

# 照射食品の誘導放射能の評価について

大阪府立大学大学院 古田雅一

# 放射線照射食品の安全性

- 放射線照射で毒性のある分解生成物が生じないか？

放射線化学反応

毒性試験

(細胞、動物)

放射線照射で食品が放射能を帯びないか？？

(一般消費者の素朴な疑問？？？)

# 放射線照射で食品が放射能を帯びる場合

- ・ 放射線と食品に含まれる元素との核反応である。
- ・ どの程度生じるのか？ 理論的評価

$^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ のガンマ線、10 MeV電子線、5 MeVエックス線照射では問題ない。  
(専門家の間では常識！)

しかしながら、一般消費者にはわかりづらい？？

1. 核反応の起りやすさの評価
2. 実際に照射された食品の放射能測定

# 食品の最小構成単位は原子である。

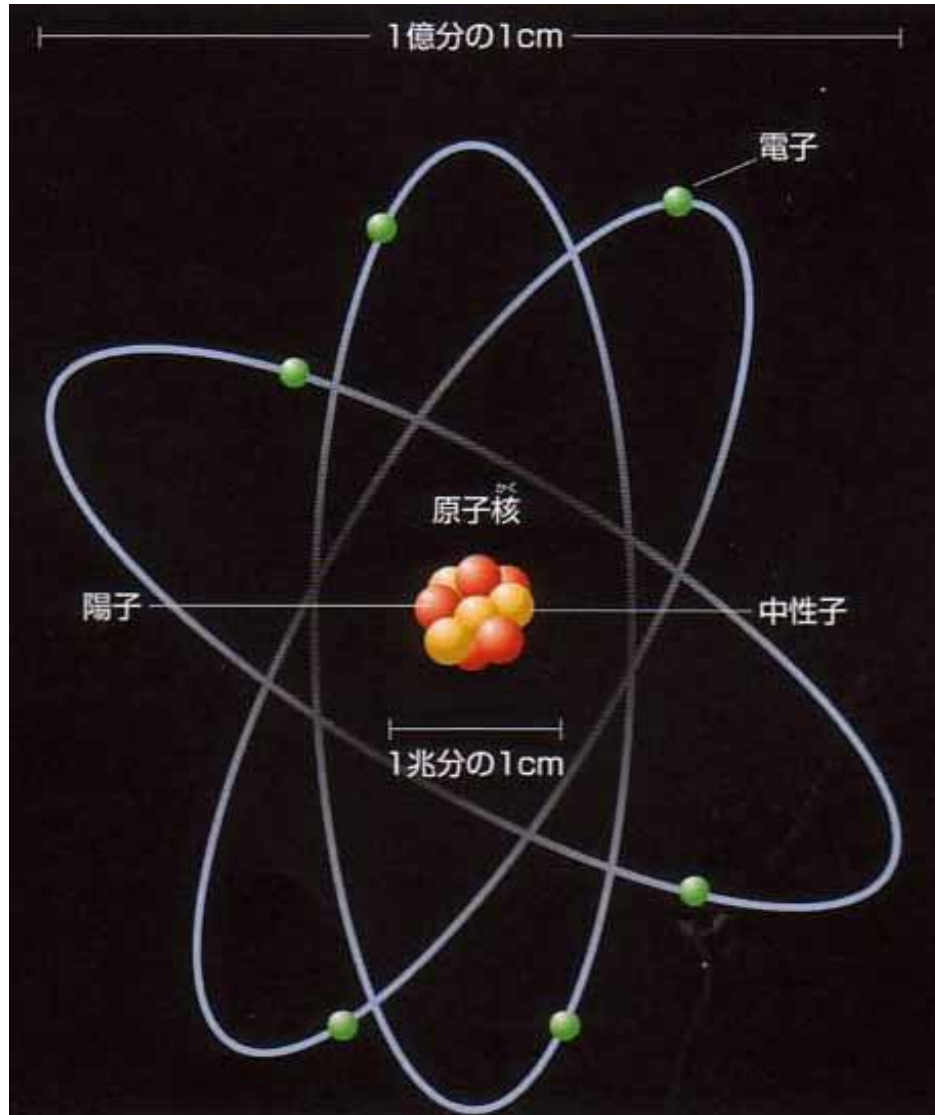
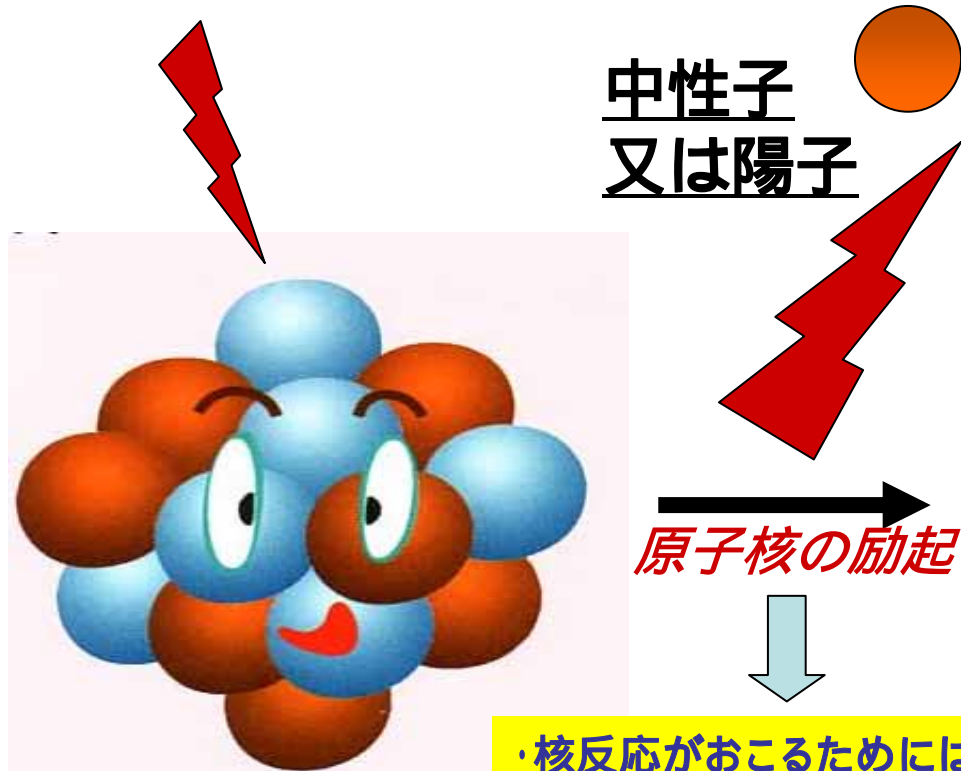


