[総説]

食品照射検知法の現状

宮原 誠

国立医薬品衛生研究所 (〒 158-8501 東京都世田谷区上用賀 1-18-1)

The present status of identification methods of irradiated foods

Makoto Miyahara

National Institute of Health Sciences, 1-18-1 Kamiyoga Setagaya-ku, Tokyo, 158-8501

はじめに

2001 年の本誌に同年 3 月にフランスのアビニオンで開かれた第 12 回国際放射線プロセスシンポジウム(12IMRP)等の討議の報告を行い、また他誌にも総説を書いた^{1,2)}。ここでは今までの検知法開発の歴史を振り返りつつ、1994 年の ADMIT (Analytical Detection Methods for Irradiation Treatment of Foods)以降、現在の検知について述べる。今回は検知法入門を兼ねて、そもそもなぜ検知法が必要なのかと言う議論を最初に行う。ある専門紙に“照射で有害な物質ができるとする科学者もいるので、照射食品の正しい表示が求められている”という意見が掲載されていた³⁾。現在このような考え方は一般的ではない。検知法の必要性は照射食品の安全性と大きな関わり合いを持つもので極めて重要である。

検知法開発の歴史は古く、1960 年代にはその端緒がはじまり、一時下火になったものの、1990 年前半には、IAEA 主導のもと盛んに研究が行われ、現在のような形の検知法が成立した。

検知法の必要性

一般的には消費者が照射食品と非照射食品を区別して購入できるようにするために、照射済みの表示を要求し、それを担保するために検知法が必要であるとされる。しかし、本来の必要性についての論議は 1986 年から 1991 年にかけてなされた。その内容を表 1 に示す。この表から、照射食品に対する規制が異なる国でこれらを流通させるためには、それぞれの国の規制にあった条件を満たす必要があり、その一つとして照射食品の検知の必要性が最初に議論されたようだ。

表 1 検知法の必要性

年	内 容
1986 ^{a)}	国際的に統一された規制が必要なため 国際貿易上、照射食品の適性管理が必要なため 照射食品表示ラベルと出荷記録の信頼性向上のため
1990 ^{b)}	国家が照射食品を管理し、正しく表示させるため 国際貿易を容易にし、消費者の信頼を得るため
1991 ^{c)}	国家がある種の食品の照射を規制し易くするため 国家が照射食品表示の法規制を実施するため 照射食品表示義務に対する信頼性を高めるため

^{a)} IAEA, International Document on Food Irradiation, Proceeding of International Conference, Acceptance Control, and Trade in Irradiated Food, Geneva, Switzerland IAEA Vienna (1988) pp135-143.

^{b)} Swallow, A. J. "Need and role of identification of irradiated food", *Radiat. Phys. Chem.*, 1990, 35, 311-316.

^{c)} IAEA (1991) Analytical detection methods for irradiated foods, IAEA-TECDOC-587, Vienna, pp9.

食品を放射線で処理すると、その時の吸収線量等条件によっては、温度上昇 (1kg の食品を室温で、1kGy 照射するとおよそ 0.24℃ 上昇するといわれている)、色調の変化 (主に退色)、照射臭 (炭化水素類の臭い) 等が見られるが、一般の消費者にはほとんど気がつかない程度のものである。そのため、一般の消費者が購入したときは判別がつかない。照射した食品に食品添加物、特定原材料など同じようにラベルに表示すれば判別がつく。小売りの段階など流通の途中でそのラベルが剥がされてしまった場合、消費者は区別ができなくなる。照射されていない食品を選んだつもりが、そうでないことになってしまう。あるいは、これとは対照的に照射食品の方が実際には高価に販売されることから、照射されていない食品を偽って照射食品であると売りつけるケースもあった。南アフリカやイスラエルの様にハイキングの携行食や軍隊食として照射食品が普及しているところでは、照射食品でないものを誤って持参すると遭難の危険すらある。確実に区別をつけなくてはならない人々もいる。照射原料を使用した製品に殺菌等のために再び照射することを CODEX は禁じているので、照射原料を加工業者が購入したとき、これを遵守するためには、照射食品であるか否か厳密に区別する必要がある。また、病人食等高線量処理された照射食品を必要としている人に誤ってそうでない食品を摂取させることは危険である。スペースシャトルの様に極めて厳密に細菌管理された空間に食品を持ち込む場合はさておいても、微生物管理の観点からも、照射、非照射を区別して流通管理する必要があるといわれている。

単にそれらの照射、非照射を区別するだけなら、記録を厳密につけて、それを管理すれば良いことになる。現実にはアメリカでは契約に基づいて、照射果実や照射ハンバーグの管理はこのような方法で行われている。いわゆるパラメトリックな管理とその記録を厳正にすることにより検知法は不要なはずだ。しかし、ラベルを剥がしたほうが売りやすいと考え、実際に剥がしてしまう例は極端なこととしても、国際的、あるいは国内の法規等に沿って、的確に照射されたか客観的に確認する手段が必要であることは IAEA も認めている⁹⁾。パラメトリックな管理の基礎となる吸収線量の推定には、現実的な問題が無いわけではない。線量計による線量測定は温度、湿

度などの影響はもとより、照射されるものの密度等に影響されるだけでなく、照射施設の技術や設備によってその線量分布が常に変動することが知られている。照射技術の優劣は線量分布のパラツキに繋がり、その再現性に大きく影響する⁹⁾。そのために“放射線照射には再現性が無い”と言い切るベテラン研究者もあるくらいだ。特に必要線量に満たない照射不良、あるいは過照射になってはいないか判断する直接的な方法が必要であろう。そこで、現実的にもある外国の飼料メーカーは契約通りの照射が行われたかを確認するために、飼料成分分析会社に依頼し、抜き取った照射飼料を分析し、照射線量の確認を行っているし⁹⁾、照射挽肉を製造している会社でも通常の菌数検査を実施して確認を行っているようだ⁷⁾。殺菌した後、事故が無い限り菌数が増える心配の無い医療用具と異なり、照射後にわずかな取り扱い上の不備があっても、あるいはもともと照射安全域が狭いので少しの照射ミスがあっても事故につながる危険がある。したがって、パラメトリックリリースと言い切っては安心できず、出荷後に実施できる検知法は食品の安全確保の上も必要な技術である。最後に我が国の様に、食品を照射することを原則的に禁止している国にとって、これを厳に取り締まるための必要技術であることは言を待たない。さらに、食品加工者においては、自社の原料に照射された原料が混入していないか調べる必要があり^{3a)}、これを怠ると重大な事件に発展する可能性がある。実際にこのような事件が過去にあった^{3b)}。

