

## 論文

## 照射食品の光ルミネセンス法による検知

後藤典子\*<sup>1)</sup> 萩原昌司\*<sup>2)</sup> 等々力節子\*<sup>2)</sup> 本田克徳\*<sup>3)</sup> 山崎正夫\*<sup>4)</sup>  
八雲井直樹\*<sup>3)</sup> 鈴木茂市\*<sup>3)</sup>

## Detection of irradiated foods using a photostimulated luminescence method

Michiko GOTO, Shoji HAGIWARA, Setsuko TODORIKI, Katsunori HONDA, Masao YAMAZAKI,  
Naoki YAGUMOI and Shigeichi SUZUKI

**Abstract** The present study reports the results of photostimulated luminescence (PSL) measurements for both irradiated and non-irradiated powdered dry leaf vegetable, spice and dry vegetable obtained with a prototype of PSL system developed by our groups. This PSL system consisted of a pulsed Infra-Red(IR) source, single photon counting system, and a computer for data treatments. The PSL intensities of those foods decreased rapidly for 60 seconds and reached a steady level close to the intensity of the non-irradiated sample after 300 seconds following photostimulation.

The shape and slope of the PSL intensity curve was a good criteria to discriminate whether the food was irradiated or not, and it was possible to detect the irradiation history of the food irradiated with a 0.49kGy dose after four months of storage.

**Keywords** Irradiated foods, Photostimulated luminescence, Screening method, Irradiation history

## 1. はじめに

わが国では、芽止めを目的にジャガイモへの放射線(γ線)照射が認められているが、他の食品への照射は禁止されている。海外では、殺菌・殺虫・熟度の調整などを目的として、香辛料、ハーブなどに照射が認められており、国内でも香辛料への照射を求める動きもある。食品の履歴に対する関心も高まり、食品関係者から、輸入食品の放射線照射履歴に関する検査依頼も寄せられている。また、照射食品に対する消費者の理解を得るためには、新たに照射が認められる場合も「照射済」の表示をし、選択の自由を保障する必要がある。食品関係者からの検査依頼への対応や表示を検証する方法の確立などのため、照射食品の検知法が求められている。このような状況に対応できるよう、当所では各種の検知法を研究<sup>1-7)</sup>してきた。

照射食品の検知法として種々の方法が研究され2005年8月現在、10種類の方法がEN規格として制定されている。筆者らはこの中の熱ルミネセンス(TL)法<sup>8-9)</sup>を研究してきたが、この方法は鉱物の付着している食品が多いため、適用範囲が広く、検出精度の高い方法である。しかし、食品から鉱物を分離するのに非常に手間がかかり、

多くの試料を検知するのは困難である。一方、光ルミネセンス(PSL)法は前処理を必要とせず、多量の試料を検知するのに適している。そこで、TL法と同様な食品を検知できる光ルミネセンス法の測定装置を試作し、その有効性について検討した。

## 2. 実験方法

## 2.1 試料の調製

都内の小売店で購入した香辛料、葉菜加工食品(以下、粉末食品という)と乾燥野菜を、TL法<sup>10)</sup>により照射されていないことを確認したうえで、試料とした。香辛料は数mmに粉碎したもの、乾燥野菜は長さ4mmの輪切りにしたものを試料とした。これらの試料3gをねじ栓付きガラスビンに取り、アルミホイルで遮光して照射した。照射条件は室温、東京都立産業技術研究所の185TBqコバルト60で0.5~30kGy照射した。

照射した試料はアルミホイルで遮光したまま25℃の恒温槽で保存した。

## 2.2 光ルミネセンス計数装置

国内では、EN規格<sup>11)</sup>で推奨されている装置<sup>12)</sup>の入手は困難である。そこで、試料への赤外線照射、励起光源と光ルミネセンスの分離、光ルミネセンス計測が可能な装置(図1)を試作し、その装置で検討した。試作装置は、

\*<sup>1)</sup> 放射線応用技術グループ \*<sup>2)</sup> (独)食品総合研究所

\*<sup>3)</sup> 日本放射線エンジニアリング(株)

\*<sup>4)</sup> 放射線応用グループ(現企画調整課)

LEDにより試料中の鉍物などを励起(赤外線照射)し、バンドパスフィルタにより励起光源と光ルミネセンスを分離し、光電子増倍管(PMT)により光ルミネセンス量をシングルフォトン計測法により計数するシステムである。

