

[報 文]

照射粉末食品の光ルミネセンス法による検知

後藤典子¹⁾, 萩原昌司²⁾, 等々力節子²⁾, 本田克徳³⁾,
山崎正夫¹⁾, 関口正之¹⁾, 水野弘明¹⁾

¹⁾ 東京都立産業技術研究所 (〒 158-0081 東京都世田谷区深沢 2-11-1)

²⁾ 独立行政法人 食品総合研究所 (〒 305-8642 茨城県つくば市観音台 2-1-12)

³⁾ 日本放射線エンジニアリング株式会社 (〒 311-0102 茨城県那珂市向山 1310)

Detection of irradiated powdered foods using photostimulated luminescence method

Michiko GOTO¹⁾, Shoji HAGIWARA²⁾, Setsuko TODORIKI²⁾, Katsunori HONDA³⁾,
Masao YAMAZAKI¹⁾, Masayuki SEKIGUCHI¹⁾ and Hiroaki MIZUNO¹⁾

¹⁾ Tokyo Metropolitan Industrial Technology Research Institute, 2-11-1 Fukazawa, Setagaya-ku, Tokyo 158-0081, Japan

²⁾ National Food Research Institute, 2-1-12 Kannondai, Tsukuba-shi, Ibaraki 305-8642, Japan

³⁾ Japan Radiation Engineering Co. Ltd., 1310 Mukaiyama Naka-shi, Ibaraki 311-0102, Japan

Summary

Photostimulated luminescence (PSL) method provides a rapid and markedly sensitive technique to detect of any irradiated food that contain minerals. This method is also convenient as a first screening means in comparison with thermoluminescence(TL) method which requires separating minerals from the food materials. The present study reports the results of PSL measurements for both irradiated and non-irradiated powdered dry leaf vegetable obtained with the prototype of PSL system developed by our groups. This PSL system consists of pulsed Infra-Red(IR) source for photostimulation, single photon counting system for high sensitive detection of luminescence, and computer for data treatments. The PSL intensity of the leaf vegetable increased with increase of gamma radiation dose and show a linear relationship up to a dose of 1kGy. The PSL intensities after four months of storage under light shielding following gamma irradiation (0.49 ~ 3.1kGy) decreased to less than half of initial intensities. The PSL intensities of those decreased rapidly for 60 seconds and reached a steady level close to intensity of non-irradiated sample after 300 seconds following photostimulation. We used the information on the shape and slope of PSL intensity curve as a criteria to discriminate whether irradiated foods or not, and possible to detect the irradiation history of food irradiated with a 0.49kGy dose after four months of storage.

Key words: Irradiation food, photostimulated luminescence method, screening method, dose response, criteria

はじめに

照射食品の検知法として種々の方法が研究され 2005年6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^{1), 2)}も研究してきたが, TL法は鉱物が付着している食品が多いため, 適用範囲は広く, 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, 多くの試料を検査するのは困難である。一方, 光ルミネセンス法も食品

に含まれている鉱物などに放射線が照射された履歴を検出する方法であるが、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について検討した。

実験方法

1. 試料の調製

都内の小売店で購入した葉菜加工食品（以下、粉末食品という）を TL (EN 1788-2001) で、照射されていないことを確認したうえで、試料とした。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と推定される。このため、分取方法による差が少ないと推定されるので試料とした。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たうえで照射した。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 の線源で 0.5 ~ 30kGy 照射した。

照射した試料は 25 °C の恒温槽で保存した。

2. 光ルミネセンス計数装置

国内では、EN 規格 (13751-2003) で推奨されている装置³⁾ を入手しにくい状況にあるため、試料への赤外照射、励起光源と光ルミネセンスの分離、発光計測が可能な装置を試作し、その装置で検討した。試作装置は LED により試料中の鉱物などを励起 (赤

外照射) 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 (フォトマル) により発光量をシングルフォトン計測法により計数した。

3. 光ルミネセンス測定

試料からの発光計測にあたり、遅延発光の影響が少ないステンレス製の試料皿 (5cm) 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、発光測定した。

光ルミネセンス測定前に、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 間隔で測定した。

実験結果および考察

1. 光ルミネセンスと照射線量

線照射 1 週間後の試料について、光ルミネセンスと照射線量の関係を Fig.1 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発光量を比較した。赤外線照射後 1 秒間、15 秒間と 60 秒間の光ルミネセンス (積算値) で比較するとほぼ同じ傾向を示したので、以下、15 秒間の積算値で発光量を比較する。

照射した骨の ESR 法⁴⁾、照射肉類の化学的方法⁵⁾ では、線量とシグナル強度や炭化水素・アルキルシ

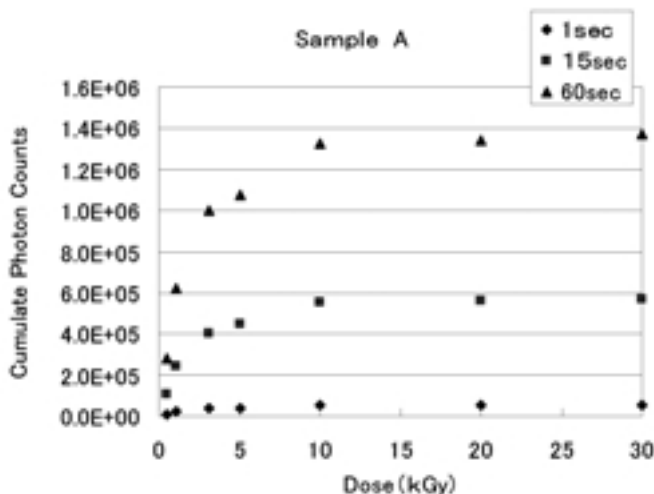


Fig. 1 The relationships between the integrated PSL intensities of powdered dry leaf vegetable for given time periods and gamma radiation doses. PSL intensities measured 1 week after irradiation.