このようなことから直接検知する方法の存在は、消費者の要求に応えるだけでなく、照射食品の品質や流通に対する信頼を高めるために必要不可欠との認識が生まれている。つまり実際に照射食品が流通している地域では、当初 IAEA が考えていた“円滑な貿易のため”とは別の理由でも、検知法が必要とされているようだ。以上まとめると 1) 消費者の食品選択権の保証、2) 流通管理、3) 照射食品の品質保証、4) 消費者保護、5) 国による照射食品の管理などの目的で検知法が必要であると現在は考えられている。

検知法の要件

検知法を考えるに当たって、實際上どれくらいの吸収線量を与えられた照射食品を検知する必要があるか表 2 に示した。目的は現在 IAEA の考える分類

とは少し異なるが、現実実用となっている照射食品の実態を反映しているためこの表を掲げる。照射香辛料の殺菌目的には10kGy以下、保存食などは50kGy以下であることが分かる。障害の現れやすい生鮮野菜果実は1kGy以下、肉・

表2 照射食品製造時の線量^{a)}

目 的	対 象	食 品	線量域 (kGy)
発芽防止		ジャガイモ、タマネギ、ニンニク	0.01-0.15
熟度調整		果物、野菜	0.01-1.0
殺菌		穀物、シリアル製品、生鮮・乾燥果実、干物	0.2-1.0
寄生虫の防除	条虫、線虫、肝吸虫など	魚、肉	0.1-1.0
病原性細菌の滅菌	サルモネラ、O-157	鶏肉、肉、魚介類	2.0-8.0
腐敗性菌の殺菌		肉、魚、果実、野菜、香辛料	0.4-10.0
保存食品の殺菌	完全滅菌	携行食、軍用食、宇宙食、病人食	10.0-50.0
加工性の向上		果物からのジュース収量の向上、乾燥野菜の調理時間の短縮	1.0-10.0

^{a)} IAEA (1991) Analytical detection methods for irradiated foods, IAEA-TECDOC-587, Vienna, pp7.

表3 検知法の要件^{a)}

項 目	内 容
技術面での評価基準	
a) 識別力	照射食品の検知として測定対象となる変化は非照射食品中には存在しないこと。 あるいは、非照射食品中で明確に特徴づけられている特性で照射による変化が明確で、区別できること。
b) 特異性	加工や保存で生じる変化が照射によって生じる変化と類似でないこと。
c) 応用性	調べようとする食品の実用照射範囲で検知できること。
d) 安定性	調べようとする照射食品の保存期間中は検知可能であること。
e) 頑健性	次の項目の影響を受けずに測定可能あるいは測定結果が十分に信頼できるものであること。 i)線量率、ii)全ての加工工程、あるいは保存中の温度、iii)保存条件（酸素、水分など）iv)引き続いて行われる加工工程、v)他の食品との混合
f) 独立性	特定のバッチごとに非照射試料を必要としないこと。
g) 試験室内再現性と試験室外再現性	
h) 精密性と適切な統計的な評価	
i) 感度	商業照射線量以下を測定できる性能。
j) 吸収線量依存性	検知法は線量依存曲線を描けること。これは食品の吸収線量を推定することに関連している。
実用性の評価基準	
a) 簡便性	高度の熟練、データの解析力、特別な装置を必要としないこと。
b) 費用	少ないこと。
c) サンプル量	少ないこと。
d) 迅速性	
e) 応用範囲	広い範囲の食品に適用可能なこと。
f) 非破壊検査	再検査可能であることが望ましい。
g) 標準化と校正が簡単なこと	
h) 不正に対する耐性	測定項目は包装材料や埃などではなく、食品それ自身の変化であることが望ましい。

^{a)} McMurray, C. H. "Foreword", Ed. McMurray, C. H., Stewart, E. M., Gray, R. Pearce, J., (1996) Detection Methods for Irradiated Foods, The Royal Society of Chemistry, Cambridge, pp. v-viii.

どのような分析法でもそれが具備すべき条件がある。前述の ADMIT は分析法の選定に先立ち、表 3 に示すように 1990 年に検知法の要件を列挙した。これらの条件を全て満たすものはないが、理想の分析法として一つの考え方を示すものである。照射による食品成分変化の検出は極めて微量であるがこれを調べる必要を強調し、付着物を調べて検知することを避けようと当初はしていた。そうしないと検知できても、曖昧な結論しか下すことができない。また、保存による検知対象項目の減衰に極めて留意していることが分かる。

検知法の種類と公定法の選定

およそ、放射線で変化する成分があればどれも検知法の対象となる。実用照射量を与えられた食品の中に生じる変化は極めて少なく、現在の科学技術をもっても、これをとらえることは容易ではない。我が国からもこの ADMIT の会議に多数の研究者が参加した。1991 年の IAEA の報告書^{a)}によると香辛料の検知に用いられる粘度法、生鮮果実に有用な発芽法、高タンパクな照射食品の検知に有利なオルトクロジン法、ジャガイモの検知に便利なインピーダンス法、免疫化学的な検知法なども重要な検知法だと記されている。ついで 1994 年イギリスのベルファストで開かれた会議では、この会議の議長にイギリスの代表が選ばれた。1994 年の ADMIT では有望な 16 種の検知法を分析手段によって 8 分類し、a) ESR 法、b) TL 法、c) その他の物理学的方法(インピーダンス法、粘度法、近赤外法)、d) 生物学的免疫化学的方法(微生物学的方法、ハーフエンブリオ

法、免疫化学法)、e) HC 法、f) CB 法、g) その他の化学的方法(オルトクロジン法、パーオキシド法、発生ガス法)、h) DNA 法(コメットアッセイ、ミトコンドリア法、損傷 DNA の免疫化学的検出)のそれぞれに評価グループを作り最終的に必要と思われる検知法を決定し、9 つに絞り込んだ^{a)}。その際、コラボラトリー研究の結果が満足できる内容であることが要求された。この種の実験を行うためには、多くの科学者の協力だけでなく、多額の費用と数年にわたる歳月が必要だ。このような条件が揃うためには、国家的な後押しが必要であろう。イギリスのベルファストにあるクイーン大学、ドイツのカルスルイエにある国立栄養研究所等が中心になって、その開発研究が進められてきた。何種類もある検知法の中から、必要だと ADMIT 委員会が判断した検知法が取り上げられた。その選択には特にイギリスの MAFF の影響が大きく、当時イギリスが照射食品を禁止していたこともあり、早急に検知法の整備をしたかったようだ。公定法を開発するには、たたき台になる試験法の開発、これを追試する試験、数カ所の試験研究機関が共同でこれを確かめる試験などその開発には多くの確認作業が必要とされている。この一見無駄のように見える種々の研究は重要で、ひとたび公定法となると誰でもどこでもその試験法が再現されなくてはならないからだ。その試験法のなかに再現性の悪い原理、極めて特殊な技術、高度な熟練が必要であってはならないとされている。これらの検討を通じて、試験法の弱点の補強を行った。

