

表17 ブラインド試料の判定結果(牛肉)

2-DCBの判定

	照射線量	判定項目の内容					各項目(①~④)の判定結果 ¹⁾				
		①S/N比		②ピーク面積比		③スキャン測定 (m/z98とm/z112の 合計強度の割合%)	④定量値 (µg/g lipid)	①	②	③	④
		m/z 98	m/z 112	m/z 98を100と した時のm/z 112の割合%	近似する STDとの比 較%						
牛肉	0 kGy #1	-	-	-	-	6	-	x	x	x	x
	0 kGy #2	-	-	-	-	17	-	x	x	x	x
	0.5 kGy #1	97	52	19	-13	68	0.074	○	○	○	○
	0.5 kGy #2	129	60	20	-11	67	0.075	○	○	○	○
	1 kGy #1	201	103	21	-8	70	0.109	○	○	○	○
	1 kGy #2	156	44	20	-11	67	0.117	○	○	○	○
	2 kGy #1	102	214	21	-5	71	0.221	○	○	○	○
	2 kGy #2	261	205	21	-6	72	0.223	○	○	○	○
	4 kGy #1	460	409	22	-4	72	0.456	○	○	○	○
	4 kGy #2	464	178	22	-1	72	0.476	○	○	○	○

- 1)各項目は下記の基準に従い判定した。
 ①m/z 98及びm/z 112にS/N比3以上のピークを認めること。
 ②m/z 98及びm/z 112で観測されるピーク面積の比は、m/z 98において近似した面積を与える検量線用標準溶液から得られるピーク面積比の、±20%以内であること。
 ③保持時間付近でm/z 95からm/z 115の範囲でスキャン測定を行うとき、m/z 98及びm/z 112が主要イオン(2つのイオンの合計強度が50%以上)である。
 ④定量値が検量線用標準溶液のS/N比3から求めた濃度(0.054 × 10⁻³ µg/g lipid)以上であること。

2-TCBの判定

	照射線量	判定項目の内容					各項目(①~④)の判定結果 ¹⁾				
		①S/N比		②ピーク面積比		③スキャン測定 (m/z98とm/z112の 合計強度の割合%)	④定量値 (µg/g lipid)	①	②	③	④
		m/z 98	m/z 112	m/z 98を100と した時のm/z 112の割合%	近似する STDとの比 較%						
牛肉	0 kGy #1	-	-	-	-	1	-	x	x	x	x
	0 kGy #2	-	-	-	-	0	-	x	x	x	x
	0.5 kGy #1	292	172	24	0	74	0.097	○	○	○	○
	0.5 kGy #2	129	36	25	5	76	0.118	○	○	○	○
	1 kGy #1	201	123	23	-1	72	0.179	○	○	○	○
	1 kGy #2	156	109	24	3	71	0.190	○	○	○	○
	2 kGy #1	233	254	24	-1	71	0.354	○	○	○	○
	2 kGy #2	261	246	24	-1	69	0.362	○	○	○	○
	4 kGy #1	460	585	24	-1	72	0.727	○	○	○	○
	4 kGy #2	464	229	24	0	72	0.764	○	○	○	○

- 1)各項目は下記の基準に従い判定した。
 ①m/z 98及びm/z 112にS/N比3以上のピークを認めること。
 ②m/z 98及びm/z 112で観測されるピーク面積の比は、m/z 98において近似した面積を与える検量線用標準溶液から得られるピーク面積比の、±20%以内であること。
 ③保持時間付近でm/z 95からm/z 115の範囲でスキャン測定を行うとき、m/z 98及びm/z 112が主要イオン(2つのイオンの合計強度が50%以上)である。
 ④定量値が検量線用標準溶液のS/N比3から求めた濃度(0.068 × 10⁻³ µg/g lipid)以上であること。

表18 ブラインド試料の判定結果(豚肉)

2-DCBの判定

	照射線量	判定項目の内容					各項目(①~④)の判定結果 ¹⁾				
		①S/N比		②ピーク面積比		③スキャン測定 (m/z98とm/z112の 合計強度の割合%)	④定量値 (µg/g lipid)	①	②	③	④
		m/z 98	m/z 112	m/z 98を100と した時のm/z 112の割合%	近似する STDとの比 較%						
豚肉	0 kGy #1	-	-	-	-	30	-	x	x	x	x
	0 kGy #2	-	-	-	-	16	-	x	x	x	x
	0.5 kGy #1	161	113	22	0	62	0.046	○	○	○	○
	0.5 kGy #2	155	82	21	-7	61	0.053	○	○	○	○
	1 kGy #1	244	140	21	-6	67	0.113	○	○	○	○
	1 kGy #2	257	195	21	-6	67	0.106	○	○	○	○
	2 kGy #1	358	398	22	-4	69	0.200	○	○	○	○
	2 kGy #2	332	285	22	-2	69	0.201	○	○	○	○
	4 kGy #1	395	385	22	-3	71	0.499	○	○	○	○
	4 kGy #2	508	342	22	-4	72	0.488	○	○	○	○

- 1)各項目は下記の基準に従い判定した。
 ①m/z 98及びm/z 112にS/N比3以上のピークを認めること。
 ②m/z 98及びm/z 112で観測されるピーク面積の比は、m/z 98において近似した面積を与える検量線用標準溶液から得られるピーク面積比の、±20%以内であること。
 ③保持時間付近でm/z 95からm/z 115の範囲でスキャン測定を行うとき、m/z 98及びm/z 112が主要イオン(2つのイオンの合計強度が50%以上)である。
 ④定量値が検量線用標準溶液のS/N比3から求めた濃度(0.054 × 10⁻³ µg/g lipid)以上であること。

2-TCBの判定

	照射線量	判定項目の内容					各項目(①~④)の判定結果 ¹⁾				
		①S/N比		②ピーク面積比		③スキャン測定 (m/z98とm/z112の 合計強度の割合%)	④定量値 (µg/g lipid)	①	②	③	④
		m/z 98	m/z 112	m/z 98を100と した時のm/z 112の割合%	近似する STDとの比 較%						
豚肉	0 kGy #1	-	-	-	-	41	-	x	x	x	x
	0 kGy #2	-	-	-	-	27	-	x	x	x	x
	0.5 kGy #1	348	109	23	-2	75	0.118	○	○	○	○
	0.5 kGy #2	399	193	23	-1	76	0.115	○	○	○	○
	1 kGy #1	629	219	23	-2	75	0.232	○	○	○	○
	1 kGy #2	569	321	23	-1	75	0.264	○	○	○	○
	2 kGy #1	535	549	23	-1	76	0.509	○	○	○	○
	2 kGy #2	456	384	23	-1	75	0.505	○	○	○	○
	4 kGy #1	732	745	24	-1	74	1.098	○	○	○	○
	4 kGy #2	1030	1189	24	0	74	1.007	○	○	○	○

- 1)各項目は下記の基準に従い判定した。
 ①m/z 98及びm/z 112にS/N比3以上のピークを認めること。
 ②m/z 98及びm/z 112で観測されるピーク面積の比は、m/z 98において近似した面積を与える検量線用標準溶液から得られるピーク面積比の、±20%以内であること。
 ③保持時間付近でm/z 95からm/z 115の範囲でスキャン測定を行うとき、m/z 98及びm/z 112が主要イオン(2つのイオンの合計強度が50%以上)である。
 ④定量値が検量線用標準溶液のS/N比3から求めた濃度(0.068 × 10⁻³ µg/g lipid)以上であること。

表19 ブラインド試料の判定結果(鶏肉)

2-DCBの判定

	照射線量	判定項目の内容					各項目(①~④)の判定結果 ¹⁾				
		①S/N比		②ピーク面積比		③スキャン測定 (m/z98とm/z112の 合計強度の割合%)	④定量値 (µg/g lipid)	①	②	③	④
		m/z 98	m/z 112	m/z 98を100と した時のm/z 112の割合%	近似する STDとの比 較%						
鶏肉	0 kGy #1	-	-	-	-	7	-	x	x	x	x
	0 kGy #2	-	-	-	-	13	-	x	x	x	x
	0.25 kGy #1	245	25	18	-19	62	0.039	○	○	○	○
	0.25 kGy #2	256	58	21	-6	65	0.038	○	○	○	○
	0.5 kGy #1	315	42	21	-4	66	0.086	○	○	○	○
	0.5 kGy #2	427	49	21	-5	67	0.085	○	○	○	○
	1 kGy #1	666	368	22	-2	72	0.197	○	○	○	○
	1 kGy #2	738	386	23	2	70	0.192	○	○	○	○
	2 kGy #1	863	742	22	-2	73	0.498	○	○	○	○
	2 kGy #2	669	658	21	-6	72	0.385	○	○	○	○

- 1)各項目は下記の基準に従い判定した。
 ①m/z 98及びm/z 112にS/N比3以上のピークを認めること。
 ②m/z 98及びm/z 112で観測されるピーク面積の比は、m/z 98において近似した面積を与える検量線用標準溶液から得られるピーク面積比の、±20%以内であること。
 ③保持時間付近でm/z 95からm/z 115の範囲でスキャン測定を行うとき、m/z 98及びm/z 112が主要イオン(2つのイオンの合計強度が50%以上)である。
 ④定量値が検量線用標準溶液のS/N比3から求めた濃度(0.054 × 10⁻³ µg/g lipid)以上であること。

2-TCBの判定

	照射線量	判定項目の内容					各項目(①~④)の判定結果 ¹⁾				
		①S/N比		②ピーク面積比		③スキャン測定 (m/z98とm/z112の 合計強度の割合%)	④定量値 (µg/g lipid)	①	②	③	④
		m/z 98	m/z 112	m/z 98を100と した時のm/z 112の割合%	近似する STDとの比 較%						
鶏肉	0 kGy #1	-	-	-	-	0	-	x	x	x	x
	0 kGy #2	-	-	-	-	21	-	x	x	x	x
	0.25 kGy #1	66	125	23	0	85	0.020	○	○	○	○
	0.25 kGy #2	75	72	23	-2	90	0.018	○	○	○	○
	0.5 kGy #1	95	99	23	0	83	0.042	○	○	○	○
	0.5 kGy #2	87	113	23	-1	82	0.038	○	○	○	○
	1 kGy #1	131	620	23	-1	81	0.085	○	○	○	○
	1 kGy #2	104	480	23	-1	81	0.092	○	○	○	○
	2 kGy #1	106	140	23	-1	79	0.219	○	○	○	○
	2 kGy #2	84	191	23	-1	80	0.182	○	○	○	○

