料 2 であった。他の事例では明瞭な極大は認められなかった。

通知法では明瞭な極大に加え、ベースラインを差し引いた結果に極大が認められ、さらに $S/N > 3$ であればピークと判定している。この S/N に基づいた検出の定義は分析化学でしばしば用いられるが、多くの分析手法でノイズレベル N とされるのは、十分な数のブランク測定値の標準偏差である。クロマトグラフィ分析では、ピーク近傍のベースラインでノイズを測定している。通知法ではこれを適用しているが、ノイズレベルはバックグラウンド測定から求めている。Glow1 とバックグラウンドのノイズレベルは異なっているため、正しい S/N 比は求められない。 S/N 比を測定するならば、Glow1 からノイズレベルを測定すべきである。

ピーク温度

極大を示すピークが認められた例では、ピーク温度は全て 150-250°C の範囲にあり、事例 16 以外は TLD100 のピーク温度以下であ

った。

積分温度範囲

通知法で規定された積分温度範囲での TL 発光比が 0.1 以上となった検体の発光曲線を再解析し、積分温度範囲を 150-250°C、150-300°C、150-350°C、150-400°C とした TL 発光比を求めた。Table 1 に結果を示す。事例 1-6 は、通知法、再解析共に照射ありと判定された検体、7-14 は通知法では照射有りであったが EN1788 の基準では照射無しとなった検体、15-27 は発光ピークが認められずいずれの判定でも照射無しとなった検体である。

Fig.18 には事例 1-6 について、TL 発光比の積分範囲依存性を示した。これらの検体は 150-250°C に極大を持つ明確な発光ピークが認められており、このピーク部分が Glow1 の発光量の大部分を占めている。この結果、積分範囲を拡大しても TL 発光比はあまり変化しない。事例 2 のように、特に発光ピークが大きい場合 (Fig.2 参照) には、積分範囲温度の拡大に伴い TL 発光比は減少する傾向を示した。

Fig.19 には事例 7-14 の TL 発光比の積分範囲依存性を示した。これらの検体は、事例 1-6 と異なり、150-250°C に明瞭なピークが存在しない。しかし、300°C 以上に天然放射線によると考えられる発光ピークが認められ、この発光の寄与により通知法では TL 発光比が 0.1 を超える結果となった。積分範囲を 150-250°C とした場合、このピークの寄与が無くなるため TL 発光比は通知法より小さな値となり、温度範囲を高温側に拡大するに伴って増加した。また、400°C 以上では急激な発光の増加が見られ、通知法による TL 発光比の値が 150-250°C の TL 発光比の 10 倍以上

となる場合もあった。事例 14 の試料 1 では天然放射線によると考えられる発光ピークも存在していないため、TL 発光比はほとんど変化していない。

Fig.20 は事例 15-24 の TL 発光比の積分範囲依存性を示した。これらの検体は通知法で 0.1 を超える TL 発光比となったが、通知のピーク温度上限である 259°C (TLD100 のピーク温度+29°C) 以下にピークが認められなかったため、陰性と判定された検体である。TL 発光比の温度依存性は Fig.19 と同じ傾向となった。検体 7-14 と検体 15-27 の違いは、259°C以下にベースラインを差し引くことで認められる $S/N > 3$ である明瞭ではないピークがあることである。

人工的放射線照射によると考えられる発光ピーク、つまり 150-250°Cの極大を持つピークが存在している場合には、TL 発光比の温度依存性は小さいか、あるいは温度範囲拡大により減少する。一方、人工的放射線照射によると考えられる発光ピーク、つまり 150-250°Cの極大を持つピークが存在していない、あるいは存在しているが明瞭な極大を示さない場合には、TL 発光比は温度範囲拡大により増加する。

以上のことから、積分温度範囲を 490°Cに拡大することにより、照射された検体とされない検体の TL 発光比が近づくため、照射の区別が困難になると考えられた。

150-250°Cの積分温度で TL 発光比が 0.1 を超えた事例 18 及び事例 20 の発光曲線を Fig.20 に示す。どちらも Glow2 の発光量が非常に小さい。そのため Glow1 の僅かな発光も大きな TL 発光比を与える結果となった。EN1788 では Glow2 の強度が小さく MDL の 10 倍以下である場合には、評価を行えない

としている。これらの例のように Glow2 が極端に小さい場合には、僅かな測定の変動により、TL 発光比が大きく変わることも、その理由の一つと考えられる。このように Glow2 発光量が少ない場合の措置として、通知法では $S/N > 100$ のピーク高さを基準としているが、前述のようにバックグラウンド測定からノイズを算出することは、理論的に正しいとは言えず、ブランク測定値の標準偏差による管理の導入を図るべきである。

標準線量の γ 線を照射した後の Glow2 において 150-250°Cの範囲外に極大を示す場合がある (事例 1, 2, 4, 8, 9, 11, 14)。これらの検体から採取されたケイ酸塩鉱物は、 γ 線照射により高い温度で発光する性質を持つと考えられる。今後、このような鉱物の知見を集積し、判定基準に Glow2 の発光パターンへの考察を含めることが、精度の高い照射判定に有用と考えられる。