表 4 試験法評価基準^{a)}

記 号	内 容
A	原理概念は有望。
B	いくつかのラボでさらに検討されることが望ましい。
C	クロスチェックの準備段階。
D	複数のラボで既にクロスチェックが行われた実績あり。
E	複数のラボにおけるクロスチェックの結果、一部の国内標準分析法としての妥当性が検証されている。
F	CEN (Comite Europeen de Normalisation) 標準分析法として確立している。
G	国際食品規格の標準試験法タイプ III
H	国際食品規格の標準試験法タイプ II
S	スクリーニング法として使用し、最終判定には他の方法を用いる必要がある。

^{a)} IAEA の “Analytical detection methods for irradiated foods” 1991, Report of the international meeting on analytical detection methods for irradiation treatment of foods” 1994, 等々力節子 Radioisotopes, 2000, 49, 467-469 および、筆者の最近の文献調査を加味してある。

表 5 物理的方法

原 理	方 法	評価	対 象 食 品
物理的性質の変化	電気インピーダンス	B	馬鈴薯
	粘度	D, S	白胡椒, 黒胡椒
	熱測定(DSC)	A	魚, エビ, 卵白
	近赤外分光(NIR)	A	香辛料
ラジカルの検出	電子スピン共鳴 (ESR)	H	骨由来 (食鳥肉, 魚, 肉, カエル脚)
		E	骨由来のラジカル (骨抜き肉からの骨成分の回収), 貝類
		G	糖結晶ラジカル (乾燥マンゴ, 乾燥イチジク, レーズン, 乾燥パパイア)
		H	セルロースラジカル (ピスタチオナッツ(殻), 粉末パプリカ, イチゴ)
		D	セルロースラジカル (胡椒), 甲殻類; 卵の殻, 乾燥キノコ
		B, C	セルロースラジカル (ブドウ, 冷凍冷蔵ベリー類, プルーン, 香辛料)
		B	マカロニ, カタツムリ, ゼラチン, 大麦, 種子 (イチジク, ナツメヤシ)
		A	スピンプローブ法(小麦), 果実類の繊維質の抽出物 (キウイ, トマト, パパイア(生))
		D	ある種の香辛料, ハーブ, 乾燥野菜
		B	冷凍鶏肉, 小麦粉
発光	化学発光	A	貝類, 甲殻類, 食鳥肉の骨
	熱発光(TLD)	H	珪酸塩の分離が可能な食品 (香辛料, ハーブ及びそれらの混合物, 小エビ)
		E	青果物, 馬鈴薯, 甲殻類, 貝類 (珪酸塩の測定)
		D	甲殻類, 貝類 (カルシウム塩の測定), 乾燥果実, 野菜類
	光励起発光(PSL)	D, S	無機質が含まれる食品 (香辛料, ハーブ, エビ, 貝類)

表 6 化学的検知方法

方法原理	対象成分	評価	対 象 食 品
HPLC 法	<i>o</i> -チロジン	C	鶏肉, エビ, 貝類, 魚, カエル脚, 卵白
GC 法	炭化水素	H	鶏肉, 牛肉, 豚肉, カマンベールチーズ, アボカド, マンゴー, パパイア
		D	粉末卵
		B	魚, エビ, 貝類, ナッツ類, 豆類, ごま
	2-アルキルシクロブタノン	G	鶏肉, 豚肉, 卵液
		B	牛肉, ラム, エビ, マンゴー, パパイア, チーズ (カマンベール)
ヨウ素滴定法	脂質過酸化物	D	豚肉, ミンチ肉, 鶏肉, 酒
ガス検出法	一酸化炭素	B	香辛料, 冷凍鶏肉, 冷凍エビ
	水素	B	冷凍鶏肉, 香辛料, 生鶏卵
免疫化学法	低分子化 (免疫性の消失)	B	鶏卵, 卵白, 鶏肉, エビ
	2-アルキルシクロブタノン	A	鶏肉, 生鶏卵

表 7 核酸 (DNA) 法

方法原理	検出対象	評価	対 象 食 品
免疫化学法	DNA 塩基損傷	B	麦, エビ
アルカリ溶出法	一鎖 DNA の切断	A	エビ
パルスフィールド電気泳動	二重鎖 DNA の切断	A	牛レバー, 牛肉, 鶏肉, エビ, 魚
ゲル電気泳動法 コメット法	ミトコンドリア DNA	B	レバー, 牛肉, 豚肉, 鶏肉, エビ, 魚
	単離細胞	F, S	鶏肉, 豚肉
		D	アーモンド, レンズ豆, 亜麻仁, ごま, 大豆, ひまわり, ローズベッパ
		B	魚, イチゴ, 豆, ある種の香辛料

表 8 生物学的検知方法

	方法・原理・観察内容	評価	対 象 食 品
組織学的形態学的方法	細胞分裂の阻害	B	玉ねぎ, 塊茎類
	傷害時の上皮形成能の欠落	B	馬鈴薯
	染色体異常	A	穀類
	電子顕微鏡観察	A	果物, エビ
発芽試験法	電子顕微鏡観察	D	柑橘類
	発芽能力の阻害	B, C	リンゴ, サクランボ
微生物学的方法	菌叢の変化 (グラム陰性桿菌の消失)	B	穀類, 馬鈴薯, イチゴ, 玉ねぎ
	放射線抵抗性菌の残存 (<i>Moraxella</i> 属や <i>Deinococcus radiodurans</i>)	D	イチゴ, 魚, エビ
	バクテリア再汚染に対する抵抗性の変化	D, S	鶏肉, 魚, エビ, イチゴ
	DEFT / APC	B	魚, 肉
	リムラス試験 (LAL / GNB)	F, S	香辛料, 鶏肉
		E, S	鶏肉

この ADMIT 会議終了後も、検知法の研究は肅々と進められており、8 年経過した 2002 年現在、当時の検知法がどのような評価を得ているかを示した。(表 4, 5, 6, 7, 8) 1991 年に提案された試験⁹⁾について、表 4 は当時の評価基準に等々力⁹⁾が手を加え、さらに筆者が現在に合うように改変したものである。表 5 から 8 は 1991 年の ADMIT の資料⁴⁾をもとに、等々力の原表を、筆者が現在の実情に合うようにさらに改訂したものである。有望と言われながらも、そのままに放置されている様子に見えるもの、BCR やイギリスの当時の MAFF の支援を受けて大きく発展しているものまで様々な様子が見えてくる。検知法の分類は 1991 年の ADMIT⁴⁾の分類にしたがった。