このシステムでは、測定の制御と測定結果の解析をパソコンで行った。

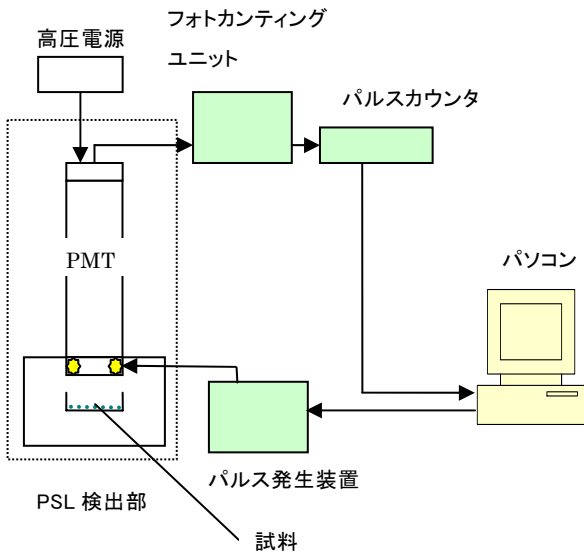


図1 光ルミネセンス計測システムの基本構成

### 2.3 光ルミネセンス測定

試料からの光ルミネセンス計測にあたり、遅延発光の影響が少ないステンレス製の試料皿(5mmΦ)を使用した。さらに、測定前の試料への露光により、光ルミネセンス量の減少が予想されるため、測定試料は暗室内で、試料皿に試料を入れ、光ルミネセンス測定した。

光ルミネセンスを測定する前に、励起光を照射せずに10秒間測定し、試料からの自発発光量を確認した後、励起光を照射して100msec間隔で光ルミネセンス量を測定した。

## 3. 結果・考察

### 3.1 光ルミネセンス量とγ線照射量

γ線照射1週間後の粉末食品(A)について、光ルミネセンス量と照射線量の関係を図2に示す。なお、各試料の光ルミネセンス量は非照射試料の発光量を基準として比較した。赤外線照射後1秒間、15秒間と60秒間の光ルミネセンス量(積算値)で比較するとほぼ同じ傾向を示したので、以下、15秒間の積算値で光ルミネセンス量を比較した。

粉末食品(A)では、照射1週間後の光ルミネセンス量と照射線量は1kGy程度までしか比例しなかった。5~10kGy以上照射すると、光ルミネセンス量は多少増加して

いくが、ほぼ一定であった。しかし、照射した骨のESR法<sup>13)</sup>、照射肉類の化学的方法<sup>14)</sup>では、線量とシグナル強度や炭化水素・アルキルシクロブタノンの生成量が10kGy程度までは比例することが明らかになっている。

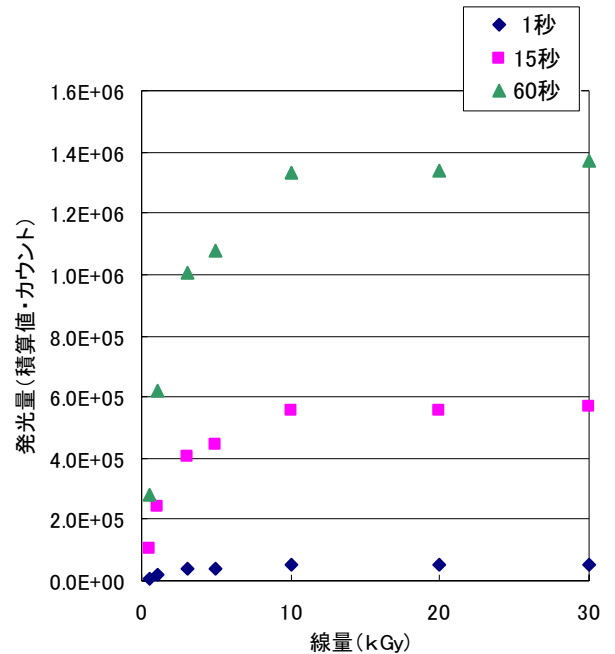


図2 光ルミネセンス量とγ線照射線量の比較

(試料: 照射1週間後の粉末食品(A))