E. 研究発表

1. 論文発表

なし

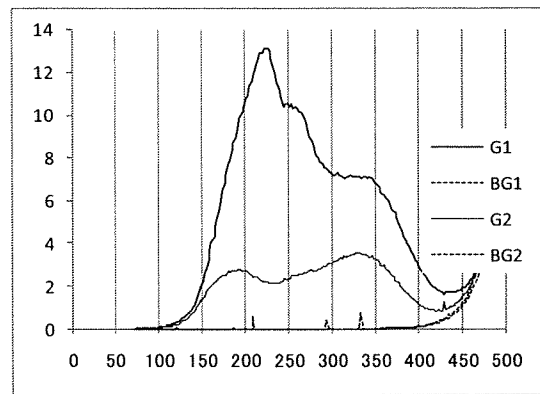
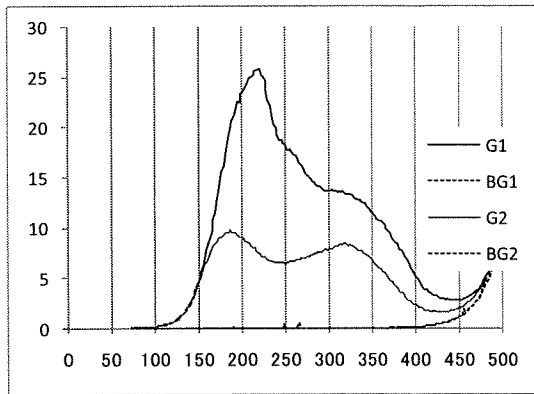


Fig.1 事例1の発光曲線

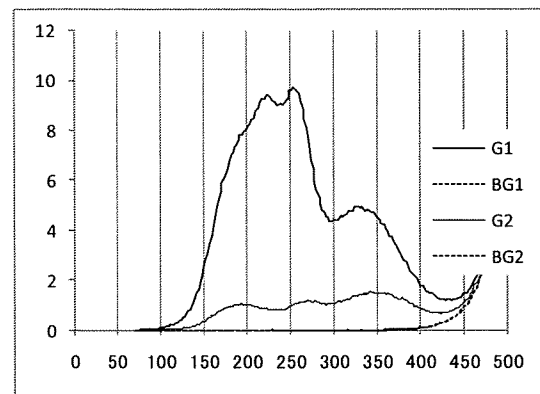
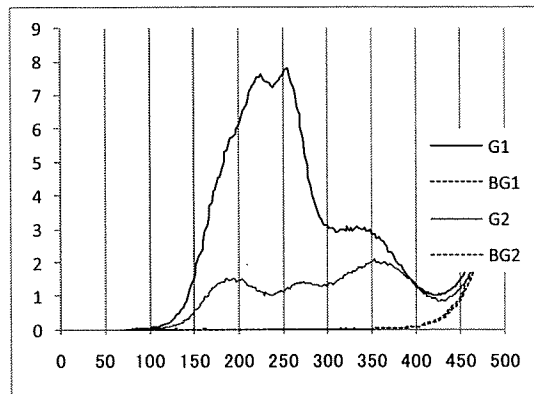


Fig.2 事例2の発光曲線

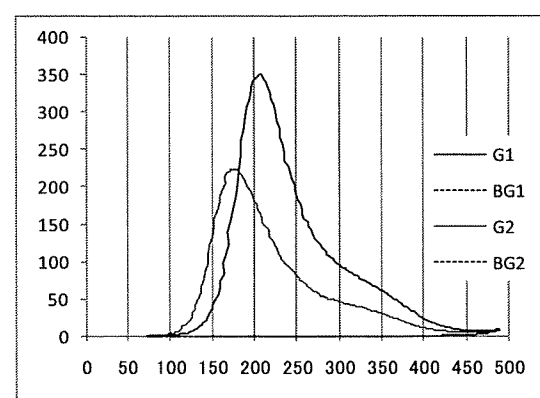
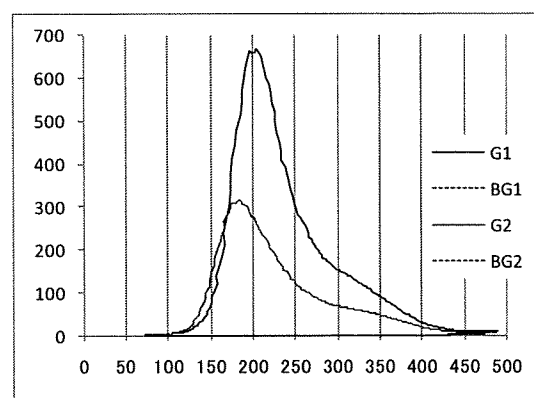