Table 2-1 Elemental composition of pepper measured with neutron activation analysis

Element	Content (ppm) ( error, % )	
	Black pepper	White pepper
Na	$5.7 \times 10$ ( 4 )	$1.4 \times 10$ (10)
Al	$8.4 \times 10$ (13)	$5.8 \times 10$ ( 8 )
S	$< 8.0 \times 10^3$	$< 2.0 \times 10$
Cl	$1.6 \times 10^3$ ( 5 )	$3.6 \times 10$ (17)
K	$1.2 \times 10^4$ ( 3 )	$5.9 \times 10^2$ (10)
Ca	$3.4 \times 10^3$ ( 7 )	$1.3 \times 10^3$ ( 7 )
Sc	$1.7 \times 10^{-2}$ ( 4 )	$8.2 \times 10^{-3}$ ( 7 )
Ti	$< 3.0 \times 10$	$< 1.0 \times 10$
V	$2 \times 10^{-1}$ (40)	$1 \times 10^{-1}$ (40)
Cr	$3.4 \times 10^{-1}$ (25)	$9.0 \times 10^{-1}$ (11)
Mn	$4.0 \times 10$ (23)	$4.0 \times 10$ (21)
Fe	$7.1 \times 10$ ( 7 )	$6.7 \times 10$ ( 6 )
Co	$5.2 \times 10^{-2}$ ( 8 )	$3.2 \times 10^{-2}$ (11)
Ni	1 (32)	$4 \times 10^{-1}$ (40)
Cu	$< 1.0 \times 10$	8 (40)
Zn	$1.2 \times 10$ ( 5 )	$1.0 \times 10$ ( 4 )
As	$< 3 \times 10^{-2}$	$< 3.0 \times 10^{-2}$
Se	$< 5 \times 10^{-2}$	$< 5.0 \times 10^{-2}$
Br	$1.3 \times 10$ ( 3 )	$8.9 \times 10^{-1}$ ( 3 )
Rb	$1.5 \times 10$ ( 3 )	$9.3 \times 10^{-1}$ (12)
Mo	$2.0 \times 10^{-1}$ (29)	$3.4 \times 10^{-1}$ (14)
Ag	$< 3.0 \times 10^{-2}$	$< 3.0 \times 10^{-2}$
Cd	$< 2.0 \times 10^{-1}$	$< 1.0 \times 10^{-1}$
Sn	$< 3$	$< 1$
Sb	$6 \times 10^{-3}$ (40)	$1.1 \times 10^{-3}$ (21)
I	$< 6 \times 10^{-1}$	$< 7 \times 10^{-1}$
Cs	$7.4 \times 10^{-2}$ ( 8 )	$1 \times 10^{-2}$ (40)
Ba	$2.1 \times 10$ (11)	$1.4 \times 10$ (14)
La	$6.0 \times 10^{-2}$ (15)	$3.2 \times 10^{-2}$ (19)
Ce	$7 \times 10^{-2}$ (40)	$< 5 \times 10^{-2}$
Sm	$9.5 \times 10^{-3}$ ( 8 )	$3.4 \times 10^{-3}$ (19)
Eu	$< 1 \times 10^{-3}$	$6 \times 10^{-4}$ (40)
Yb	$< 1 \times 10^{-2}$	$< 1 \times 10^{-2}$
Lu	$< 3 \times 10^{-3}$	$< 2 \times 10^{-3}$
Hf	$< 1 \times 10^{-2}$	$< 9 \times 10^{-3}$
Ta	$3 \times 10^{-3}$ (40)	$2 \times 10^{-3}$ (40)
W	$< 6 \times 10^{-2}$	$< 3 \times 10^{-2}$
Hg	$2 \times 10^{-2}$ (40)	$< 2 \times 10^{-2}$
Th	$5.4 \times 10^{-2}$ ( 9 )	$2 \times 10^{-2}$ (40)
U	$< 2 \times 10^{-2}$	$< 1 \times 10^{-2}$
Total	$1.9 \times 10^4$	$2.1 \times 10^3$