照射に使われる線量と今後の高線量照射

照射する目的と照射しようとする食品の種類によって線量は異なってくる。そして、ICGFI はその勧告として表 2 に示すような線量を提案している。このように現実には用いられる線量は、許可線量の上限までは使用されないことが多い。従来からは 10kGy が上限とされてきたが、1999 年 ICGFI は軍用食、病人食等の必要性から、吸収線量の上限を撤廃し無制限に再照射を認めるように、CODEX 委員会に要請した。2002 年 6 月現在、その検討が続けられている。この動きは検知法を作成した時に前提としたことが崩れることになるが、多くの検知法は影響を受けないだろう。むしろ、多量の放射線分解物等が生成するので検知しやすくなる可能性がある。しかし、ESR 法の一部のように、不安定な物質を検出し

ている場合は検知が困難になるだろう。また、再照射を認めた場合、もともと高線量や再照射を想定していないコメットアッセイ法や APC/DEFT 法のような検知法は使用できなくなる可能性があり、今後、高線量時代が到来するとすれば、それに対応した検討が必要となる。ここでは、現行の線量を基準に考える。なぜなら、昨年 EU が同域内の照射香辛料を認めた時の線量は 10kGy 以下であり、表 2 に示したように一般の食品には高線量を必要としないと考えられるからだ。また、EU が指定している照射食品原案の線量もおおむね 10kGy 以下である。さらに、2002 年 3 月に行われた CODEX での論議の後、上限の 10kGy 撤廃については、さらに議論を継続するようだ^{10a)}。

主な検知法の概要

EU が 2002 年 6 月現在認めている検知法と試案となっている試験法を表 9, 10 にまとめた。この表は 2002 年春に他誌に同様の表を掲載した²⁾が、その執筆時には多くの方法がドラフトであった。本年 1 月までに PSL 法をのぞき、8 つの検知法は正規の試験法となったので、ここに再掲する。その検出限界を同時に示した。これらの試験法が適用できる照射食品の範囲は原則としてこの表に示す食品に限られる。この表からもわかるように、1 つの試験法が適用できる範囲は極めて狭い。これらの試験法と試案の実用性を検証した線量域を示したのが表 10 である。これは、先ほど述べた実用性を検証する実験で、取り扱われた線量で、実用的に検知できる線量を示している。

表9 ヨーロッパ法の検出限界線量 (kGy)

分析法名	GC 分析		ESR 法			TL 法	PSL (ドラフト)	DEFT/APC	コメットアッセイ
検出対象	HC	CB	セルロース	骨	糖質	鉱物	鉱物	細菌	細胞
鶏肉	0.5	0.5		0.5					1
肉	0.5								1
豚肉	0.5	1							
牛肉	0.5			0.5					
チーズ	0.5								
全卵		1							
小エビ						1			
マス				0.5					
アボガド	0.3								
パパイヤ	0.3								
マンゴー	0.3								
貝類							0.5		
生イチゴ			1.5						
乾燥パパイヤ					3				
乾燥ブドウ					3				
乾燥マンゴー					3				
乾燥フィグ					3				1
乾燥ショウガ								5～10	
ハーブ						6	10	10	
スパイス						6	10	10	
パプリカ			5					5～10	
黒コショウ								5～10	
カードモン								5～10	
シナモン								5～10	
タイム								5～10	
マジョラム								5～10	
バジル								5～10	
オレガノ								5～10	
ローズペッパー									1
アーモンド									1
ごま									1
大豆									1
ひまわりの種									1
ピスタチオ			2						

表 10 ヨーロッパ分析法の評価

方法名	GC 分析				ESR 法						TL 法		PSL		DEFT/APC		コメットアッセイ	
分析対象	HC		CB		セルロース		骨		糖		鉱物		鉱物		細菌		細胞	
	線量 (kGy)	誤判定 (%)	線量 (kGy)	誤判定 (%)	線量 (kGy)	誤判定 (%)	線量 (kGy)	誤判定 (%)	線量 (kGy)	誤判定 (%)	線量 (kGy)	誤判定 (%)	線量 (kGy)	誤判定 (%)	線量 (kGy)	誤判定 (%)	線量 (kGy)	誤判定 (%)
鶏	0.5～5.0	7.5	1～3	1			2～6	0									1～5	7.4
豚	0.8～7	2.6	1～3	0													1～5	7.4
牛	0.8～7	2.7					2～7	0										
チーズ	0.3～1	0.8																
全卵			1～3	0														
小エビ											1～2	1.6						
マス							2～7	1.9～6										
アボガド	0.3～1	0.9																
パパイヤ	0.3～1	0																
マンゴー	0.3～1	6.1																
貝類													0.5～2.5	0				
生イチゴ					1.5～3	4.9*												
乾燥パパイヤ									0.5～7	1.6								
乾燥ブドウ									0.5～7	6.3								
乾燥マンゴー									1～5	0								
乾燥フィグ									1～5	1.1							0.2～5	**
乾燥ショウガ															5～10	**		
ハーブ											6～11	0.9	10	14.2*	10	**		
スパイス											6～11	0.9	10	14.2*	10	**		
パプリカ					5～10	1.5									5～10	**		
黒コショウ															5～10	**		
カーダモン															5～10	**		
シナモン															5～10	**		
タイム															5～10	**		
マジョラム															5～10	**		
バジル															5～10	**		
オレガノ															5～10	**		
ローズベッパー																	0.2～5	**
アーモンド																	0.2～5	**
ごま																	0.2～5	**
大豆																	0.2～5	**
ひまわりの種																	0.2～5	**
ピスタチオ					2～7	20.2												

* 判定不能を含む ** 記載なし

なお 2001 年夏の CODEX 試験法とサンプリング部会^{10b,c)}は表 9 に示す方法のうち、ESR 法の 2 つと HC 法、TL 法をその用途に合わせて評価し Type II の試験法とし、CB 法だけを Type III 試験法と評価した。この Type II の分析法は参照試験法と呼ばれ、正式な試験方法 (Type I) が無いときに用いる方法でその数値は紛争時の議論の対象 (dispute) として用いたり、測定値として用いることが出来る。Type III の方法はその正確性、回収率、選択性、応用範囲の広さ、測定範囲、直線性等が目的に適っているが、規制、検査、行政的な目的に限って用いることが出来る。さらに、24 回総会において、これらの 5 つの方法は一般分析法として採用された。しかし、これらの分析法は定量的な取り扱いはできず、定性分析法としてその地位が認識されている。さらに、照射食品であることは検知の結果が陽性であることの必要条件で十分条件では無い。つまり、“検知結果が陰性であっても、その食品が照射されていないという証明にならない場合がある”ことが、CODEX でも指摘されている。したがって、照射記録等による管理も必要となるだろう。