Fig.3 事例3の発光曲線

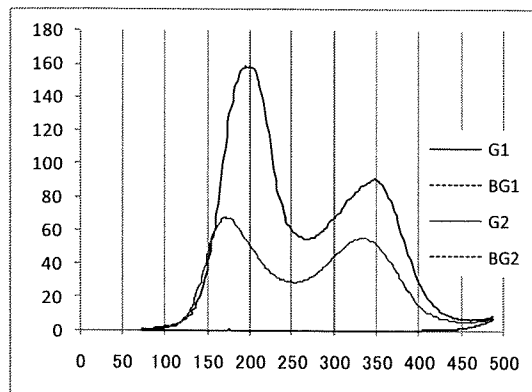
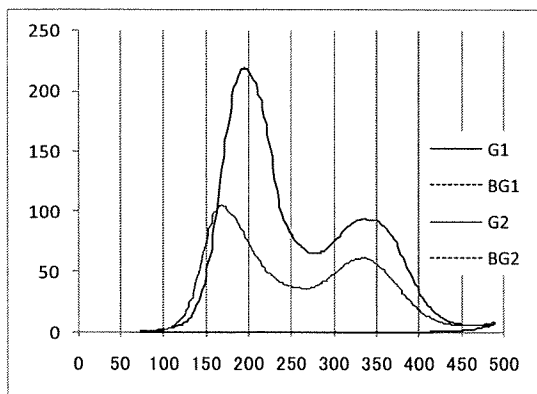


Fig.4 事例 4 の発光曲線

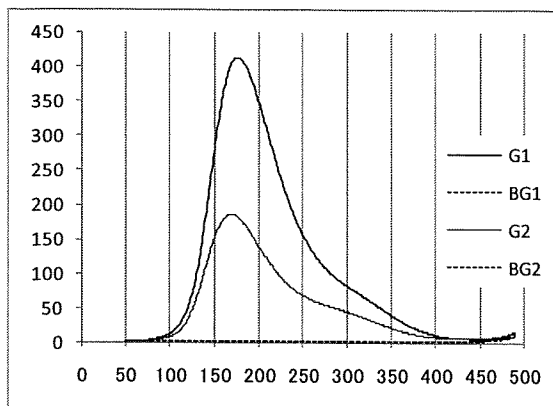
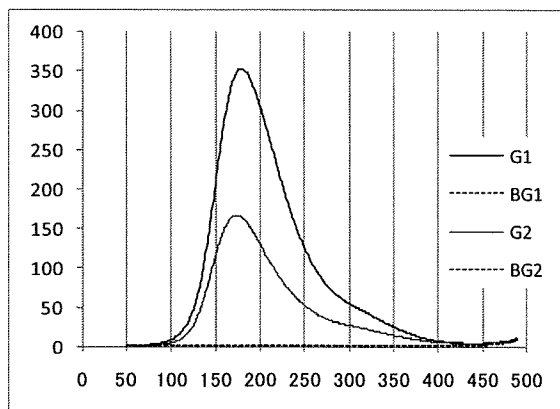


Fig.5 事例 5 の発光曲線

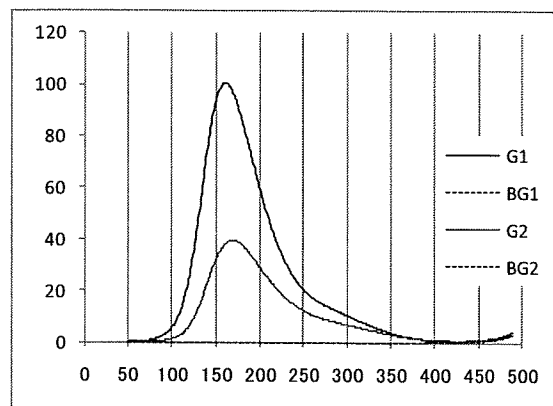
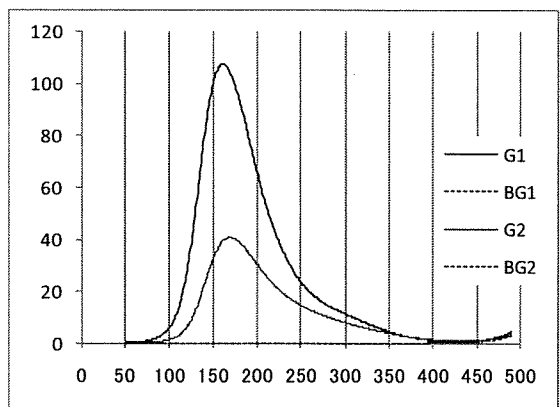