### 3.2 光ルミネセンス量の長期保管による経時変化

光ルミネセンス法の有効性を確認するために、照射後、25℃で遮光して保存した試料を測定した。Malec-Czechowskaら<sup>15)</sup>が光ルミネセンス法で照射乾燥キノコの1ヶ月後と4ヶ月後の光ルミネセンス量を比較した例では、4ヵ月後に急激に減少するものもあると報告している。

粉末食品(B)の光ルミネセンス量は表1のとおりであった。照射線量が0.49~3.1kGyと低めであったが、照射後1週間に比べ、4ヶ月後では半分以下に減少した。

表1 粉末食品(B)における保存による光ルミネセンス量の減少

線量(kGy)	光ルミネセンス量		
	1週間後	4ヶ月後	減少率(%)
0.49	3.4E+5	1.6E+5	53
1.1	6.6E+5	3.0E+5	55
3.1	1.2E+6	4.6E+5	62

(光ルミネセンス量: 15秒間のカウント数)

表2 各種食品における保存による光ルミネセンス量の減少

食品	線量 (k Gy)	光ルミネセンス量		
		1週間後	6ヶ月後	減少率(%)
粉末食品 (B)	5.0	(1.1E+6)	6.5E+5	
	10	1.4E+6	6.3E+5	55
香辛料	5.0	(6.7E+5)	3.8E+5	
	10	6.3E+5	3.2E+5	49
乾燥野菜	5.0	(2.9E+5)	1.5E+5	
	10	2.2E+5	1.1E+5	50

( )は4.6kGy照射した試料  
(光ルミネセンス量:15秒間のカウント数)

5.0及び10kGy照射した食品では、表2に示すようになった。これらの食品では、1週間後に比べ、6ヶ月後ではおおむね半分になった。

粉末食品から得られる鉱物は非常に細かく、鉱物が均一に分散しているため、分取方法による差が小さいと推定される。粉末食品(B)を比較すると、照射1週間後では4.6kGy照射したものより、10kGy照射したものの光ルミネセンス量がやや高かったが、照射6ヶ月日後では10kGy照射したものの光ルミネセンス量がやや低かった。香辛料や乾燥野菜では、照射1週間後では10kGy照射したものより、4.6kGy照射したものの光ルミネセンス量がやや高かった。これは付着している鉱物がばらついていることが影響していると考えられる。

粉末食品(B)を照射10ヵ月後に比較すると、5.0kGy照射したものと10kGy照射したものはほぼ同じ光ルミネセンス量でそれぞれ4.2E+5であった。

### 3.3 光ルミネセンス計測時の光ルミネセンス量変化

照射後4ヶ月の粉末食品(B)へ、励起光を照射開始後の光ルミネセンス量の経時計測は図3に示した。照射線量に関わらず照射試料では、およそ60秒間は光ルミネセンス量が急激に減少し、約300秒後には非照射試料の光ルミネセンス量におおむね近づいた。一方、非照射試料ではほぼ一定の発光量であった。

### 3.4 光ルミネセンス量と鉱物量

表2に示した食品の光ルミネセンス量の経時計測は図4のとおりであった。実験に先立ち、これらの食品をTL法による検知を行ったが、このとき分離できた鉱物量は、

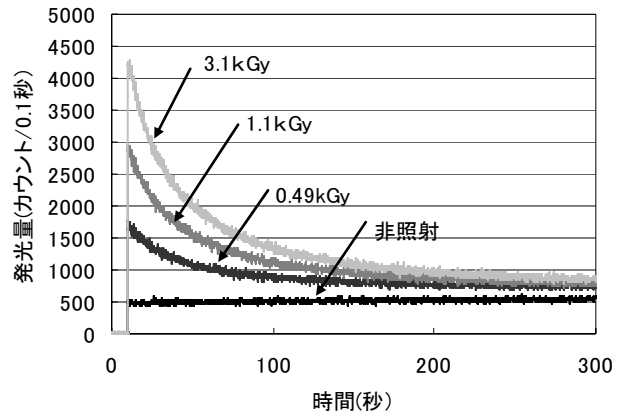


図3 光ルミネセンス量の経時計測(1)  
(照射後4ヶ月の粉末食品(B))

粉末食品(B)で1.3mg/g、香辛料で0.07mg/g、乾燥野菜で0.008mg/gであった。光ルミネセンス量と鉱物量は比例していないが、図4のように鉱物量が多い食品ほど光ルミネセンス量が多かった。