- 1)各項目は下記の基準に従い判定した。
 ①m/z 98及びm/z 112にS/N比3以上のピークを認めること。
 ②m/z 98及びm/z 112で観測されるピーク面積の比は、m/z 98において近似した面積を与える検量線用標準溶液から得られるピーク面積比の、±20%以内であること。
 ③保持時間付近でm/z 95からm/z 115の範囲でスキャン測定を行うとき、m/z 98及びm/z 112が主要イオン(2つのイオンの合計強度が50%以上)である。
 ④定量値が検量線用標準溶液のS/N比3から求めた濃度(0.068 × 10⁻³ µg/g lipid)以上であること。

表20 ブラインド試料の判定結果(サーモン)

2-DCBの判定

	照射線量	判定項目の内容					各項目(①~④)の判定結果 ¹⁾				
		①S/N比		②ピーク面積比		③スキャン測定 (m/z98とm/z112の 合計強度の割合%)	④定量値 (µg/g lipid)	①	②	③	④
		m/z 98	m/z 112	m/z 98を100と した時のm/z 112の割合%	近似する STDとの比 較%						
サーモン	0 kGy #1	-	-	-	-	14	-	x	x	x	x
	0 kGy #2	-	-	-	-	17	-	x	x	x	x
	0.5 kGy #1	401	21	20	-12	75	0.037	○	○	○	○
	0.5 kGy #2	405	51	20	-12	64	0.051	○	○	○	○
	1 kGy #1	134	27	21	-5	66	0.105	○	○	○	○
	1 kGy #2	145	36	22	0	65	0.100	○	○	○	○
	2 kGy #1	132	89	21	-5	71	0.227	○	○	○	○
	2 kGy #2	149	108	21	-7	71	0.195	○	○	○	○
	4 kGy #1	334	105	22	-4	70	0.400	○	○	○	○
	4 kGy #2	149	327	22	-2	71	0.404	○	○	○	○

- 1)各項目は下記の基準に従い判定した。
 ①m/z 98及びm/z 112にS/N比3以上のピークを認めること。
 ②m/z 98及びm/z 112で観測されるピーク面積の比は、m/z 98において近似した面積を与える検量線用標準溶液から得られるピーク面積比の、±20%以内であること。
 ③保持時間付近でm/z 95からm/z 115の範囲でスキャン測定を行うとき、m/z 98及びm/z 112が主要イオン(2つのイオンの合計強度が50%以上)である。
 ④定量値が検量線用標準溶液のS/N比3から求めた濃度(0.054 × 10⁻³ µg/g lipid)以上であること。

2-TCBの判定

	照射線量	判定項目の内容					各項目(①~④)の判定結果 ¹⁾				
		①S/N比		②ピーク面積比		③スキャン測定 (m/z98とm/z112の 合計強度の割合%)	④定量値 (µg/g lipid)	①	②	③	④
		m/z 98	m/z 112	m/z 98を100と した時のm/z 112の割合%	近似する STDとの比 較%						
サーモン	0 kGy #1	-	-	-	-	19	-	x	x	x	x
	0 kGy #2	-	-	-	-	5	-	x	x	x	x
	0.5 kGy #1	33	43	22	-10	68	0.014	○	○	○	○
	0.5 kGy #2	70	21	23	-4	73	0.017	○	○	○	○
	1 kGy #1	93	40	24	3	62	0.037	○	○	○	○
	1 kGy #2	126	42	23	-1	69	0.034	○	○	○	○
	2 kGy #1	108	84	23	-1	67	0.076	○	○	○	○
	2 kGy #2	150	117	24	2	66	0.068	○	○	○	○
	4 kGy #1	125	102	25	6	65	0.149	○	○	○	○
	4 kGy #2	214	198	24	3	67	0.151	○	○	○	○

- 1)各項目は下記の基準に従い判定した。
 ①m/z 98及びm/z 112にS/N比3以上のピークを認めること。
 ②m/z 98及びm/z 112で観測されるピーク面積の比は、m/z 98において近似した面積を与える検量線用標準溶液から得られるピーク面積比の、±20%以内であること。
 ③保持時間付近でm/z 95からm/z 115の範囲でスキャン測定を行うとき、m/z 98及びm/z 112が主要イオン(2つのイオンの合計強度が50%以上)である。
 ④定量値が検量線用標準溶液のS/N比3から求めた濃度(0.068 × 10⁻³ µg/g lipid)以上であること。

表21 冷凍保存した照射食品の判定結果

2-DCBの判定

	照射線量	判定項目の内容					各項目(①~④)の判定結果 ¹⁾				
		①S/N比		②ピーク面積比		③スキャン測定 (m/z98とm/z112の 合計強度の割合%)	④定量値 ($\mu\text{g/g lipid}$)	①	②	③	④
		m/z 98	m/z 112	m/z 98を100と した時のm/z 112の割合%	近似する STDとの比 較%						
牛肉	0.5 kGy #1	101	103	24	0	69	0.11	○	○	○	○
	0.5 kGy #2	101	94	27	10	65	0.11	○	○	○	○
	1 kGy #1	93	189	24	2	70	0.15	○	○	○	○
	1 kGy #2	124	90	26	8	70	0.14	○	○	○	○
豚肉	0.5 kGy #1	101	85	23	-2	66	0.088	○	○	○	○
	0.5 kGy #2	95	68	24	-2	64	0.067	○	○	○	○
	1 kGy #1	92	105	24	-1	60	0.12	○	○	○	○
	1 kGy #2	111	85	24	0	70	0.11	○	○	○	○
鶏肉	0.25 kGy #1	71	52	24	0	69	0.057	○	○	○	○
	0.25 kGy #2	62	53	25	3	70	0.053	○	○	○	○
	0.5 kGy #1	78	54	24	1	68	0.093	○	○	○	○
	0.5 kGy #2	70	49	24	-1	73	0.097	○	○	○	○
サーモン	0.5 kGy #1	68	58	28	14	60	0.089	○	○	○	○
	0.5 kGy #2	69	102	25	2	64	0.087	○	○	○	○
	1 kGy #1	89	63	28	16	64	0.16	○	○	○	○
	1 kGy #2	88	69	28	14	64	0.15	○	○	○	○

1)各項目は下記の基準に従い判定した。

①m/z 98及びm/z 112にS/N比3以上のピークを認めること。

②m/z 98及びm/z 112で観測されるピーク面積の比は、m/z 98において近似した面積を与える検量線用標準溶液から得られるピーク面積比の、±20%以内であること。

③保持時間付近でm/z 95からm/z 115の範囲でスキャン測定を行うとき、m/z 98及びm/z 112が主要イオン(2つのイオンの合計強度が50%以上)である。

④定量値が検量線用標準溶液のS/N比3から求めた濃度($0.021 \times 10^{-3} \mu\text{g/g lipid}$)以上であること。

2-TCBの判定

	照射線量	判定項目の内容					各項目(①~④)の判定結果 ¹⁾				
		①S/N比		②ピーク面積比		③スキャン測定 (m/z98とm/z112の 合計強度の割合%)	④定量値 ($\mu\text{g/g lipid}$)	①	②	③	④
		m/z 98	m/z 112	m/z 98を100と した時のm/z 112の割合%	近似する STDとの比 較%						
牛肉	0.5 kGy #1	72	98	25	-2	73	0.11	○	○	○	○
	0.5 kGy #2	98	75	25	-2	70	0.11	○	○	○	○
	1 kGy #1	229	92	24	-3	70	0.19	○	○	○	○
	1 kGy #2	215	70	24	-3	72	0.18	○	○	○	○
豚肉	0.5 kGy #1	45	64	24	-4	76	0.12	○	○	○	○
	0.5 kGy #2	45	58	24	-4	76	0.12	○	○	○	○
	1 kGy #1	103	90	25	-3	74	0.24	○	○	○	○
	1 kGy #2	104	116	24	-5	78	0.18	○	○	○	○
鶏肉	0.25 kGy #1	55	37	26	4	83	0.020	○	○	○	○
	0.25 kGy #2	83	57	25	-3	82	0.018	○	○	○	○
	0.5 kGy #1	103	62	26	1	82	0.033	○	○	○	○
	0.5 kGy #2	106	50	26	3	83	0.034	○	○	○	○
サーモン	0.5 kGy #1	32	21	23	-10	63	0.020	○	○	○	○
	0.5 kGy #2	33	20	23	-8	65	0.020	○	○	○	○
	1 kGy #1	67	34	25	-1	63	0.044	○	○	○	○
	1 kGy #2	74	44	26	1	68	0.042	○	○	○	○

1)各項目は下記の基準に従い判定した。

①m/z 98及びm/z 112にS/N比3以上のピークを認めること。

②m/z 98及びm/z 112で観測されるピーク面積の比は、m/z 98において近似した面積を与える検量線用標準溶液から得られるピーク面積比の、±20%以内であること。

③保持時間付近でm/z 95からm/z 115の範囲でスキャン測定を行うとき、m/z 98及びm/z 112が主要イオン(2つのイオンの合計強度が50%以上)である。