ESR 法 (Electron Spin Resonance Spectroscopy, 電子スピン共鳴法)

EN 法には 3 つの方法に ESR 法は用いられている。第一番目のものは骨の中にあるリン酸カルシウム、ヒドロキシアパタイトにトラップされるラジカルを測定するものである。乾燥したサンプルを篩にかけて大きさを整え、一定量を測定管につめ測定する。ESR の測定条件は CEN 発行のマニュアルにあ

る。測定結果の一例を示す¹¹⁾。図 1 に示すように第二のピーク (矢印) の出現により照射の有無を判定する。これらラジカルスペクトルの形状はサンプルごとに異なる場合があり、磁気異方性、混在する常時性金属により影響を受ける。

第二番目の方法は乾燥した植物性試料中のセルロースに捕捉されたラジカルを検知に利用するものである。いくつかの香辛料について、検知の能力が確かめられている。一般に保存状態により、ラジカルの寿命が変化するために、検体によっては全くシグナルが観測できないことがある。

表 11 に ESR 法による香辛料の保存実験の結果を示した。調べられた香辛料の多くはその保存期間を大きく下回った検知可能期間しか持たない。同様の結果は他の研究者の研究でも明らかになっている¹²⁾。(図 2) このスペクトルの中央にあるシングレットの大きなピークは非照射のサンプルにもあり、吸収線量の増大とともに高さが増してくる。これは食品中のキノン類に由来すると言われている。このようにサンプルの種類によって、そのシグナルが観測できる期間が、保存期限より極端に短いものが知られており、このため、このシグナルがないから非照射と判定できない場合がある。

第三番目の方法は結晶性の糖分を含有する乾燥果物などに適用可能である。2002 年から CEN の方法に採用された。結晶性の糖質 D-フルクトース、D-グルコースなどに由来するシグナルである。このシグナルは十分に安定で、数ヶ月以上測定が可能であったという。しかし、香辛料と同様にラジカルを

Fig. 1 1 および 5kGy 照射鶏の骨の ESR の例

表 11 照射香辛料の検知期間^{a)}

香辛料名	ESR 信号の検出可能期間 (日)	
	5kGy 照射	10kGy 照射
シナモン	NCS ^{b)}	NCS ^{b)}
カルダモン	>90	>90
ウコン	NCS ^{b)}	NCS ^{b)}
クローブ	<7	≤7
ショウガ	NCS ^{b)}	≤1
白胡椒	<7	<1
黒胡椒	<7	<2
パプリカ	≤3	≤3

^{a)} Chabane, S., Pouliquen-Sonaglia, and Raffi, J., "Detection of irradiated spices by different physical techniques", *Can. J. Physiol. Pharmacol.* 2001, 79, 103-108.

^{b)} 特徴的なピークが見られない。

Fig. 2 10kGy 照射唐辛子 ESR の経時変化

検出するという原理の性質上、サンプルの保存条件などの影響を受けやすいと言われている。

TL 法 (Thermoluminescence, 熱発光法)

原理は珪酸塩など電気伝導性の悪い物質に放射線を当てると、その物質がイオン化しても、自由に電子が移動できないために、電子と電子孔 (Electron Hole) が対になって生成し、それが物質内に捕捉される。これを加熱して、この電子が自由に動けるだけの運動エネルギーを与えると電子はその捕捉され

た場所から移動して電子孔に捕捉され、光を放出する。この光を温度上昇の関数として観測する。実際にはサンプルに付着している結晶性の鉱物分をポリタングステン酸塩で抽出し、これを暗箱中で 250 度まで加熱する。その際に照射された鉱物は発光 (T1) するのでこれを測定する。ついで、発光量の標準化のために再度 1kGy 照射し、再度温度を上げて、発光を測定 (T2) する。T1/T2 の比から照射の有無を判定する。測定例を図 3 に示す¹³⁾。再照射のために、

Fig. 3 10kGy 照射黒胡椒 TL の経時変化

高価な照射装置が必要である。TLの強度は経時的に弱くなる。また、発光量は含まれる鉱物成分によるので、その鉱物を構成する成分により、一定の発光量が得られるわけではない。特に産地等の影響を受けやすいと言われている。香辛料の付着物を分析しているので、ブレンドされるなどして、非照射のものと照射のものとが混合されると判定できなくなる（この点について最近の研究の項を参照）。原理的に清浄なサンプルは検知できない。また、50度以上の高温で保存されると、同様に検出が困難となるので、本法も、発光がないから非照射と判定できない。原理的には埃さえついていれば、どのような試料でも検知可能である。逆に言うと検知できると言うことは、その食品が衛生的に扱えなかったことを

暗示するので、この方法が適用できる食品にも自ずと制限があるだろう。1997年にイギリスの農務省が一斉収去した香辛料の試料について検査したとき中心的役割をした方法としても知られる。照射香辛料でありながら非表示の違反品として見つけている¹⁴⁾。多くの検知法は、このように非表示の違反品を見つけてことができるが、これとは反対の違反を摘発できない（陰性の結果でも照射していない証明にはならないから）。

PSL法 (Pulsed Photostimulated Luminescence, ドラフト法)

この方法はレーザー光などを光源として極めて強い光をサンプルに当てると、放射線照射されたサンプル中の鉱物分が発光する現象を利用する。TL法

Fig. 4 PSLの写真 (SURRCのホームページより)

では高温に加熱するため、有機物を完全に除去し、ミネラル分だけにしないと測定できないが、本法は加熱を要しないので、香辛料などは前処理なしで測定が可能である。判定はバックグラウンドの発光量よりも多く、本試験法が与える閾値よりも大きな発光を観察したときとする。しかし、発光はジオメトリの影響を受ける。保存中に明るいところにサンプルを置くと、発光量が減少するので操作は暗室で行う。PSLの最大の欠点はフォールスネガティブの結果を与えやすいことである。その他の欠点はTL法と同じ。これらを総合すると測定が迅速、コストがかからない、そして陽性の結果が出にくいとなるので、早い、安い、出ないと3拍子揃った究極の機械といえなくはない。実際に検出用の機械は現在でも入手可能である。しかし、本法に関する文献や情報が極めて少ない。CENのマニュアルにある引用文献は英国MAFFの紀要誌が主であり、入手が困難で、文献請求しても入手できなかった。その上、一部の引用論文は未出版の様で、マニュアルドラフトに記載された雑誌には掲載されていない。このような情報不足からか、2002年に本法以外の全てがCENの正規法に格上げされたのに、PSL法だけはドラフトのままである。