クロプタノンの生成量が 10kGy 程度までは比例する。照射した粉末食品では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、発光量は多少増加していくが、ほぼ一定であった。

2. 長期保管による光ルミネセンス量の経時変化

Malec-Czechowska ら⁶⁾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を比較した例では急激に減少するものもあると報告している。そこで、光ルミネセンス法の有効性を確認するために、25℃で遮光して保存した試料を測定した。発光量は Table 1 の通りであり、4 ヶ月で半分以下に減少したが、検知には十分な発光が得られた。

3. 光ルミネセンス計測時の発光量変化

線照射 4 ヶ月後の試料について、励起光を照射したときの光ルミネセンス量は Fig.2 のとおりであった。照射線量に関わらず照射試料では、おおよそ 60

秒間は発光量が急激に減少し、約 300 秒後には非照射試料の発光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。

4. 光ルミネセンスの経時計測による検知

EN 規格 (13751-2003) では、一定時間積算した発光量で判定するためには、装置ごとに閾値を決定する必要がある⁷⁾。しかし、筆者らの試作装置では光ルミネセンスの経時計測により、照射試料において発光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することが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) の発光量の減少を指数関数 ($y=ae^{bx}$) の回帰式にあてはめ、指数 (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。0.49kGy 照射した試料では - 0.0074 ~ - 0.010 であった。

Table 1 The changes of PSL intensities after different times of storage under light shielding and at 25℃ following irradiation. (sample B)

	0.49kGy	1.1kGy	3.1kGy
1 Week (Cumulate photo counts)	3.4E+5	6.6E+5	1.2E+6
4 Months (Cumulate photo counts)	1.6E+5	3.0E+5	4.6E+5
4M/1W (%)	47	45	38

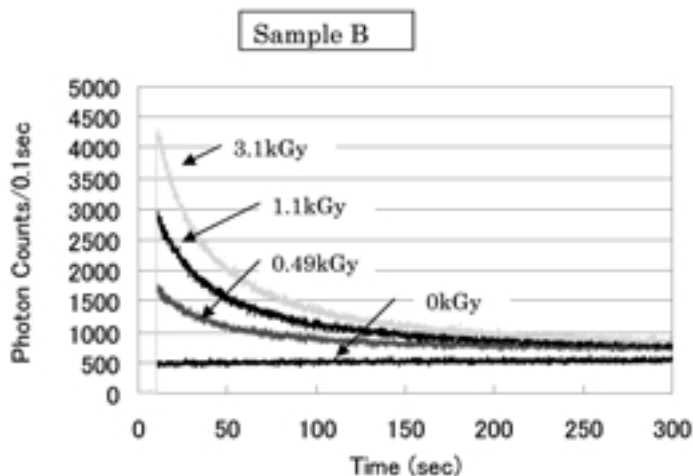


Fig. 2 PSL curves of both irradiated and non-irradiated samples for 300 seconds measurements after stimulating with infra-red light. PSL curves measured 4 months after irradiation.

ま と め

今回作製した装置では、照射した粉末食品は励起光を照射すると共に発光量は減少した。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が半分以下になったが、光ルミネセンス経時変化が減少する現象から判断すると、検知可能であった。

文 献

- 1) 中馬誠 他: TL 法による照射馬鈴薯の検知, *日本食品科学工学会誌*, **51**(6), 298-303 (2004)
- 2) 後藤典子, 山崎正夫: 照射粉末食品の TL 測定における試料調製, *食品照射*, **39**, 8-12 (2004)
- 3) Sanderson D.C.: Detection of irradiated samples, *European Patent*, EP 0 699 299 B1

- 4) 後藤典子 他: 照射鶏肉の炭化水素法及び ESR 法による検知, *食品照射*, **35**, 23-43 (2000)
 - 5) 田辺寛子 他: 2-アルキルシクロブタノンおよび炭化水素の同時分析 (GC/FID) による照射鶏肉の検知に関する考察, *Radioisotopes*, **51**(4), 157-166 (2002)
 - 6) Malec-Czechowska K. et al.: Detection of irradiated treatment in dried mushrooms by photostimulated luminescence, EPR spectroscopy and thermoluminescence measurements, *Eur Food Res. Technol.*, **216**, 157-165 (2003)
 - 7) Sanderson D.C.W. et al.: Establishing Luminescence methods to detect irradiated food, *Food Sci. Technol. Today*, **12**(2), 97-102 (1998)
- (2005年7月22日受理)