④定量値が検量線用標準溶液のS/N比3から求めた濃度($0.065 \times 10^{-3} \mu\text{g/g lipid}$)以上であること。

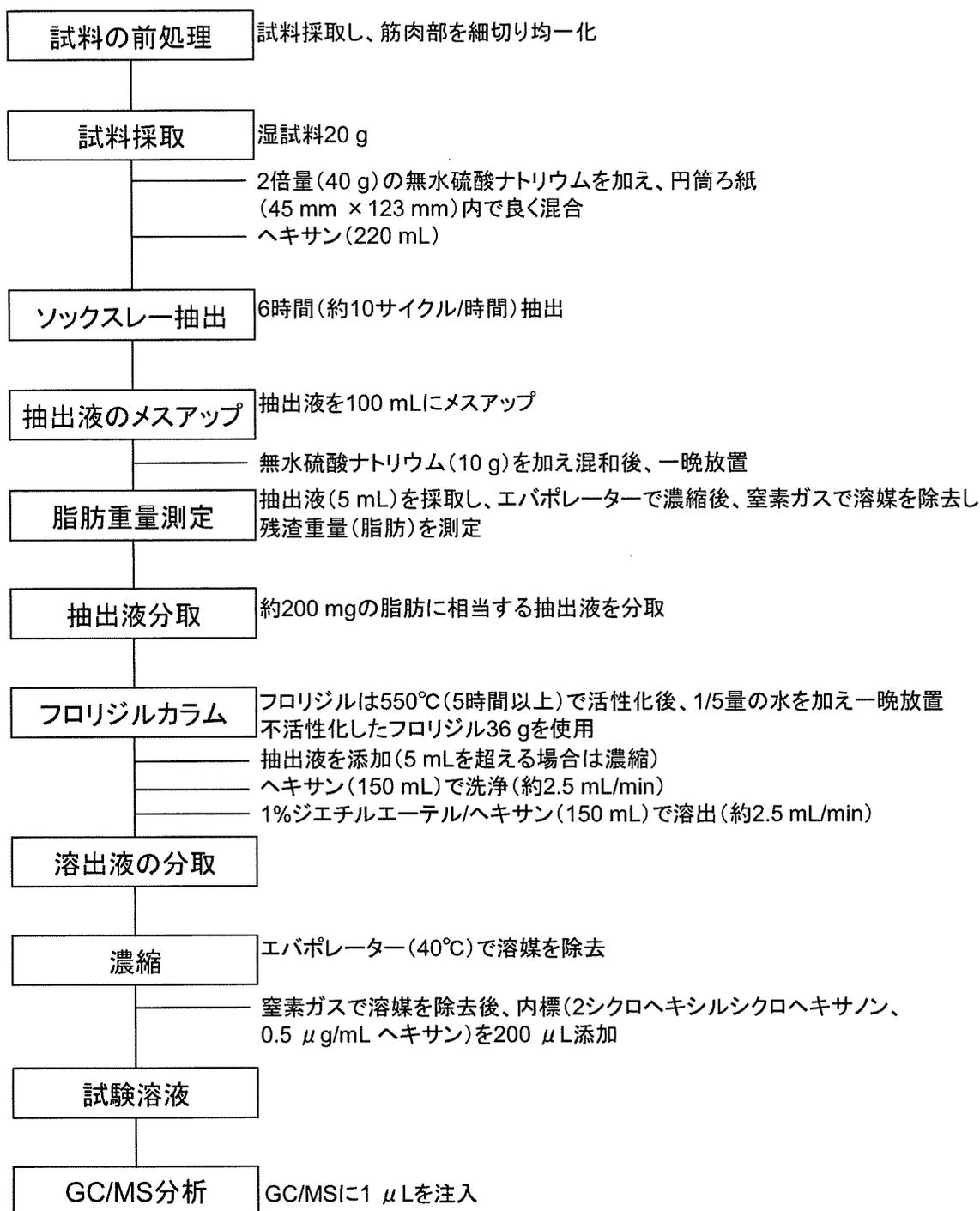


図1 本試験法のフローチャート

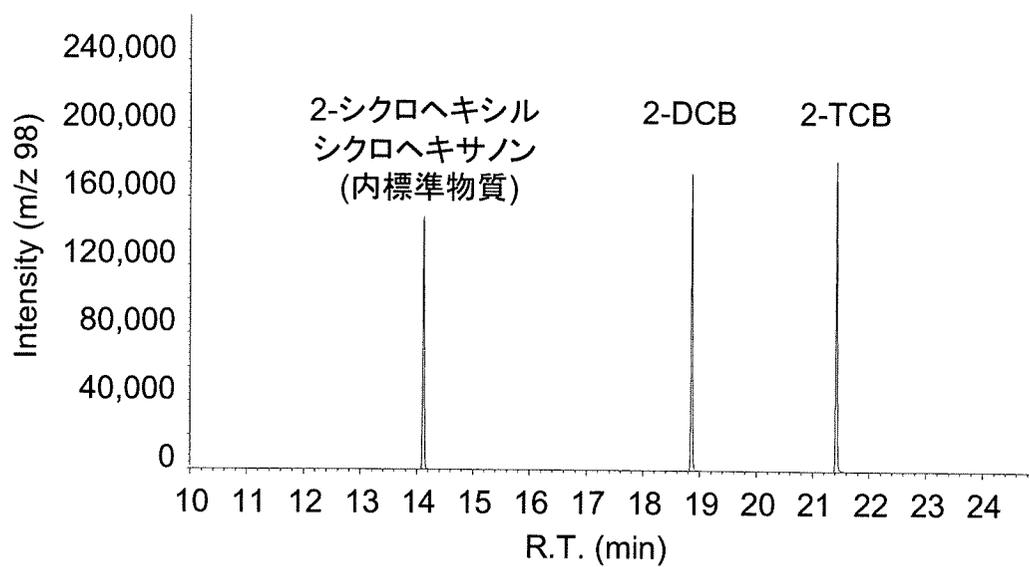
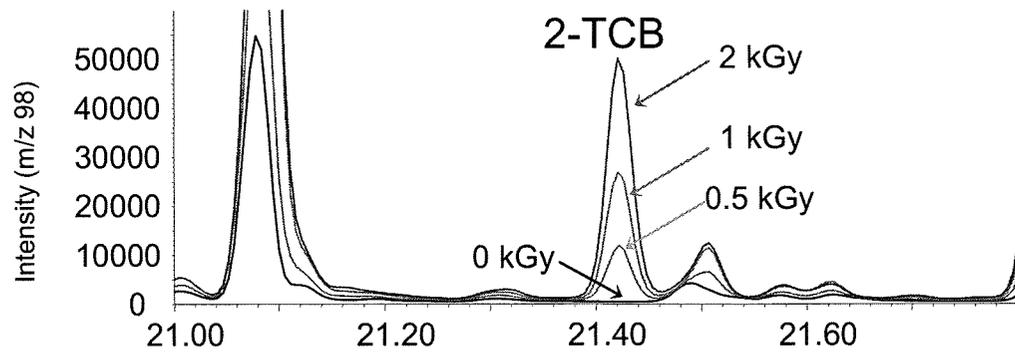
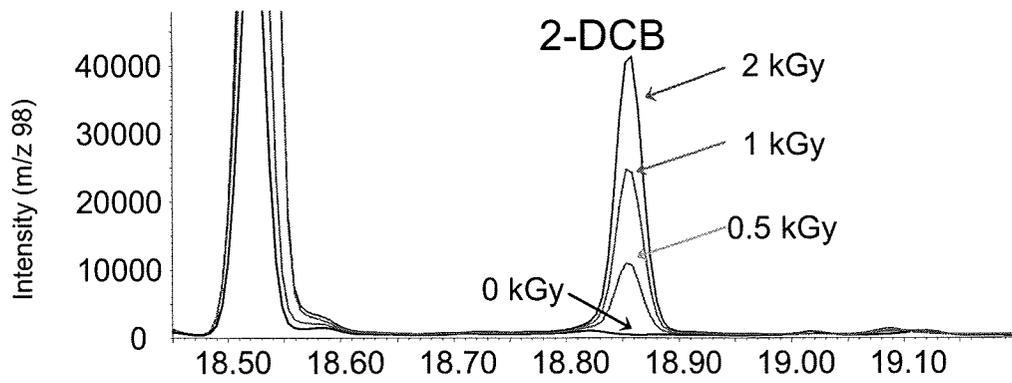


図2 検量線用標準溶液のSIMクロマトグラム
 1 $\mu\text{g}/\text{mL}$ の2-DCB及び2-TCB(0.5 $\mu\text{g}/\text{mL}$ の内標準物質を含む)