炭化水素法

食品中の脂肪酸が放射線分解してできる化合物のうち、炭化水素類は比較的多量に生成する(数ppm)。この生成物についての関係を図5に示す¹⁵⁾。この化合物の仲間には、ガソリンやローソクがあり、我々の身近に存在する。これを照射食品の中から、抽出し、ガスクロマトグラフィー(GC)で分離定量する。オレイン酸から生成する1,7-ヘキサデカジエンなどを指標に照射の有無を判定する。この方法は感度がよい方法でもっとも古くから利用されてきた。しかし、炭化水素類を同じ溶媒類で分離精製するので、分析中の混入したものとの区別がつけ難いとされてきた^{15b,c)}。化学的な検知法に共通の利点であるが、放射線分解の対象となる物質が比較的広い食品中に多量に分布することが多いので、一つの分析方法で数種類の照射食品の検知に利用できる。脂肪分の多い食品か多量の試料を用意して必要な脂肪を集めることができれば、検知ができることになる。

シクロブタノン法

この方法は炭化水素方法と同様に、食品中に存在する脂肪分が放射線分解して生成する化合物で、図7に示すようにその構造に四員環を持つ。この化合物は照射食品中に特異的に生成するものとされ、検知

Fig. 5 炭化水素類の生成機構

Fig. 6 10kGy 照射豚肉の GC

Fig. 7 2-(5-テトラデセニル)シクロブタノンの構造式

対象が広いことから早くから有望視されてきた。しかし、その生成量が極めて微量であること (1.4ng/g)¹⁶⁾、標準品の入手の困難であること、さらに実証試験も極めて限られた関係者のみで行われていたことから、その再現性を疑問視する向きもあった。高価とはいえ標準品は一応入手が可能となり、筆者も追試を行うことができた。この試験法が抱える問題は、その試料の調整段階に、20% 含水フロリジルを使うため、その精製が不十分なまま検出試験が行われることにあり、今後さらに検討が必要であろう^{17a,b)}。定性試験として実行するにも、試験を行う人は十分な技量を持つ必要がある。これらの点により前述の CODEX 試験法のランクで他の方法に比べて低く評価されたのだろう。

DEFT/APC 法 (スクリーニング法)

2002 年から CEN の正規の試験法となっている。照射後の生菌数と総菌数 (照射によって死んだ菌数 + 生菌数) との比率を求めて判定する方法である。生菌数は培地に植えて一般生菌数としてコロニーを数える。総菌数はメンブレンフィルターにこし取り、これをアクリジンオレンジで染色し、カウンターで数える。これらの菌数の対数を取り、その差が 4.5 以上あると照射と判断する。この欠点は照射前にかかりの菌数が存在することが必要なことと化学殺菌剤など他の方法で殺菌されると判定できなくなる。検出の下限値は 10kGy 程度と言われている。これも TL 法と同じで、清浄な検体では検査ができない。

Fig. 8 コメットアッセイの例

コメットアッセイ法（スクリーニング法）

本法も2002年からCEN正規の試験法となっている。簡便な方法であるが、種々保存条件等の影響を受けやすいので、予試験法として位置づけている。結果が陽性の時はさらに別の方法で確認する。この方法はサンプルの組織から、細胞を遊離させ、これを顕微鏡のスライドガラスに塗ったアガロースゲルに包埋し、この細胞膜をSDSで融解し、電気泳動し、染色後そのまま検鏡する。照射されていると断片化したDNAが核から流れ出ている様子が観察できる。この方法は食品を加工したり、乾燥したりしてDNAが断片化するような処理を受けると検知できなくなる。感度は1kGy程度。これをさらに高感度にした方法も研究されている^{18,19)}。

最近の研究

いくつかの検知法の研究はこのように一応の完成を見ている。そのためどの国においても、既存の方法の適用拡大を目的とするバリデーションとより迅速なスクリーニング法の開発に力点が置かれている。

我が国においては、東京都立産業研究所を中心に、ESR、TL法の検討が行われ、その問題点を明らかにしてきたことを述べた。これらの試験法が実際の取り締まりの現場で役立てるときに留意すべき点を検討している。また、国立医薬品食品衛生研究所では、炭化水素法や2-アルキルシクロブタノン法について同様の検討を行っていることをすでに紹介した。また、コメットアッセイ法については、独立行政法人食品総合研究所でその基礎的な研究が行われ、検査の客観性を高めるために最新の画像処理が検討されている。また、日本原子力研究所ではDNAフラグメントELISA法の研究に着手している模様である。イギリスにおいても事情は同じで、EU域内の照射食品流通化に伴い、自国内の製品の取り締まりを強化しようと1999年から3年計画で研究が行われた²⁰⁾。そのターゲットは香辛料、魚介類、乾燥野菜と果実などの高価な食品で、照射されている可

能性があるものとされた。実際の成果としてはシクロブタノン法で果実、カマンベールチーズ、鮭についてバリデーションが終了している。現在 DNA-ELIZA 法は、小エビについてバリデーションが進行中である。また、冷凍食品や冷凍鶏卵中の水素を測定する方法も研究されている。最も注目すべき研究は TL 法に関してのものである。この方法の欠点である照射香辛料と未照射香辛料とをブレンドした場合、その検知が困難とされるが、現在バリデートされている方法の有効性について詳細に検討された。その結果、T1/T2 比が 0.1 以下で、T1 で低温域(150-250℃)の発光が観察されると照射、未照射のブレンド品であると判定しても良いとしている²⁰⁾。しかし、科学的な根拠が現在のところ示されていない。この様に検討された 6 つのコラボ研究の結果は、出版される予定とのことである。また、PSL は陽性の結果を誤って陰性と報告するフォールスネガティブの結果を出しやすいと言われる。この点についてさらに統計的、あるいは機器の改造など検討が現在でも行わ

れているようである。また、TLC (薄層クロマトグラフィー) による CB 法の検討が行われており、より簡便で迅速な結果を得ようと研究が行われている。

このような基礎的な研究と平行して、フィールド調査も行われた。表 12 にイギリス国内で許可されている照射食品の一覧を示す。実際上流通している可能性のあるものをこの中から選んで、検査対象とした。表 13 には収去した品目を示した。その中には緑茶など日本人になじみの深いものもある。2001 年 8 月から 9 月に試料は購入された。購入地点と検体の数を表 14 に示す。片寄らない様に十分にサンプリングには注意を払ったようだ。それらの地点を図 9 に示した。結果を表 15 に示す。スパイス 203 試料、健康食品 138 試料、小エビ 202 試料が検査されて、それぞれ、1, 58, 5 つの表示違反を見つけている。特に健康食品の違反例が目立っている。実に調査対象の 42% が違反していることになる。この内訳として、44 試料は完全に照射された材料を使用し、14 試料は照射された材料と非照射の材料を混