Fig.6 事例 6 の発光曲線

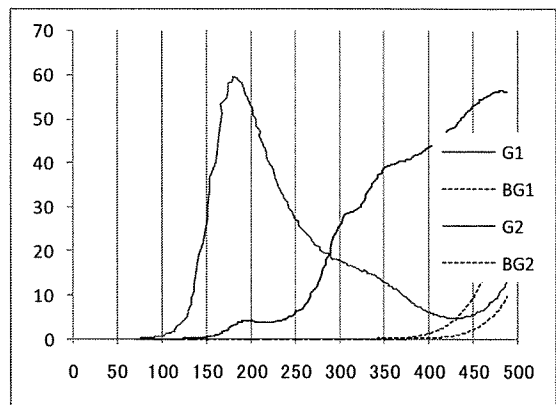
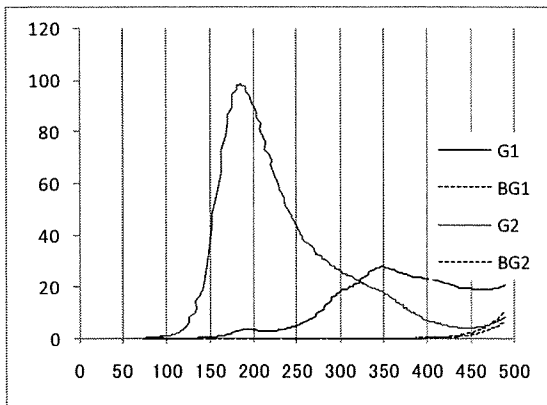


Fig.7 事例7の発光曲線

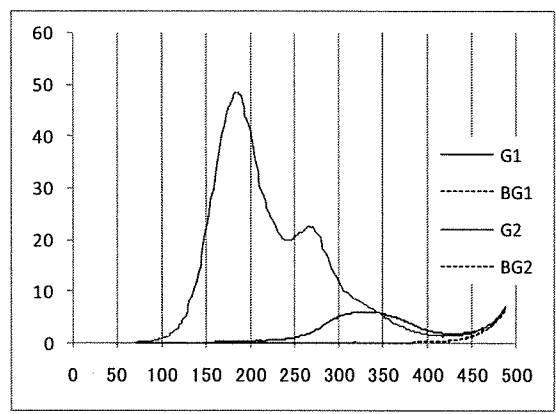
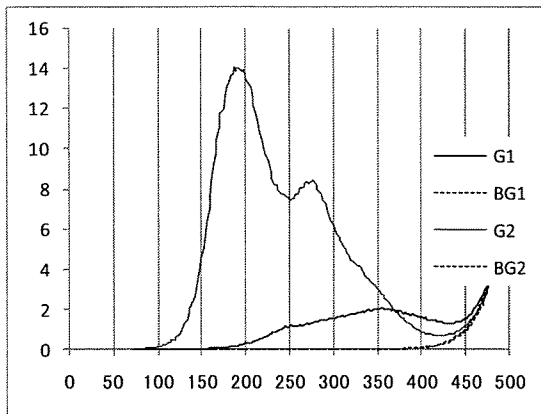


Fig.8 事例8の発光曲線

Fig.9 事例9の発光曲線

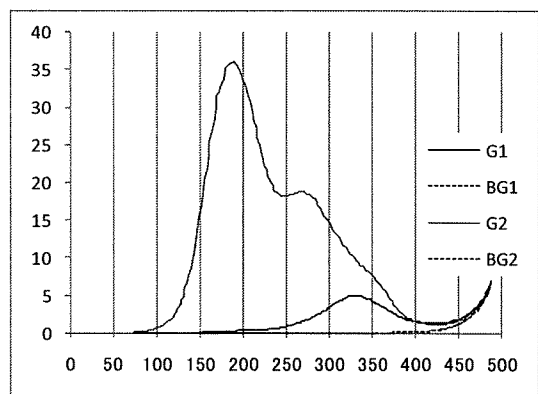
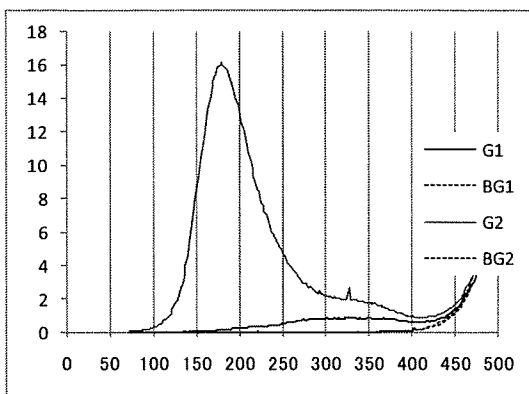