牛肉



豚肉

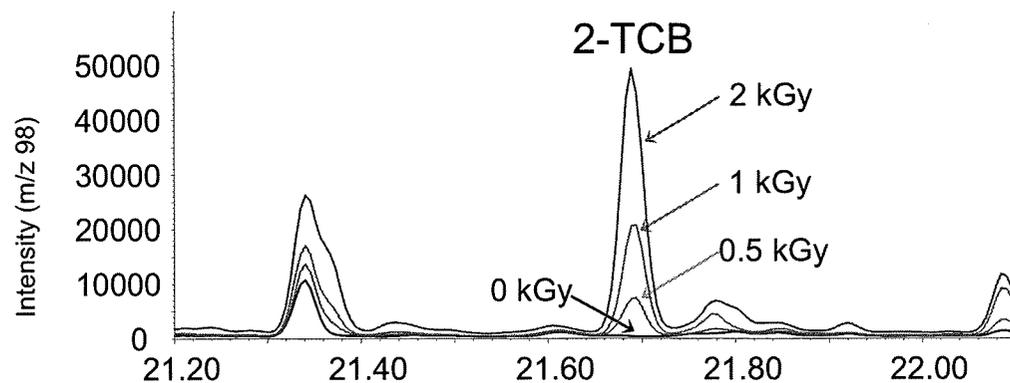
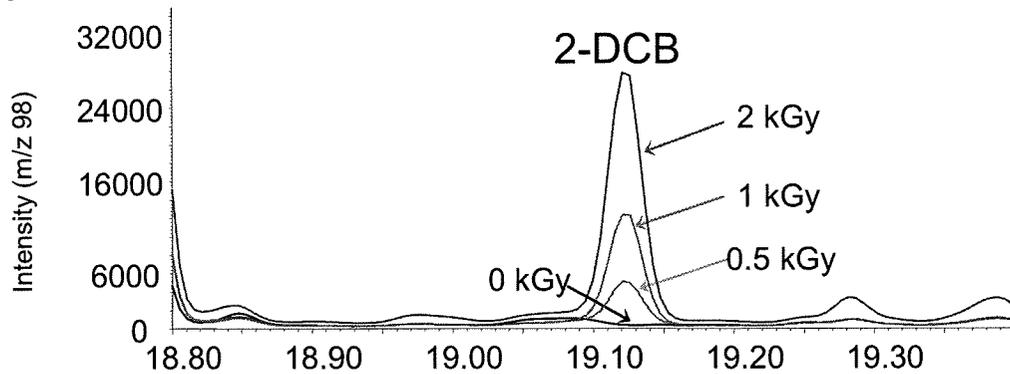
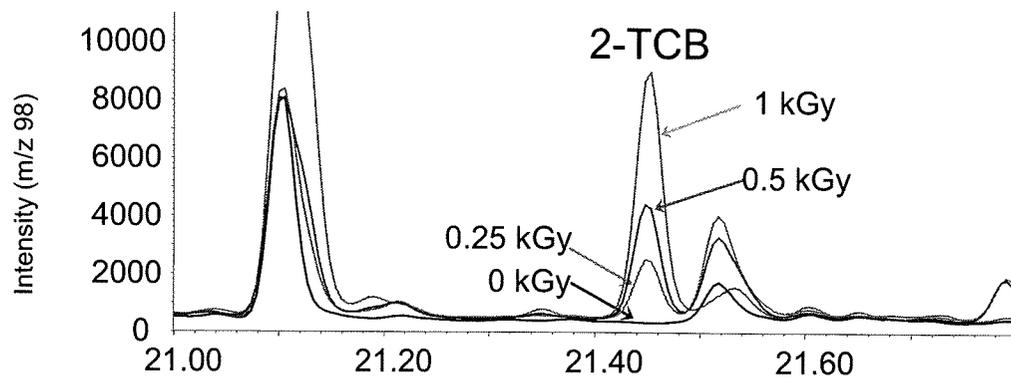
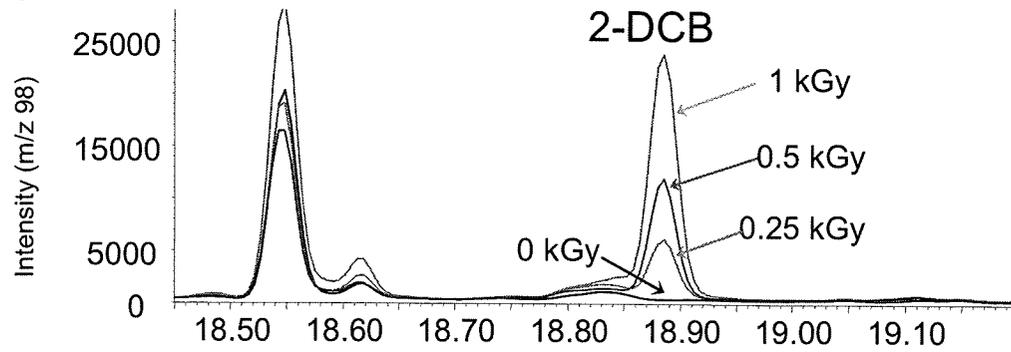


図3 未照射及び照射食品のSIMクロマトグラム(牛肉、豚肉)

鶏肉



サーモン

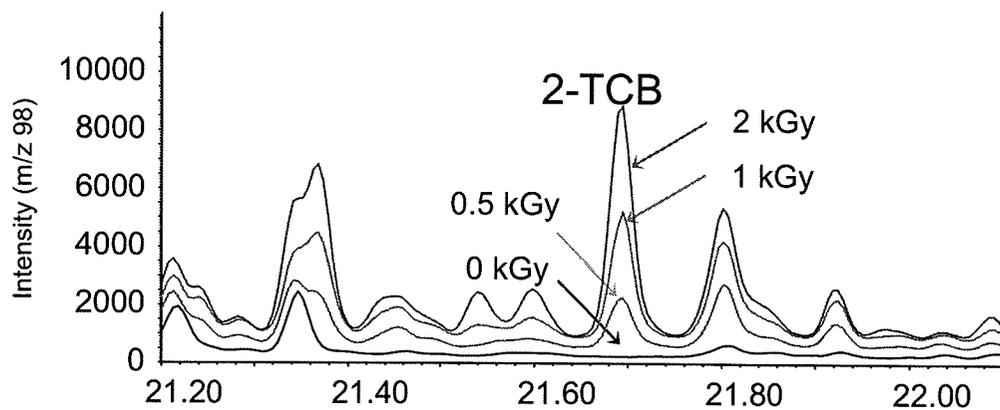
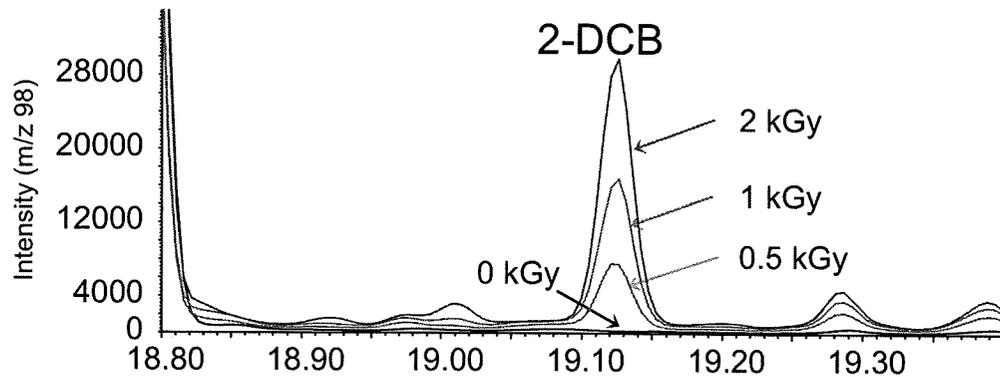


図3 未照射及び照射食品のSIMクロマトグラム(鶏肉、サーモン)

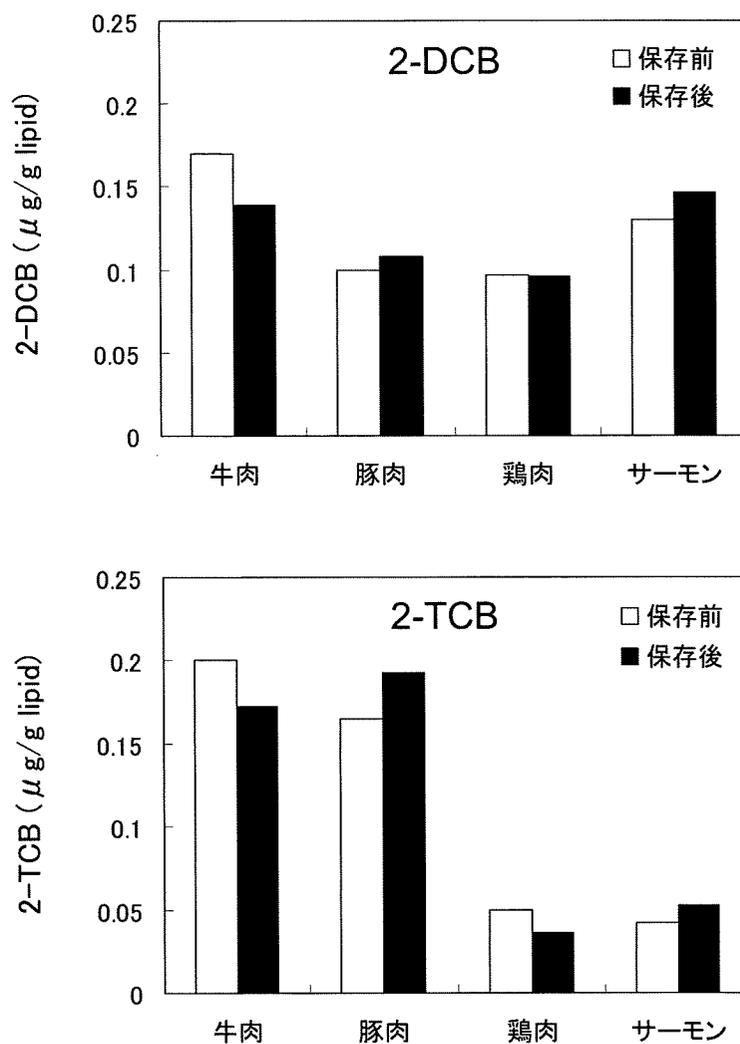


図4 凍結保存による2-DCB及び2-TCB濃度の変化

放射線照射後(鶏肉は0.5 kGy、他の試料は1 kGyを照射)、10日以内に分析した試料を保存前試料とした。一方、照射後、-30°Cで6~9カ月密封保存した試料を保存後試料として分析した。棒グラフはn=2の平均値を示す。

論文リストと別刷り

- 武川哲也、宮原 誠、米谷民雄:微生物による香辛料の放射線照射検知スクリーニング法の検討, *防菌防黴*, 35, 251-257, 2007
- 後藤典子、山崎正夫、関口正之、等々力節子、宮原 誠: 非照射香辛料に混合した照射香辛料の熱ルミネッセンス法による検知, *Radioisotopes* , 56, 103-113, 2007
- 宮原 誠:食品照射検知法の現状2007, *食品衛生研究*, 57, 33-48, 2007
- 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, *Bulletin of National Institute of Health Sciences*, 125, 107-118, 2007
- 宮原 美知子、宮原 誠:塩漬け野菜の保存と電子線照射における腸管性出血性大腸菌、大腸菌群と生菌数も菌数消長について, *防菌防黴*, 35, 779-783, 2007
- 越川富比古、松島 昌子、廣庭隆行、宮原誠:食品照射検知のLAL/GNB法の測定条件の検討, *防菌防黴*, 36, 213-221, 2008
- 越川富比古、松島 昌子、廣庭隆行、武川哲也、宮原誠:照射香辛料の生残菌の同定による照射判定の向上, *防菌防黴*, 37, 15-20, 2009
- 武川哲也、越川富比古、宮原誠, 照射食品検知のための微生物法(熱処理法)の開発と実験室間再現性について, *防菌防黴*, 37, 181-193, 2009
- M. Miyahara, T. Takekawa, T. Koshikawa, M. Furuta, S. Oda, T. Akiba, T. Mori, T. Mimura, C. Sawada, T. Yamaguchi, S. Nishioka, M. Tada: Verification of the new detection method for irradiated spices based on microbial survival by collaborative blind trial, *Radiation Physics and Chemistry* , 78, 699-701, 2009
- 宮原 誠、廣庭 隆行、増水章季、原 英之、岡野和史、武川哲也、須永博美:アラニン線量計を用いた北海道士幌町農業協同組合士幌アイソトープ照射センターの線量分布測定, *Radioisotopes*, 58, 815-825, 2009