表 12 イギリスにおける許可照射食品

分類	分類名	内 容
i	果実	きのこ、トマト、大黃の葉を含む
ii	葉菜類	豆類を含む
iii	シリアル	
iv	根菜類	ジャガイモ、山芋、タマネギ、シャロット、ニンニク
v	香辛料	調味料として通常使う乾燥物
vi	魚介類	ウナギ、甲殻類、貝類を含む
vii	食鳥類	英国鶏、ガチョウ、アヒル、ホロホロチョウ、はと、ウズラ、七面鳥

表 13 収去検査品目^{a)}

種 類	検 体 名
ハーブ 香辛料	basil, dill, oregano, parsley, rosemary and thyme. aniseed, black pepper, cayenne pepper, cinnamon, chilli powder, cloves, coriander, cumin, curry paste, curry powder, ginger, garam masala, mixed spice, nutmeg, paprika, turmeric and white pepper
健康食品	alfalfa, <i>Aloe vera</i> , cat's claw, devil's claw, garlic, ginger, <i>Ginkgo biloba</i> , ginseng, green tea, guarana, kava kava, saw palmetto, silymarin (milk thistle), and turmeric
小エビ ^{b)}	black tiger, cap tiger, cocktail, cold water, crevettes, fantail, fantail tiger, fresh water, giant, jumbo tiger king, king, <i>Macrobrachium</i> , Mekong tiger, North Atlantic, pink, salad, tiger, tiger king and tiger tails

^{a)} 日本語に訳してもほとんどが音をうつしたカタカナによる表記となるので原文のままとした。

^{b)} エビは多くの種類があるの和名を当てはめるが困難である。詳しくは 東京水産大学編 “日本のエビ・世界のエビ”，成山堂書店，1990，東京 を参照。

表 14 収去点数 ^{a)b)c)}

収去地点等	香辛料	健康食品 ^{d)}	小エビ
Belfast	41	26	41
Cardiff	42	16	40
Edinburgh	40	18	41
Leeds	40	19	40
Oxford	40	19	40
Mail Order	—	20	—
Internet	—	20	—
Total	203	138	202

^{a)} 収去日時は 2001 年 8 月と 9 月，厳密な収去基準を適用した。

^{b)} 検体は代表的なメーカーのものとし，同じ検体を 2 つは採取しないようにした。

^{c)} 同じ商店に偏らない様にして，結果が英国全体を表すように配慮した。

^{d)} 健康食品に医薬品が混じらないように，一点ずつ医薬品許可番号を確認し，記載の無いものを採取した。

表 15 試験法と検査結果

食品名	サンプル数	表示違反数
ハーブ・香辛料	203	1
健康食品	138	58
小エビ	202	1

表 16 PSL の信頼性

食品名	抜き取り検体数	PSL の誤陰性検体数
ハーブ・香辛料	20	0
健康食品	8	5
小エビ	18	3

^{a)} PSL で陰性と判定された検体について，TL 法で再試験をし，その結果が陽性であった検体の数

合して使用していた。この調査と同時に PSL の検知能力も検討され，特にフォールスネガティブについて調査を行っている ²¹⁾。表 16 にそのまとめを示す。PSL で未照射と判定された検体をランダムに取り出し，TL で再検査した。その結果，PSL と異なった判定を TL がしたものの数（カッコ内は抽出したサンプル数）は，香辛料 0/20，健康食品 5/8，小エビ 3/18 で，健康食品では実に 63% が TL の検査なしでは未照射と判定されたことになる。極めて誤りの多い試験法だと言えよう。100% 的中した香辛料に PSL は十分適用できるとこの報告書は PSL を評価している。しかし，今回の検査で，香辛料の試料にはほとんど照射された陽性検体が 203 検体全体で 1 つしか

ないのだから，PSL で誤って陰性とする可能性は全体として皆無に等しく，改めて TL で調べても陽性の結果を与えるはずもない。明らかに過大評価で，このような無理な結論を導く背景が気がかりだ。PSL には限界があるようだ。さらに，このような矛盾する結果が出たときは，原理の異なる方法で確認するのが普通であろう ²²⁾。

このように，イギリスでは現在も研究が繰り返され，過去に十分検討されずにきた検知法も再認識されて，新たにバリデートされているようだ。イギリスでの動きをみると，最初の理想は極めて高かったが，現実の検知法となると PSL のような問題点を抱えるものが少なくない。この程度で良いのなら，

Fig. 9 サンプルング地点

表 17 各種試験法の評価^{a)}

分析 法 名	GC 分析		ESR 法			TL 法	PSL	DEFT	コメント
	HC	CB	セル ローズ	骨	糖質	鉍物	鉍物	/APC 細菌	
検 出 対 象									アッセイ 細胞
技術上の評価基準	a) 識別力	△	◎	○	◎	◎	△	△	△
	b) 特異性	×	◎	△	○	◎	○	△	△
	c) 応用性	○	○	△	○	◎	△	△	○
	d) 安定性	○	○	×	○	△	○	△	△
	e) 頑健性	○	○	△	○	△	○	△	△
	f) 独立性	○	○	○	○	○	○	○	○
	g) 試験室内再現性と試験室外再現性	○	△	△	○	○	○	△	△
	h) 精密性と適切な統計的な評価	○	○	△	○	○	○	△	○
	i) 感度	○	△	○	◎	△	?	○	△
	j) 吸収線量依存性	○	○	○	◎	○	△	○	○
実用性の評価基準	a) 簡便性	△	△	○	×	×	◎	○	○
	b) 費用	△	△	△	△	×	△	◎	◎
	c) サンプル量	○	○	○	○	○	○	○	◎
	d) 迅速性	△	△	◎	×	◎	×	△	◎
	e) 応用範囲	◎	◎	○	△	○	◎	△	◎
	f) 非破壊検査	×	×	◎	×	◎	×	○	○
	g) 標準化と校正が簡単なこと	○	○	○	○	○	△	○	○
	h) 不正に対する耐性	○	◎	○	○	○	×	×	○

^{a)} IAEA "Report of ADMIT and the International Meeting on Analytical Detection Methods for Irradiation Treatment of Foods", Belfast, 1994