Fig.10 事例10の発光曲線

Fig.11 事例11の発光曲線

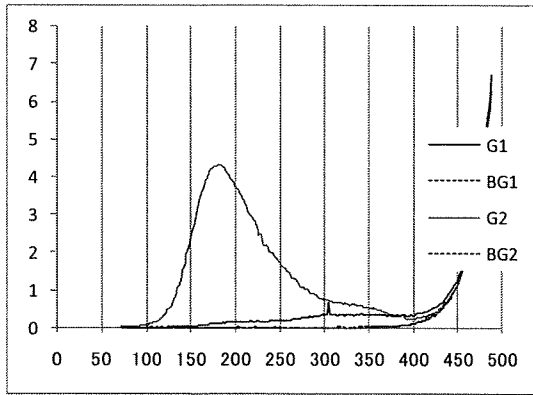


Fig.12 事例 12 の発光曲線

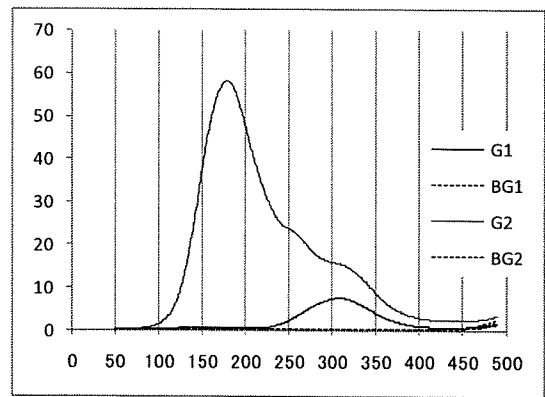
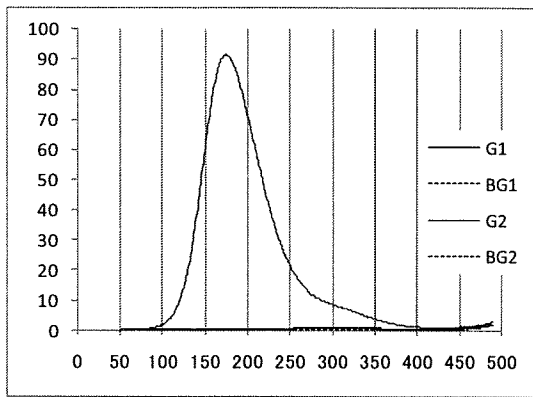


Fig.13 事例 13 の発光曲線

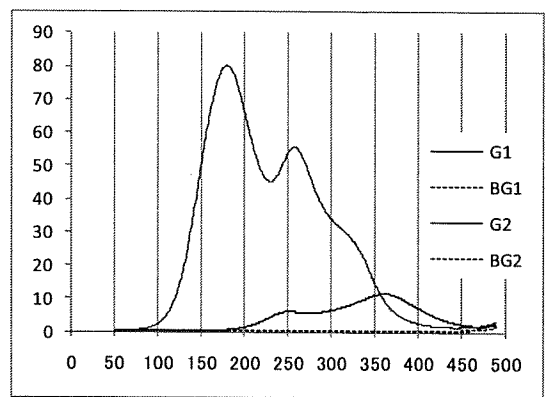
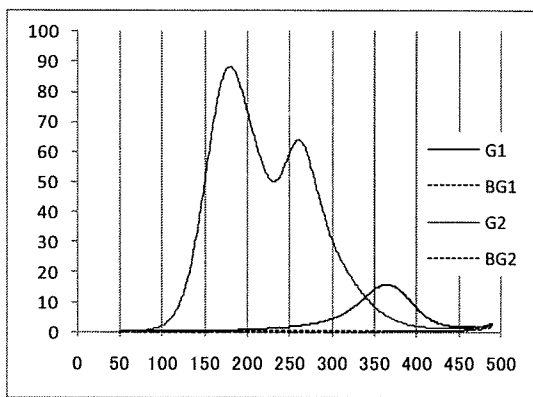
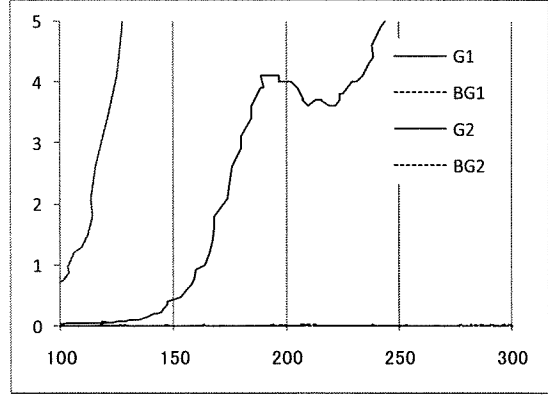
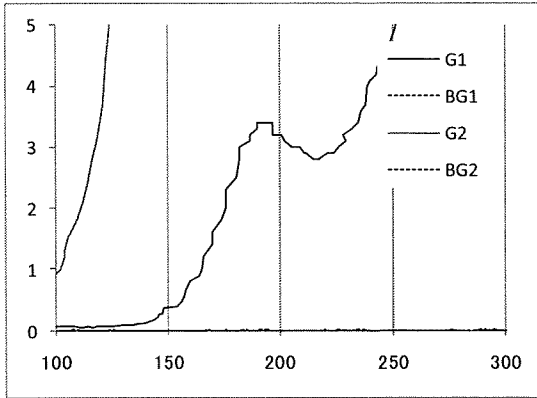
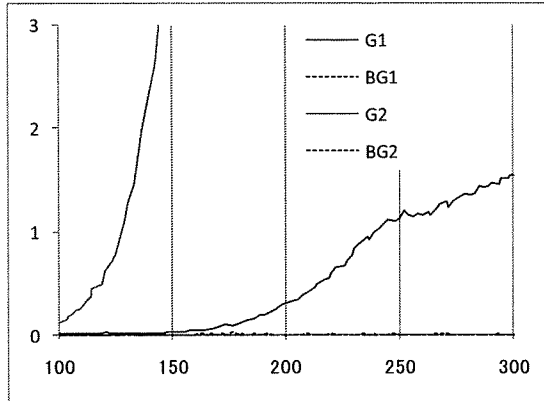