Volume 78 Issues 7-8 July/August 2009 ISSN 0969-806X



Radiation Physics and Chemistry

The Journal for Radiation Physics, Radiation Chemistry and Radiation Processing
A multidisciplinary journal linking science and industry



Editors

M. J. COOPER
D. E. CULLEN
D. EHLERMANN
S. S. EMMI
J. FERNANDEZ-VAREA
J. L. GARNETT
N. GETOFF
O. GÜVEN
D. T. L. JONES
W. KNOLLE
J. A. LAVERNE
L. MUSILEK
P. NETA
D. RAZEM
S. C. ROY
P. SHARPE
A. SINGH
M. SPOTHEIM-MAURIZOT
A. TALLENTIRE
P. ULANSKI
L. S. WATERS
A. WHITTAKER

Editors-in-Chief

Radiation Physics: P. M. Bergstrom, Jr
Radiation Chemistry: L. Wojnárovits
Radiation Processing: A. Miller

PROCEEDINGS OF 15TH INTERNATIONAL MEETING ON RADIATION PROCESSING
21-25 September 2008, London

Guest Editors: JOHN WOOLSTON
CATHIE DEELEY
ARNE MILLER



Radiation Physics and Chemistry is a journal recognised by the International Radiation Physics Society

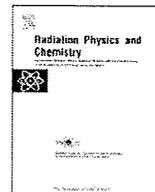
<http://www.elsevier.com/locate/radphyschem>

This article appeared in a journal published by Elsevier. The attached copy is furnished to the author for internal non-commercial research and education use, including for instruction at the authors institution and sharing with colleagues.

Other uses, including reproduction and distribution, or selling or licensing copies, or posting to personal, institutional or third party websites are prohibited.

In most cases authors are permitted to post their version of the article (e.g. in Word or Tex form) to their personal website or institutional repository. Authors requiring further information regarding Elsevier's archiving and manuscript policies are encouraged to visit:

<http://www.elsevier.com/copyright>



Verification of the new detection method for irradiated spices based on microbial survival by collaborative blind trial

M. Miyahara^{a,*}, M. Furuta^b, T. Takekawa^c, S. Oda^d, T. Koshikawa^e, T. Akiba^f,
T. Mori^g, T. Mimura^h, C. Sawadaⁱ, T. Yamaguchi^j, S. Nishioka^k, M. Tada^l

^a National Institute of Health Sciences, 1-18-1 Kamiyoga, Setagaya-Ku, Tokyo, Japan

^b Osaka Prefecture University, 1-2 Gakuen-Cho, Naka-ku, Sakai, 599-8570 Osaka, Japan

^c Nuclear Fuel Industries Ltd., 950-1 Asashiro-Nishi, Kumatori-Cho, Sennan-Gun, Osaka, Japan

^d Japan Food Research Laboratories, 52-1 Motoyoyogi-Cho, Shibuya-Ku, Tokyo, Japan

^e Japan Radio Isotope Association, 121-19 Torino, Koka, Shiga, Japan

^f Japan Food Hygiene Association, 2-5-47 Tadao, Machida, Tokyo, Japan

^g Tokyo Kenbikyo-In Foundation, 44-1 Nihonbashi, Hakozaki-Cho, Chuo-Ku, Tokyo, Japan

^h Japan Oilstuff Inspector's Corporation, 26-1 Kaigandori 5-Chome, Naka-Ku, Yokohama, Japan

ⁱ Japan Frozen Foods Inspection Corp., 2-13-45 Fukuura, Kanazawa-Ku, Yokohama, Japan

^j Japan Electron Beam Irradiation Service Co., Ltd., 4-16 Midorigahara, Tukuba, Ibaraki, Japan

^k Mycotoxin Inspection Corp., 15 Daikokufuto, Turumi-Ku, Yokohama, Japan

^l Chugoku Gakuen University, 83 Niwase, Okayama, Japan

ARTICLE INFO

Keywords:

Food irradiation
Microbial detection
Heat treatment
Blind trial
Viable cell count

ABSTRACT

An irradiation detection method using the difference of the radiation sensitivity of the heat-treated microorganisms was developed as one of the microbiological detection methods of the irradiated foods. This detection method is based on the difference of the viable cell count before and after heat treatment (70 °C and 10 min).

The verification by collaborative blind trial of this method was done by nine inspecting agencies in Japan. The samples used for this trial were five kinds of spices consisting of non-irradiated, 5 kGy irradiated, and 7 kGy irradiated black pepper, allspice, oregano, sage, and paprika, respectively. As a result of this collaboration, a high percentage (80%) of the correct answers was obtained for irradiated black pepper and allspice. However, the method was less successful for irradiated oregano, sage, and paprika. It might be possible to use this detection method for preliminary screening of the irradiated foods but further work is necessary to confirm these findings.

© 2009 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

Food irradiation is an effective decontamination method to retain the safety and the quality of foods by controlling microorganisms and extending shelf life (Diehl, 2001; Molins, 2001). The irradiation of foods has been permitted with specified doses within the rules in many countries (Pauli and Tarantino, 1995; Vounakis, 2001).

Irradiation decontamination of spices is currently the most popular application in food irradiation because their aromatic quality is well maintained after irradiation. This process has already been cleared in 55 countries and practiced in more than 10 countries according to recent global survey by Kume et al. (2009).

Detection methods are necessary to control irradiated foods properly and ensure consumer's choice and acceptance of the irradiated foods. It also should help in the enforcement of labeling regulations. The thermoluminescence (TL) method and ESR method are the most reliable methods for detection of spices and dry herbs and are authorized as an official detection method in international standards (McMurray et al., 1996). However, the analytical machines are costly for food inspection facilities to practice the methods.

DEFT/APC counting method has also been authorized as a screening method for irradiation detection of spices in international standards (EN13783, 2001). This method is based on the use of the direct epifluorescent filter technique (DEFT) and the conventional aerobic plate count (APC). The DEFT count enumerates the total number of contaminating microorganisms, irrespective of viability, in an untreated or treated spice sample. The APC indicates the number of viable microorganisms capable of forming colonies of an agar plate and is expressed as colony forming unit (cfu). The quotient of the two counts [log

* Corresponding author. Tel.: +81 72 2549844; fax: +81 72 254 9935.
E-mail address: mfuruta@b.s.osakafu-u.ac.jp (M. Miyahara).

DEFT/APC = $\log_{10}(\text{DEFT count/g}) - \log_{10}(\text{cfu/g})$] can be used for assessing whether the spice sample has been subjected to a decontamination treatment (Hammerton and Banos, 1996). Although it is difficult to get clear information on decontamination processes (irradiation, fumigation or heating) this method is convenient for food inspection services because existing food microbiological techniques can be used without purchasing expensive equipment. However, during the study of this method, we found several practical problems. For example, frequently there were problems in filtration of some food extracts to recover the microorganisms. Particulate food materials on the filter are often stained with fluorescent dyes as well as microbial cells causing overestimating the DEFT counts.

Several workers reported that microorganisms damaged with ionizing radiations showed increased heat sensitivity (Diehl, 1980; Nakauma, et al., 2004; Shintani, 2005). We also found that microorganisms contaminating several popular spices were sensitized to heating when they had been irradiated with increasing doses (Takekawa et al., 2009).

In this paper, utilizing this effect, we describe a new screening method based on the difference of heat sensitivity caused by irradiation avoiding troublesome procedures such as filtration and overestimation in DEFT counting by ambiguous fluorescent dots. This method contains the stepwise assessments based on the 2 APCs, before and after heat treatment (70 °C, 10 min) of the extract from an untreated or treated spice sample. The quotient of the two counts [$\log_{10} \text{APC}(\text{before heat treatment}) / \text{APC}(\text{after heat treatment}) = \log_{10}(\text{cfu/g before heat treatment}) - \log_{10}(\text{cfu/g after heat treatment})$] can be used for assessing whether the spice sample has been irradiated. This method is easier than DEFT/APC method because it contains only heat treatment and APC.

In this paper, we set up collaborative blind trial of this method that involved nine food hygiene inspection laboratories in Japan, in order to validate and evaluate the feasibility of our new method.

2. Materials and methods

2.1. Preparation of blind samples

Untreated black pepper, oregano, allspice, paprika, sage (12 kg each) were purchased from a local spice importer in Japan. All the spices are widely available in the Japanese market. Fifty five to sixty grams of each spice item were dispensed into individual nylon bags and heat sealed. The bags were irradiated at 5 and 7 kGy with 10 MeV electrons (11 kGy/s) from a Rhodotron-type electron accelerator (IBA, T-200) in Nuclear Fuel Industries, Ltd., Kumatori, Osaka, Japan. Radiochromic films (FWT 60-00P, Far West Technology, Inc.) were used for the radiation dose measurement. The radiochromic film dose measurements were traceable to National Physical Laboratory of United Kingdom by using the Mail-Order Alanine Reference Dosimetry Service. The irradiated samples were distributed to the collaborators together with unirradiated samples (5 bags of irradiated samples at both 5 and 7 kGy and 5 bags of unirradiated samples for each of 5 spice items: A total 75 bags were distributed to each participated laboratory). All the bags containing the same item were distinguished only by sample number to each other. Plate count agar from the same lot was purchased from Nissui Pharmaceuticals, Co. and dispensed to the collaborators.