我が国独自の検知法として有望なジャガイモのインピーダンス法、香辛料の粘度法など今後取り上げるべき検知法があるように思うのは筆者だけだろうか。しかし先立つ予算が乏しいのが現状である。ちなみにこの検査にイギリス政府が使った費用は3年計画の最終年度一年でおおよそ13万4000ポンド(2680万円、£=200円)であった。我々の予算と比べおおよそ3倍の圧倒的な量がうらやましい。

まとめ

表3の評価基準に当てはめて、8つのCENの分析法を評価した。結果を表17に示す。これは1994年のADMITの評価に基づいて記載した。いずれの検知法も一長一短があるが、これらの方法をうまく組み合わせる検知するか、表5から8に示す方法をさらに検討発展させて新たに確立する必要がある。最近総説²⁾を通じて各検知法について述べた。それ以来時間の経過が無いので、新しい材料に乏しい。そこで重要な点は重複して本稿でも記述した。すでに読まれた読者にはさらに理解を深める材料として、あるいは今後の検知法を考える材料となれば幸いである。引用文献も重複するので重要なものだけを引用した。“最近の研究”の項は脱稿後に入手した資料に基づいて加筆した。少し説明不足の点はご容赦願いたい。いずれ詳しく解説する予定である。最後に、食品照射の分野では、まだ基礎的なデータが不足しており、今後実用に向けてこの分野の発展を期待する。

謝 辞

本稿をまとめるに当たり、御懇篤なるご意見をお寄せ頂いた、日本原子力研究所 伊藤 均、小林靖彦両先生、独立行政法人食品総合研究所 等々力節子先生に感謝する。

参考文献

- 1) 宮原 誠, “照射食品検知の現状と将来”, 食品照射, 36, 42-48 (2001).
- 2) 宮原 誠 “世界における放射線殺滅菌技術の展開と現状” 防菌防黴, 30, 233-248 (2002).
- 3a) 日本農業新聞, 記事, 2002年1月11日
- 3b) 毎日新聞, 記事, 1978年9月10日
- 4) IAEA (1991) Analytical detection methods for irradiated foods, IAEA-TECDOC-587, Vienna, pp. 9.
- 5) 勝村庸介, 田中隆一, 第2章 電子線量計測の意義, 放射線照射振興協会大線量測定研究委員会編 工業照射用電子線量計測, 地人書館, 1990, 東京.
- 6) Divakaran, S., 私信 2000.
- 7) Nanke, K. E., 私信 2000.
- 8) IAEA, Report of the international meeting on analytical detection methods for irradiation treatment of foods” 1994.
- 9) 等々力 節子, “照射食品の検知法について” *Radioisotopes*, 2000, 49, 467-469.
- 10a) Codex Alimentarius Commission, “Report of the 34th session of the codex committee on food additives and contaminants” Rotterdam, Netherlands, 2002, ALINORM 03/12 Appendix V “Proposed Draft Recommended International Code of Practice for Radiation Processing of Food. (at step 5/8 of the Procedure)”
- 10b) Codex Alimentarius Commission, “Proposed draft revised codex general standard for irradiated foods (at step 5 of the procedure), the report of the 33rd Session of the Codex Committee on Food Additives and Contaminants, Hague, Netherlands, 2001, Appendix VII.
- 10c) ALINORM 01/41, para. 197-200, July 2001.
- 11) Miyahara, M., Nagasawa, T., Kamimura, T., Ito, H., Toyoda, M., and Saito, Y., “Identification of irradiation of boned chicken by determination of o-tyrosine and electron spin resonance spectrometry” *J. Health Sci.*, 2002, (48), 79-82.
- 12) 後藤典子, 田辺寛子, “ESR法によるとうがらしの照射検知” 東京都立産業技術研究所研究報告, 1999, (2), 159-160.
- 13) 田辺寛子, “熱ルミネッセンス法による照射食品の検知” 1998, 研究発表会要旨, pp. 59 東京都立産業技術研究所.
- 14) MAFF UK, “Undeclared Irradiation of Foodstuffs surveillance Exercise”, *Food Surveillance Sheet*, 102, 1997.
- 15a) Makoto Miyahara, Akiko Saito, Tomomi Kamimura, Taeko Nagasawa, Hitoshi Ito, Masatake Toyoda “Determination of Hydrocarbons Production in

- Hexane Solutions of Fatty acid Methyl Esters Irradiated with Gamma Ray, Using Capillary Gas Chromatography with Mass Spectrometric Detection”, *J. Health Sci.*, 2002 in press.
- 15b) 後藤典子, 田辺寛子, 宮原 誠, “電子線照射牛挽肉の炭化水素法による検知”, 食品照射, 36, 13-22 (2001).
- 15c) Tanabe, H, Goto, M., Miyahara, M., “Detection Method of Irradiated Chicken by GC Analysis of 2-Alkylcyclobutanones and Hydrocarbons Using Soxhlet Extraction and Florisil Chromatography”, *RADIOISOTOPES*, 2002 (51) 109-119.
- 16) 宮原 誠, 斉藤顕子, 長沢妙子, 豊田正武, “シクロブタノン法による照射食品の検知 基礎的検討”, 食品衛生学会第8回学術講演会要旨 B-27, 2001.
- 17a) 後藤典子, 田辺寛子, 宮原 誠, “2-アルキルシクロブタノン法による照射鶏肉の検知”, 食品照射, 36, 26-29 (2001).
- 17b) 田辺寛子, 後藤典子, 宮原 誠, “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法に関する考察”, *RADIOISOTOPES*, 2002 (51) 157-166.
- 18) Miyahara, M., Saito, A., Ito, H., Toyoda, M. “Capability for Identification of Gamma-irradiated Bovine Liver by New High Sensitivity Comet Assay”, *Biol. Pharm. Bull.*, 23, 1399-1405, 2000.
- 19) Miyahara, M., Saito, A., Ito, H., Toyoda, M., “Identification of Low Level gamma-Irradiation of Meats by New High Sensitivity Comet Assay”, *Rad. Phys. Chem.*, 2002 (63) 451-454.
- 20) Food Standard Agency “Food irradiation: research in support of detection test and the provision of scientific advice” in the “Food Research Programme Annual Report 2001” Food Standard Agency Publications, Feb. 2002, London.
- 21) Food Standard Agency “Survey for Irradiated Foods-Herbs and Spices, Dietary Supplements and Prawns and Shrimps” Survey Information Sheets 25/02 June 2002, Food Standard Agency の Home page.
- 22) ガーフィールド著, 宮原 誠訳, “分析試験室のための品質保証原則”, AOAC International, Gaithersburg, 1997.

(2002 年 7 月 1 日受理)