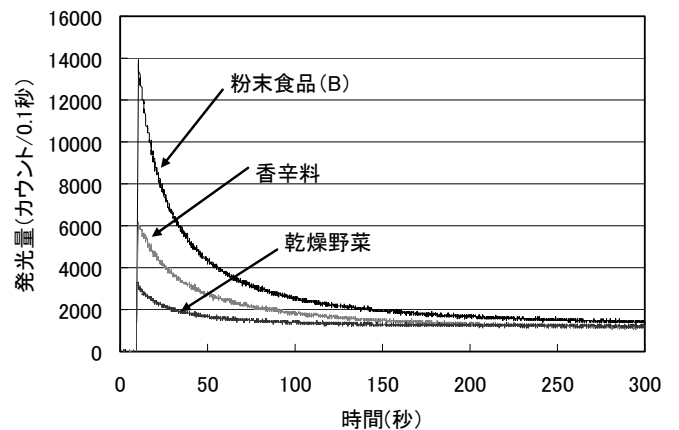


図4 光ルミネセンス量の経時計測(2)  
(10kGy照射後,1週間)

### 3.5 光ルミネセンス量の経時計測による検知

EN規格(13751-2003)<sup>11)</sup>では、一定時間積算した光ルミネセンス量で判定するために、装置ごとにしきい値を決定する<sup>16)</sup>必要がある。しかし、筆者らの試作装置では光ルミネセンス量の経時計測により、照射試料において光ルミネセンス量が時間と共に減少した。この減少することに着目すれば照射の有無を判定できると推定された。

本報告の装置では、励起光を照射後、一定時間(15秒)の光ルミネセンス量の減少を指数関数の回帰式( $y = ae^{bx}$ )

にあてはめ、傾き(b)がマイナスであれば、「照射された。」と判定できた。非照射試料ではマイナスになる例はなかった。0.49 k Gy 照射した粉末食品では-0.011~-0.015であった。

#### 4. まとめ

今回作製した装置では、照射した食品に励起光を照射すると時間と共に光ルミネセンス量は減少した。25℃で遮光して保存した照射した粉末食品は4ヶ月後に光ルミネセンス量が半分以下になった。励起光を照射後の光ルミネセンス量が時間とともに減少する現象から判断すると、放射線照射履歴の検知が可能であった。

#### 参考文献

- 1) 田辺寛子, 宝月大輔: 東京都立アイソトープ総合研究所研究報告, **15**, 35-42 (1998).
- 2) 田辺寛子: 東京都立産業技術研究所研究報告, **1**, 56-59 (1998)
- 3) 田辺寛子: 東京都立産業技術研究所研究報告, **2**, 157-158 (1999).
- 4) 後藤典子, 田辺寛子: 東京都立産業技術研究所研究報告, **2**, 159-160 (1999).
- 5) 後藤典子, 田辺寛子, 宮原誠: 東京都立産業技術研究所研究報告, **3**, 41-46 (2000).
- 6) 田辺寛子: 東京都立産業技術研究所研究報告, **4**, 149-150 (2001).
- 7) 後藤典子, 田辺寛子, 伊藤寿: 東京都立産業技術研究所研究報告, **4**, 147-148 (2001).
- 8) 後藤典子, 山崎正夫: 食品照射 **39**, 8-12 (2004).
- 9) 中馬 誠, 斉藤希巳江, 等々力節子: 日本食品科学工学会誌, **51**, (6) 298-303 (2004).
- 10) Foodstuffs. Thermoluminescence detection of irradiated food from which silicate minerals can be isolated, EN-1788 (2001).
- 11) Foodstuffs. Detection of irradiated food using photostimulated luminescence, EN-13751 (2002).
- 12) Sanderson D.C.: Detection of Irradiated Samples, European Patent, EP 0 699 299 B1.
- 13) 後藤典子, 田辺寛子, 宮原誠: 食品照射, **35**, 23-43 (2000).
- 14) 田辺寛子, 後藤典子, 宮原誠: RADIOISOTOPES, **51**(4), 157-166 (2002).
- 15) Malec-Czechowska K., Strzelcz G., Dancewicz A.M., Stachowicz W., Delincee H.: Eur Food Res Technol, **216**, 157-165 (2003).
- 16) Sanderson D.C. W., Carmicheal L., Fisk S.,: Food Sci. Technol Today, **12**(2), 97-102 (1998).

(原稿受付 平成17年8月15日)