2.2. Collaborating laboratories

The following 9 microbial research laboratories were collaborated in the blind trial; Osaka Prefecture University, 1-2 Gakuen-

Cho, Naka-ku, Sakai, 599-8570 Osaka, Japan, Japan Food Research Laboratories, 52-1 Motoyoyogi-Cho, Shibuya-Ku, Tokyo, Japan, Japan Radio Isotope Association, 1-19 Toriino, Koka, Shiga, Japan, Japan Food Hygiene Association, 2-5-47 Tadao, Machida, Tokyo, Japan, Tokyo Kenbikyo-In Foundation, 44-1 Nihonbashi, Hakozaiki-Cho, Chuo-Ku, Tokyo, Japan, Japan Oilstuff Inspector's Corp., 26-1 Kaigandori 5-Chome, Naka-Ku, Yokohama, Japan, Japan Frozen Foods Inspection Corp., 2-13-45 Fukuura, Kanazawa-Ku, Yokohama, Japan, Japan Electron Beam Irradiation Service Co., Ltd., 4-16 Midorigahara, Tukuba, Ibaraki, Japan, Mycotoxin Inspection Corp., 15 Daikokufuto, Turumi-Ku, Yokohama, Japan.

2.3. Procedure of aerobic plate count (APC) without heating

Twenty-five grams of sample was put in sample bag (400 ml) with aqueous solution of 0.005% Tween80 and 0.1% polypeptone extracted by a stomacher for 2 min at a stroke of 200 rpm. Five milliliters of the extract were dispensed into a glass test tube (18 mm inner diameter). Original extracts (0.5 and 0.1 ml) were spread in triplicate onto plate count agar (PCA) plates (Nissui Pharmaceuticals, Co.). The rest of the extract was serially diluted (10-fold step) and 0.1 ml of each diluted sample was spread in triplicate onto PCA. The plates were dried and incubated at 30 °C for 5 days. Colonies were counted on plates that had 30 to 300 colonies.

2.4. Procedure of aerobic plate count with heating

Five milliliters of extracts prepared as described above were heated at 70 ± 1 °C for 10 min in a waterbath with continuous shaking. APC of the heated sample was evaluated as well as non-heated samples as described above.

2.5. Evaluation process to identify irradiated spices

Evaluation procedure is shown in Fig. 1. The procedure consists of two evaluation stages. For the first stage, the values of APC without heating were used. If the value was less than $10^3/\text{g}$ of a sample, the sample was judged as irradiated. If the value was greater than $10^3/\text{g}$ of a sample, the sample was forwarded to the second evaluation. For the second evaluation, the $\log_{10} \text{APC}(\text{before heat treatment}) / \text{APC}(\text{after heat treatment})$ [The $\log_{10} \text{APC}(\text{before heat treatment}) / \text{APC}(\text{after heat treatment}) = \log_{10}(\text{cfu/g before heat treatment}) - \log_{10}(\text{cfu/g after heat treatment})$] was determined for each sample. If the value was less than 0.1, the sample is judged as non-irradiated. If the value was more than 0.1, the sample was judged as irradiated.

2.6. Statistics

Each value (cfu/g) of the samples provided by the collaborative laboratories was divided by the mean value obtained by taking the average of all values of the samples treated by the same condition. If the cfu/g values gave the results less than 0.05 or more than 10, they were omitted as outliers deviated from the mean value of the condition. The other values giving the results between 0.05 and 10 were used for evaluation.

3. Results and discussion

The overall results were shown in Table 1. Ratio of correctly judged black pepper was highest at 7 kGy (>95%) but even 5 kGy and non-irradiated black pepper gave the ratio of more than 80% (36/44 at 5 kGy, 37/45 at 0 kGy). Seven and 5-kGy irradiated

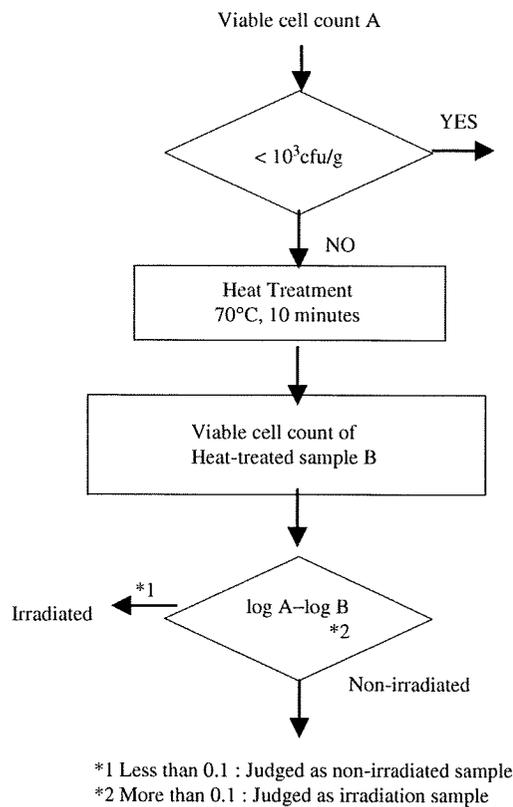


Fig. 1. Flow chart of procedure for step by step judgments whether or not samples are irradiated.

Table 1

Results of inter-laboratory trial assessing the 2-stage microbial detection method for irradiated spices.

Irradiation dose		Black pepper	Allspice	Oregano	Sage	Paprika
0 kGy	Correct	37/45	33/44	18/44	3/44	12/45
	False	8/45	11/44	26/44	41/43	33/45
5 kGy	Correct	36/44	45/45	44/45	44/44	38/45
	False	8/44	0/45	1/45	0/44	7/45
7 kGy	Correct	43/45	42/42	45/45	43/43	44/45
	False	2/45	0/42	0/45	0/43	1/45

allspice samples were successfully identified but 11 non-irradiated samples were judged as irradiated falsely out of 44 samples. Irradiated oregano samples were similarly identified. In contrast this procedure could not distinguish irradiated sage samples from non-irradiated. Non-irradiated paprika samples

were also not correctly distinguished either (12 samples were correctly identified out of 45 samples).

Although 1st stage of the evaluation could not distinguish non-irradiated black pepper and allspice from irradiated ones, the accuracy was improved by the 2nd stage of the evaluation, suggesting that the irradiation sensitized the contaminating microorganisms to the subsequent heating, as expected. On the other hand, oregano, sage, and paprika did not give satisfactory results even though the 2nd stage of the evaluation was employed. The unexpected reduction the APC after heating of the non-irradiated samples indicates that heat-sensitive vegetative microorganisms were contaminated in the samples.

In conclusion, this method is applicable to at least black pepper and allspice to screen irradiated samples. We are now trying to identify microbial species in such samples and figure out their radiation sensitivity and heat sensitivity to verify our method more.

Acknowledgement

This work was supported by a Grant-in-Aid the Ministry of Health, Welfare and Labor of Japan.

References

- Diehl, J.F., 2001. Achievements in food irradiation during the 20th century. In: Loaharanu, P., Thomas, P. (Eds.), *Irradiation for Food Safety and Quality*. Technomic Publishing Company, Inc., Lancaster, pp. 1–16.
- Diehl, J.F., 1980. Effects of combination processes on the nutritive value of food. *Int. At. Energy Agency*, 349–366.
- EN13783, 2001. Foodstuffs. Detection of irradiated food using direct epifluorescent filter technique/aerobic plate count (DEFT/APC). Screening method.
- Hammerton, K.M., Banos, C., 1996. Detection of irradiated spices with a microbial method-DEFT/APC method. In: McMurray, C.H., Stewart, E.M., Gray, R., Pearce, J. (Eds.), *Detection Methods for Irradiated Foods Current Status*. The Royal Society of Chemistry, Cambridge, pp. 392–396.
- Kume, T., Furuta, M., Todoriki, S., Uenoyama, N., Kikuchi, M., Kobayashi, Y., 2009. Status of food irradiation in the World. *Radiat. Phys. Chem.* 78, 222–226.
- McMurray, C.H., Stewart, E.M., Gray, R., Pearce, J. (Eds.), 1996. *Detection Methods for Irradiated Foods Current Status*. The Royal Society of Chemistry, Cambridge, pp. 3–414.
- Molins, R.A. (Ed.), 2001. *Food Irradiation: Principles and Applications*. Wiley-Interscience, New York, pp. 23–339.
- Nakauma, M., Saito, K., Katayama, T., Tada, M., Todoriki, S., 2004. Radiation-heat synergism for inactivation of *Alicyclobacillus acidoterrestris* spores in citrus juice. *J. Food Prot.* 67, 2538–2543.
- Pauli, G.H., Tarantino, L.M., 1995. FDA regulatory aspects of food irradiation. *J. Food Prot.* 58, 209–212.
- Shintani, H., 2005. Validation of various factors affecting microbial growth. *Bokin Bobai (J. Antinbact. Antifung. Agents, Japan)* 33, 669–675 (in Japanese).
- Takekawa, T., Koshikawa, T., Miyahara, M., 2009. Development of a microbiological method (heat treatment method) to confirm the irradiation of food samples in a blind trial of collaborating laboratories. *Bokin Bobai (J. Antinbact. Antifung. Agents, Japan)* 37, 181–194 (in Japanese).
- Vounakis, H., 2001. In: Loaharanu, P., Thomas, P. (Eds.), *Food Irradiation Harmonization in the European Union in Irradiation for Food Safety and Quality*. Technomic Publishing Company, Inc., Lancaster, pp. 26–31.

Table 1 Dosimetry system for low dose irradiation of foods

Item	Dosimetry system		
	ISO/ASTM/JIS	ASTM	Shihoro ¹⁾
document	Alanine	Fricke	Fricke
dosimeter system	alanine	Fe ²⁺ /Fe ³⁺	Fe ²⁺ /Fe ³⁺
element	ESR ²⁾	photometric	photometric
measurement	required	required	not required
traceability	required	required	not required
temp correction	applied	applied	not applied
temp range (°C) ³⁾	from -60 to 90	from 10 to 60	from 8 to 13 ⁴⁾
measure for O ₂ effect	no effect	sealed ampoule	stoppered tube
dose range (Gy)	1 to 100k	20 to 400	60 to 150

1) Ongoing conditions at the Shihoro Facility

2) ESR spectrometric

3) in irradiating chamber: temp. coefficient is 0.168%/°C ASTM E1026-04

4) The indicated temperature is a range for entire irradiating season.