Fig.14 事例 14 の発光曲線

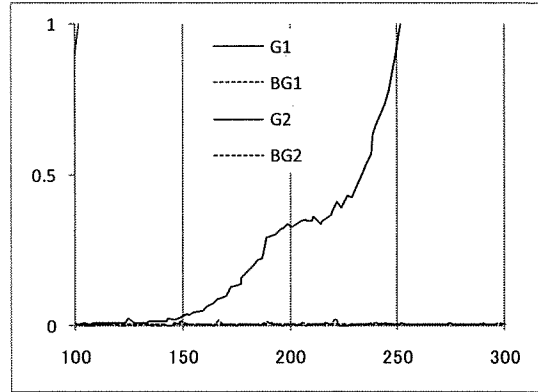
事例 7



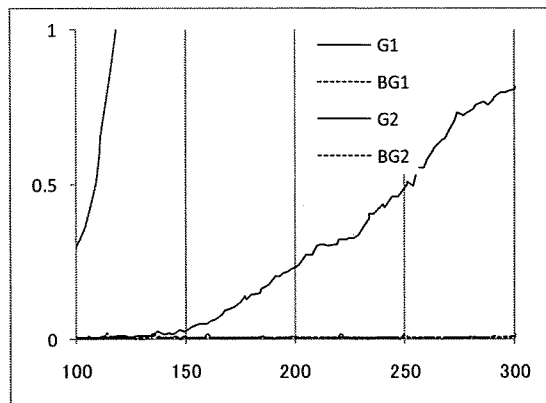
事例 8



事例 9



事例 10



事例 11

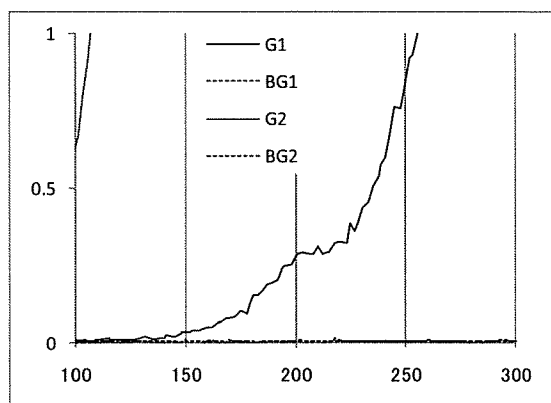
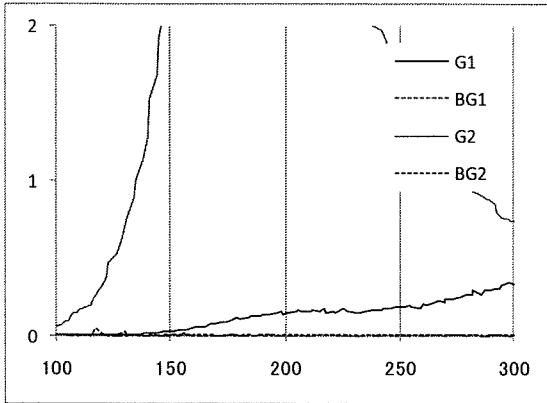
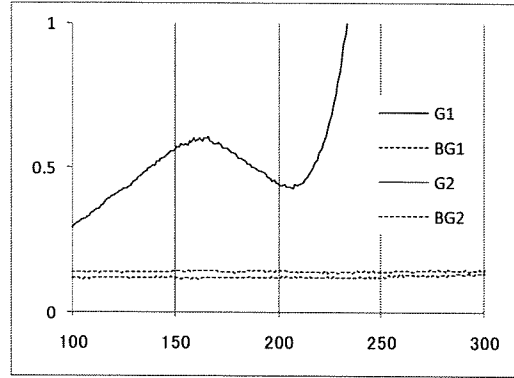
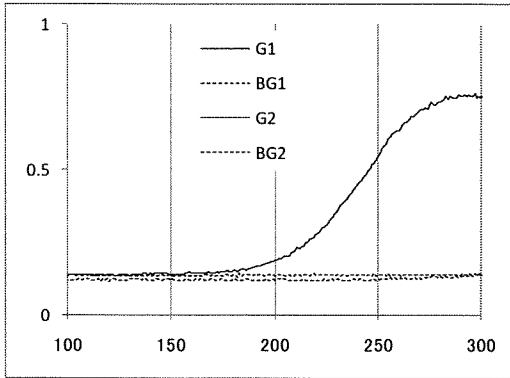