線量計は自家製であることから、その素子の品質によって結果に優劣が見られること、また、物理的な大きさの違い、温度特性などの点で、その特徴は大きく異なっている。主な特徴を Table 1 に示す。一方、著者らは、日本原子力研究開発機構（以下、原子力機構）などとの共同研究により、これら二つの線量計が化学線量計として等価であることの証明を試みてきた。

更に、それら二つの線量計が示す値の再現性等について報告を行っている³⁾。また、士幌農協の施設を使って、実際の照射時の線量を比較し問題がないことを示してきた。照射工程のバリデーションの観点から、線量分布を調べるのは、一般に線源の交換、照射物の搬送システムの修理・変更などにより、照射システムに重大な変更があったときや線量計のロット等が新しくなったときなどとされている。そして実験に基づいて、その照射システムにおける最大線量の位置や最小線量の位置を検出し、その設計⁴⁾通りの照射が行われているかを確認することが求められている。

本研究では、アラニン線量計を用いても、従来士幌で用いてきたフリッケ線量計と同様に線量管理が行えるかを調べた。ばれいしよを照射する場合、一般に安全域が極めて狭い（最低線

量 50 Gy 程度) ので、慎重な線量測定と線量分布測定が不可欠である。そこで、医療用具を γ 線で照射する場合の規定を準用し、種々の検討を行い、当該施設における線量分布を調べた。フリッケ線量計と比較しながら、線量分布を調べるのが理想的であるが、今回の実験期間が当該施設の営業照射運転中であることや、前述のようにフリッケ線量計とアラニン線量計とを同時に照射すると、ある範囲内で一致した値を与えることを確認していることから、アラニン線量計のみの測定を実施した。

法令上最も厳しく管理されなくてはならないのは、コンテナ全体における最大線量値で、それを与える位置は線源に面したコンテナ表面上にある。ここにおける最大線量及び最小線量並びに均一性を論じ、仕様書等と比較するなどしてアラニン線量計の本施設に対する適用性を調べた。更に今回調べるができなかったコンテナ内部にあるコンテナ全体における最小線量値を推定し、線量測定システムを変更した場合について、理論的に考察し、問題の無いことを確認した。

2. 実験方法

2.1 試薬等

- 1) 線量計素子: GAMMA SERVICE 社製アラニンペレット線量計素子(直径 4.80 ± 0.04 mm, 高さ 2.98 ± 0.04 mm, 重さ $65 \text{ mg} \pm 0.5 \text{ mg}$, Batch No.T020604)を使用した。
- 2) 素子格納容器: 前田製作所製外径 15 mm, 内径 5 mm, 高さ 20 mm のアクリル容器(電子平衡を保つために 5 mm の厚さとした)を使用し, これにアラニン素子を 3 個ずつ入れた。特定の位置の線量は同一格納容器中の 3 個のアラニン素子をそれぞれ測定し, その平均値とした。
- 3) 標準アラニン素子: 照射線量に関する国際的標準機関である英国立物理研究所(NPL)にトレーサブルとなるように 5 段階の吸収線量 30 ~ 150 Gy を原子力機構高崎量子応用研究所で照射した。これらの値付けされたアラニンペレットを標準素子として各線量点 5 個を用い, 線量応答の検量線作成を行った。

2.2 γ 線照射試料

ばれいしょの種類はマークイン(2009年1月23~24日)と大粒の男爵(同3月5~6日)であり, 見かけ上密度の異なる照射物を用いた。どちらも, コンテナの重量や密度は 1.5 t と 0.73 とされている。

2.3 ESR 装置

線量評価はブルカー・バイオスピン(株)で同社製 ESR 測定装置 ES-200A e-scan Alanine Dosimeter Reader を用いて実施し, 素子のバックグラウンド測定は, (株)日本アイソトープ協会 甲賀研究所で日本電子(株)製 ESR 測定装置 JES-FR30EX により行った。

2.4 温度計

標準アスマン温度計により校正された温度計(Kesterel 4000 NIELSEN KELLERMAN)又は自走式温度記録計(未補正)を使用した。

2.5 ESR の測定条件

JIS 等の記載された方法に準拠して, 下記のように測定パラメータを決めた。

- 1) 照射したアラニン線量計素子の測定
試料ホルダ: ES200 アラニンペレットドシメータ, 中心磁場: 342 mT, 掃引幅: 20 mT, 変調強度: 0.2 mT, 変調周波数: 86 kHz, マイクロ波出力: 4 mW, 積算回数: 16 回, 時定数: 20.84 ms, 利得: 1×10^6 , コンバージョン時間: 10.48 ms, データ・ポイント: 512²
- 2) バックグラウンドの測定
試料ホルダ: アラニンペレット専用ホルダー, 中心磁場: 336 mT, 掃引幅: 15 mT, 変調強度: 0.63 mT, 変調周波数: 100 kHz, マイクロ波出力: 0.8 mW, 積算回数: 10 回, 時定数: 10 ms, 掃引時間: 20 s

前項 2.1 の 2) に述べた各格納容器の全てについて, 三つの測定用素子の内の 1 素子のバックグラウンド測定を行い, ゼロ線量が無いことを確認した。

2.6 照射装置

当該施設はコンクリートで遮へいされており, ⁶⁰Co 線源 (3.7 PBq 2009年1月現在) を施設の中心にリング状に配置し, その円周(線源の中心からコンテナ表面まで約 5 m) に, 前項 2.2 に示したばれいしょを入れたコンテナ(横 160 cm × 奥行き 100 cm × 高さ約 130 ~ 140 cm, 鋼鉄フレームと金網フェンス製)を照射室内に 19 個配置した (Fig. 1)。

線源の高さは, 線源の midpoint とコンテナの midpoint が一致するように設定されている。このコンテナの照射シーケンスは, 644 s (測定日現在) にて 1 コマずつ横へ移動させることを繰り返して照射室内を一周させた後, コンテナを両面照射するために照射室外に排出し, 照射面を反転させ, 再び照射室内に導き, 再度一周させて照射を終了した。

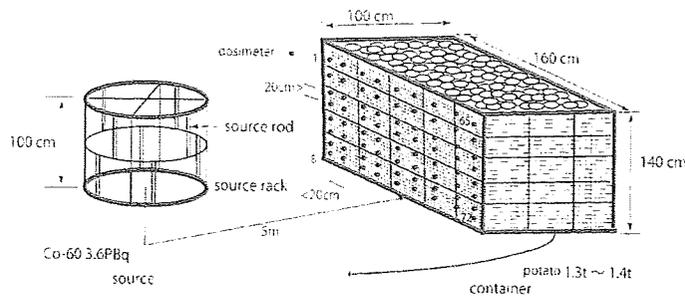


Fig. 1 Irradiation Configuration and Dosimeter Position.

Vertical centers of the source and each container were at same level.

2.7 線量素子の取り付け

1月の照射では、コンテナ1台、3月の照射では連続する3台のコンテナ（G、R、W）を用いた。

ISO11137-3:2006に準拠して、前記の格納容器に入れた線量計は、照射コンテナの表面に20 cm以上間隔があかないように固定した。コンテナのフレーム部分にかかる場合は上下左右にずらし、極力ばれいしょに近いフェンスに線量計を固定した。また、それぞれのコンテナ上端部には空間があるため、最上端のばれいしょがある位置に上端の線量計を固定した。そのため、コンテナのRとWは有効高さが120 cmだったが、Gは110 cmとなり、下側ほど線量計の上下間隔が狭くなった。ISO11137-3:2006（コバルト線源による照射線量分布の測定法）について、参考までに列挙する⁸⁾。

①線量分布は、均一密度の物質でその設計限界まで満たしたコンテナ内に線量計を配置して算出する。この密度は、照射装置で行う下限及び上限密度で行う。

②照射容器間の線量と線量分布の違いを決定するために、最低3個のコンテナでそれぞれの密度で線量分布を測定する。

③線量分布測定を行う周辺のコンテナも同密度の照射物を配置する。

④個々の線量計は、コンテナ内の全域について三次元的にコンテナ内に配置する。線量計の数の例としては、1 m×1 m×0.5 mの容器では20 cm間隔の格子交点に線量計を設置する。

これらの条件の内、④の三次元的に線量計を配置する部分以外はこの規格どおりに実施した。

2.8 素子の数等

3月の分布測定では、アラニン素子が3個入った素子格納容器（2.1の2）参照）をばれいしょが入るコンテナ表面に9×8か所、これを3コンテナ分で216個（アラニン素子は648個）使用した。

更に、飛行機輸送の影響が無いことを確かめるため、バックグラウンド測定用（5素子）を他の線量計と同時に運送し、それらの吸収線量を測定したところゼロであった。

2.9 放射線の照射条件

平均吸収線量率22 Gy/h、照射時間6時間48分、照射室内の実測温度11～15℃であった。この平均値13℃で温度補正を行った。この補正係数0.00168（この値は日本アイソトープ協会甲賀研究所にて試験した結果によるものである）を用いて、線量計の応答の補正をした。

2.10 ESR測定による線量測定

前項2.1の3)に述べたように検量線を作成し、それを用いて、照射したアラニン線量計の測定値から線量値を算定した。検量線の各水準におけるCV%は0.2%以下、相関係数は0.999であった。内標法を用いると共に、近似計算には三次式を用いた。装置の安定性等を確認するために、線量測定素子の測定開始前及び終了後

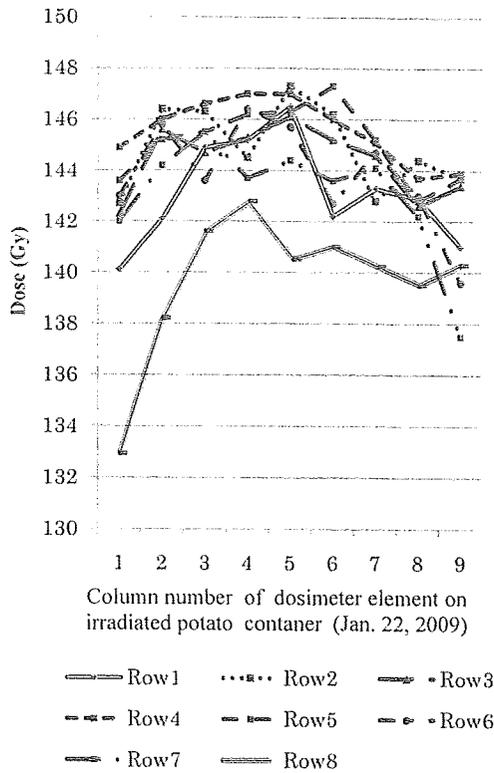


Fig. 2 Dose distributions for the first run (January 22, 2009).
The dose values are shown as the means of three doses at same position of a container.