Fig.15 事例 7-14 の発光曲線拡大図

事例 12



事例 13



事例 14

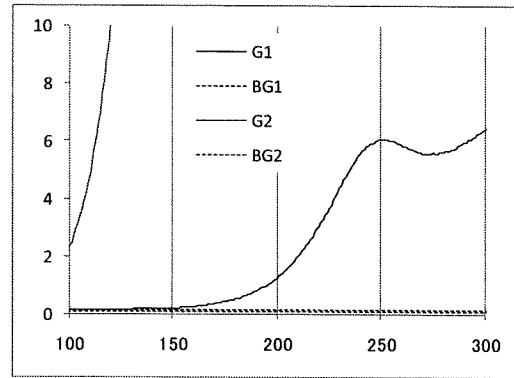
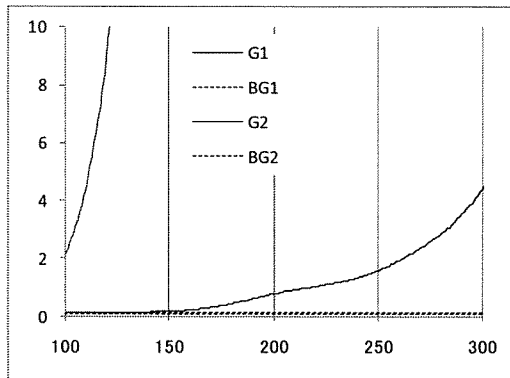


Fig.17 (続き) 事例 7-14 の発光曲線拡大図

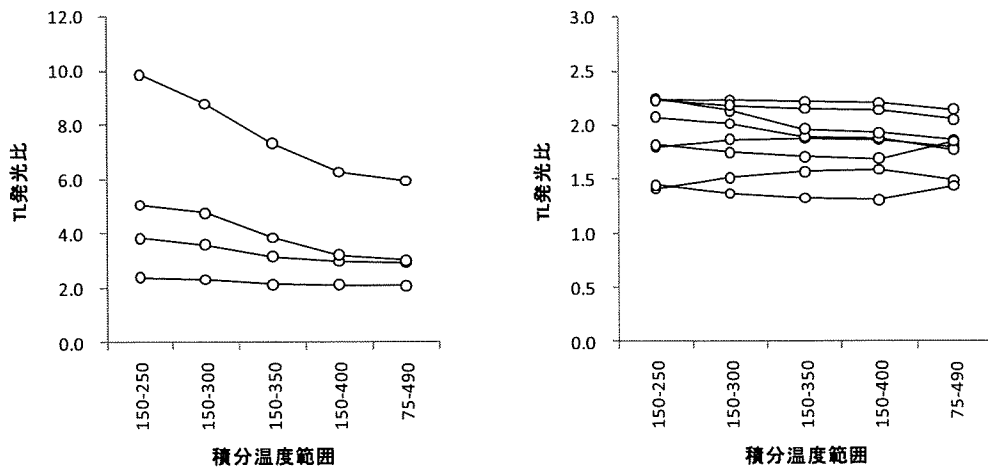


Fig.18 積分温度範囲と TL 発光比の関係 (事例 1-6)

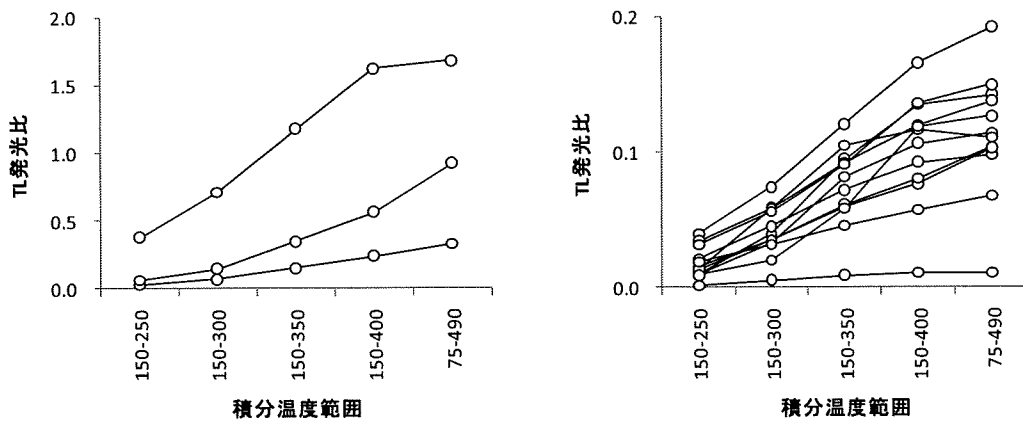


Fig.19 積分温度範囲と TL 発光比の関係 (事例 7-14)

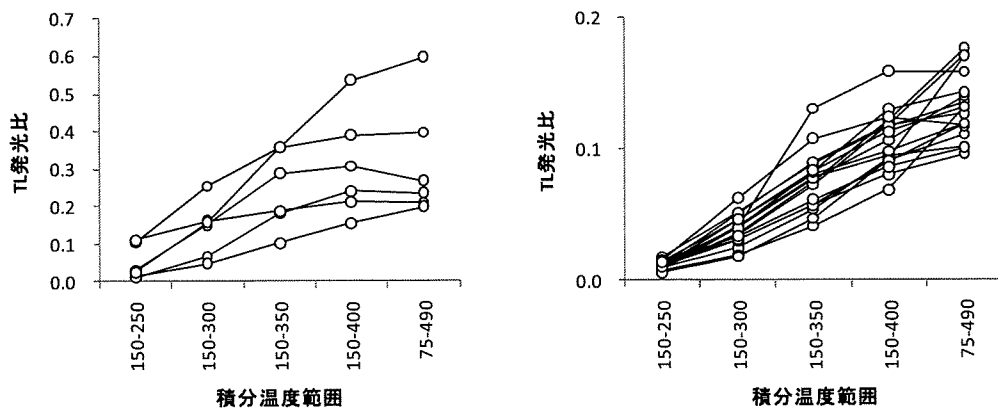


Fig.20 積分温度範囲と TL 発光比の関係 (事例 15-27)

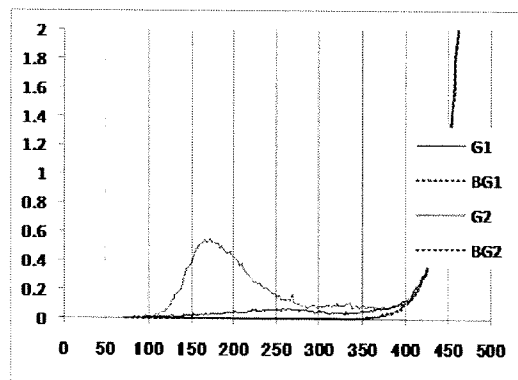
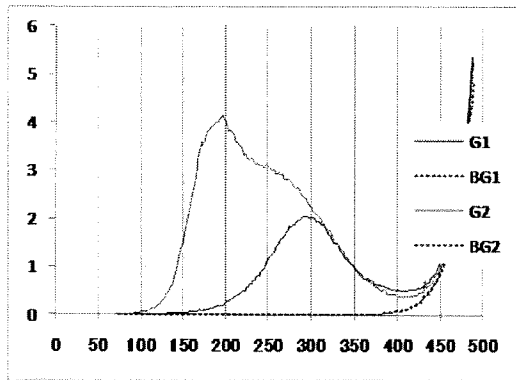


Fig.21 事例 18 と事例 20 の発光曲線

Table 1 積分温度範囲と TL 発光比の関係

事例	150-250	150-300	150-350	150-400	75-490
	EN1788				通知
1	2.39	2.32	2.15	2.13	2.09
	3.83	3.61	3.16	2.98	2.94
2	5.06	4.77	3.86	3.22	3.02
	9.86	8.80	7.33	6.27	5.95
3	1.80	1.87	1.88	1.87	1.80
	1.41	1.52	1.57	1.59	1.49
4	2.08	2.01	1.89	1.88	1.77
	2.25	2.13	1.96	1.93	1.86
5	2.23	2.23	2.22	2.20	2.14
	2.23	2.18	2.15	2.14	2.05
6	1.45	1.37	1.33	1.31	1.44
	1.82	1.75	1.71	1.69	1.85
7	0.03	0.07	0.15	0.24	0.33
	0.06	0.15	0.35	0.57	0.93
8	0.04	0.07	0.12	0.17	0.19
9	0.01	0.04	0.09	0.14	0.14
10	0.02	0.05	0.07	0.09	0.10
11	0.01	0.03	0.08	0.11	0.11
12	0.03	0.06	0.09	0.12	0.14
13	0.00	0.01	0.01	0.01	0.01
	0.01	0.06	0.11	0.12	0.11
14	0.01	0.02	0.06	0.12	0.13
	0.03	0.06	0.09	0.14	0.15
15	0.02	0.05	0.09	0.12	0.14
16	0.01	0.07	0.18	0.24	0.24
	0.03	0.15	0.29	0.31	0.27
17	0.01	0.04	0.07	0.12	0.18
	0.01	0.03	0.07	0.12	0.17
18	0.01	0.02	0.05	0.09	0.17
	0.01	0.02	0.04	0.07	0.13
19	0.01	0.05	0.09	0.12	0.13
20	0.11	0.25	0.36	0.39	0.40
21	0.01	0.04	0.08	0.09	0.10
	0.01	0.05	0.08	0.10	0.12
22	0.11	0.16	0.19	0.21	0.21
22	0.01	0.04	0.13	0.16	0.16
22	0.01	0.02	0.05	0.09	0.11
22	0.01	0.04	0.08	0.11	0.14
23	0.01	0.05	0.10	0.15	0.20
	0.01	0.04	0.08	0.13	0.14
24	0.01	0.05	0.08	0.11	0.13
	0.01	0.03	0.06	0.08	0.10
25	0.02	0.16	0.36	0.54	0.60
26	0.02	0.06	0.11	0.12	0.12
27	0.01	0.03	0.06	0.09	0.12
	0.01	0.03	0.06	0.09	0.10