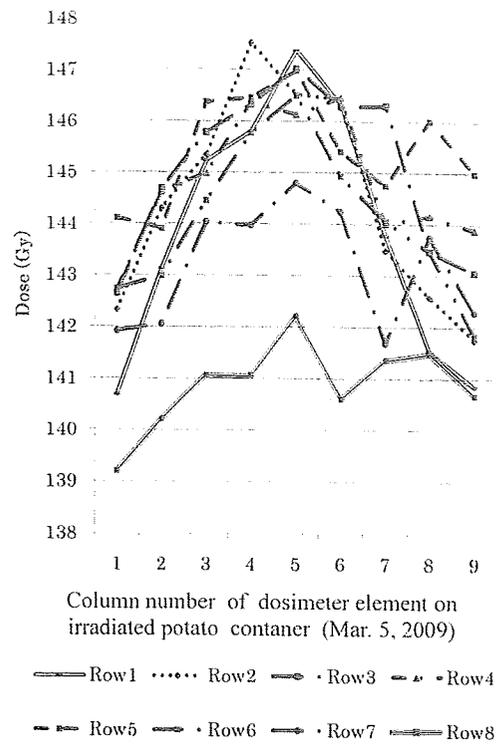


Fig. 3 Dose distributions for the second run (March 5, 2009).
Each value is shown as average of three doses at the same positions on the containers of W,R, and G.

に、150 Gy 標準照射された素子 3 個を測定し、その変動が 2% 以内であることを確認した。

真値に対する“不確かさ”はこの実験に用いた標準素子を照射した原子力機構によると、NPL における不確かさに基づいて算出した結果から 2.24% であった。

3. 結果・考察

両面照射をこの施設では実施しているので、コンテナ内のばれいしょのかさ密度が異なる二つの出荷時期、すなわち 2009 年 1 月 (1 回目、ばれいしょの種類はメークイン) と 3 月 (2 回目、ばれいしょの種類は男爵) に 2 回、現地で線量の分布を測定した。

1 回目の測定では、一つのコンテナについて、各素子格納容器中の線量素子を全て測定し、三

つの値の平均をそれぞれの点における線量値とした。

結果を Fig. 2 に示す。図において横軸はコンテナの横方向に対応する。133 ~ 147 Gy の範囲に各点の線量値が分布した。コンテナの上部は線量値が大きく、また反対にコンテナの最下部は線量値がもっとも小さい結果となった。更にコンテナの左右の端も下部と同様に低い傾向を示している。

2 回目の測定は三つのコンテナに素子三つを格納した容器を同様に配置し、通常の手順に従い照射を行った。結果は Fig. 3 に示した。この値は三つのコンテナの同位置の素子が示した値の平均値である。

3 コンテナの平均値であることから、1 回目の測定よりも、均一な値を与えている。なお、

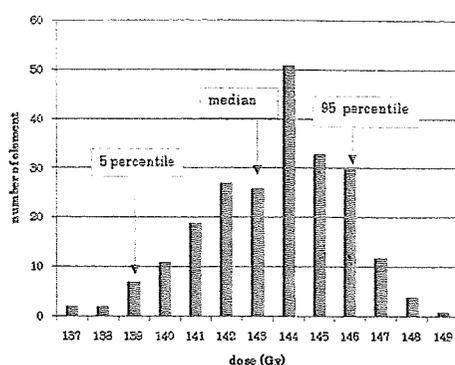


Fig. 4 Frequency distribution of dose values obtained for the second run (March 5, 2009). The data are obtained at the second run. The precision of dose was estimated less than 2.3% at 90% confidence.

このデータでは最大値 149.0 Gy, 最小値 137.3 Gy, 平均値 143.5 Gy, 標準偏差 2.31, CV% 1.51 であった。一方, 最下層や 1 列と 9 列の付近における線量値が小さい傾向は 1 回目と同様に見られた。

これらのことから, もっとも大きい値を示す傾向があるのは, コンテナの上から約 40 cm, 左から約 80 cm であった。

ばれいしよはコンテナにいわゆる“ばら積み”なので, 均等にばれいしよが積載されている状態ではないため, もともと上部のかさ密度は小さく, 両面照射の場合上部の線量は大きくなると考えられる。更に, このような現象は非照射物より小さな⁶⁰Co線源による照射でも, 一般的に見られる現象のようで, 床面・天井等周囲からの反射・散乱の影響を考慮して, 若干線源が高めに設置してあると推定される。

なお, 表面線量の均一性は 1.09 で極めて良いことが確認された。また, かさ密度が異なるためと考えられるこれら二つの載荷時期の結果について, 線量の測定誤差を考慮するとそれらの間に大きな差異が見られなかった。

この施設の場合, 法令上の上限が 150 Gy と定められている。そのため, このシステムで測定した場合の最高となる測定値の出やすさを調

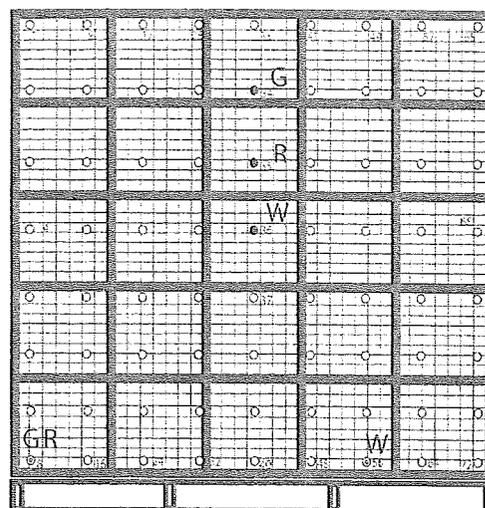


Fig. 5 Positions of dosimeter element at the max and min dose value for each container.

- max dose element
- min dose element
- G,R,W container color

べておく必要がある。2 回目の測定結果について, 同じ線量を示す線量計の数と線量との関係をグラフにした (Fig. 4)。144 Gy を中心に分布を与えているが, このグラフは一見して非対称である。これは上述のようにコンテナの上の方の線量大きいことを反映していると考えられた。

2 回目の測定時, 最大線量付近の場所に線量計を 3 個ずつ設置して, 片面照射の場合の線量について調べたところ 線源側で 142 Gy, 壁側で 5.7 Gy であった。このことから理論的には最大線量は 147.7 Gy となる。上限の 150 Gy まで 2.3 Gy 程度なので線量管理等には十分な留意が必要である。なお, これらの値は設置される線源の量と照射・搬送装置の設計・整備によって決まってくる値である。一方, 同時に照射物の陰にならない上端部にて線量測定したところ, 両面照射で 159.9 Gy の値が観測されており, 線源入れ替え時に反射・散乱線の影響の確認等はもとより, 日常の照射においても照射物のかさ密度や充填高さの変動に十分な留意が必要である。

Table 2 Number of dosimeter elements and observed max and min doses

position ¹⁾	1 to 72	1, 4, 8,	33,36,40
(number of dosimeter elements)	(72)	(9)	(3)
uniformity	1.08	1.07	1.04
max (Gy)	149.1	147.0	147.0
min (Gy)	137.3	137.3	140.8
ave (Gy)	143.5	141.8	144.1
SD	2.3	2.8	2.5
CV%	1.6	2.0	1.8

1) Positions are shown in Fig. 5.

日常の線量管理で 20 cm 間隔に多数の線量計を配置するのは現実的でない。素子の数を現在の規則に当てはめてその数を減らした場合やその他の場合に、コンテナ表面で観測される最小及び最大線量値と配置する素子の数の関係を調べた。上記のデータを用いて、素子数をコンテナ 1 個あたり 72, 9, 3 とした場合を Table 2 に示した。用いた線量計の数によって、均一性は 1.04 ~ 1.08, 最大線量値は 149 ~ 147 Gy, 最小線量値は 144 ~ 137.3 Gy となった。Fig. 5 にそれらの値が得られた線量計の位置を示した。最大線量を示した位置は G, R, W のコンテナでそれぞれ 34, 35, 36 の位置 (75 個用いたとき) であった。

コンテナ表面の最大線量の位置は、上から 20 ~ 60 cm の範囲で変動した。これは、水平方向の荷の密度が変化すること、並びに、コンテナの垂直性やコンテナの変形によって線源方向に近づく部分に変化することなどのためと考えられる。

本実験結果から、日常的な線量管理に必要なアラニン線量計素子の数は、最大線量を与える領域には高さ方向に 20 cm 間隔で 3 個以上必要であると考えられた。最大線量を与える予想される付近にいくつかの線量計を配置し、より正確に最大線量を把握する必要があるだろう。

コンテナ表面での最小線量値の位置は既に論

じたように、コンテナの最下部における左右の端である。両端における線量の低下はコンテナの位置が線源に対して円筒形状の接線で作られる扇型の照射場の中となるので、両端は中心より約 6 cm 遠くなるため、線量が低下するのであろう。

今回の実験のような表面分布を持った場合、発芽防止に必要な最小線量がこのコンテナで得られるのか検討した。設計時に計算された表面線量とその位置の深度方向の最小線量との関係を用いて計算した。コンテナ表面の最小線量は 1 回目 133 Gy と 2 回目 137 Gy で、それぞれの深度方向の最小線量は 53 Gy と 55 Gy で、設計上の想定範囲であるが、コンテナ内部の最小線量は中心部のかさ密度の影響を受けやすいので、照射するコンテナの重量管理や個々のばれいしょの大きさ管理に十分な注意を払う必要があるだろう⁶⁾。

4. 結 論

士幌の施設は既にフリッケ線量計を用いて仕様に合致した線量管理に基づいて営業運転している。一方、今回アラニン線量計システムを用いてもフリッケ線量計と同じように照射コンテナの表面における線量分布を測定でき、その線量管理への適用が可能であることが示された。

また、本施設において、原則として 3 台のコ