# 核反応とは

放射線



安定した原子核

・核反応がおこるためにはしきい値以上の放射線のエネルギーが必要。  
・エネルギーが高いほど核反応は起りやすい。



10 MeV以下の放射線で問題になるのは主として( , n)反応!

# 誘導放射能の理論的評価の手順

- 対象とする食品の元素組成測定。
- それぞれの元素に食品照射に使われる放射線が吸収された場合に起りえる核反応のリストアップ。
- 核反応の結果生じる可能性のある放射性同位元素量の推定（モンテカルロ法などを用いた理論計算）。

## 考慮すべき要因：

1. 放射線のエネルギー(しきい値以上かどうか)、
2. 放射線量、対象となる元素量、核反応断面積

最近の国際機関による再評価 (IAEA-TECDOC1287, 2002年4月) では：

「食品照射に用いられる放射線による滅菌線量レベル(60 kGy)での照射では生じる誘導放射能は事実上0である。」

# 放射線照射 コショウによる 実際の評価

コショウの元素組成により生成核種が放射性になるしきい値10 MeV以下の( $\gamma$ 、 $n$ )反応をリストアップした。

放射性核種はどの程度の量生じるのか??

Table 2-2 continued

<sup>133</sup> Ba (7.85%)	9.2	<sup>133m</sup> Ba	28.7h	I T	0.2682(16%)
<sup>134</sup> Ba (71.9%)	8.7	<sup>137m</sup> Ba	2.552m	I T	0.662
<sup>203</sup> Hg (23.13%)	8.1	<sup>203m</sup> Hg	44m	I T	0.158 0.370
<sup>204</sup> Hg (6.85%)	7.4	<sup>203</sup> Hg	46.9d	$\beta^-$	0.212 0.27915
<sup>206</sup> Pb (25.2%)	8.0	<sup>206</sup> Pb	3.0 $\times 10^7$ y	E C	
<sup>208</sup> Pb	7.4	<sup>207</sup> Pb	0.8s	I T	0.5697 1.064

Table 2-2 List of nuclides with photoneutron thresholds below 10 MeV

Stable nuclide (%abundance)	Threshold energy(MeV)	Radionuclide from ( $\gamma$ ,n) reaction	Half-life	Type of decay (%abundance)	Major radiation approximate energy(MeV) and intensity		
					$\alpha$	$\beta$	$\gamma$
<sup>32</sup> S (0.0136%)	9.9	<sup>32</sup> S	87.9d	$\beta^-$		0.167	no $\gamma$
<sup>50</sup> V (0.24%)	9.3	<sup>49</sup> V	330d	E C			no $\gamma$
<sup>64</sup> Ni (1.08%)	9.7	<sup>63</sup> Ni	92y	$\beta^-$		0.067	no $\gamma$
<sup>64</sup> Cu (30.91%)	9.9	<sup>64</sup> Cu	12.80h	$\beta^-$ (38%) $\beta^+$ (19%) E C (43%)	0.571 0.657		
<sup>70</sup> Zn (0.62%)	9.2	<sup>69</sup> Zn	57m	$\beta^-$		0.897	1.34 no $\gamma$
<sup>110</sup> Cd (12.39%)	9.6	<sup>109m</sup> Cd	13.8h	I T			0.439
<sup>112</sup> Cd (24.07%)	9.5	<sup>109</sup> Cd	435d	E C			0.0880 ( <sup>109m</sup> Cd)
<sup>114</sup> Cd (28.86%)	9.0	<sup>113m</sup> Cd	48.6m	I T			0.150 0.246
		<sup>113</sup> Cd	14y	$\beta^-$ (99%) I T (week)	0.58		0.265 (~0.1%)
<sup>116</sup> Cd (7.58%)	8.7	<sup>116</sup> Cd	2.21d	$\beta^-$	1.11(58%) 0.86 0.58(42%)		0.0353 0.232 0.261 0.267 0.336 0.493 0.528
		<sup>116m</sup> Cd	43d	$\beta^-$	1.62(97%) 0.68(1.6%)		0.106 0.158 0.336 0.485 0.493 0.934 1.133 1.291 1.419 1.450 0.255(1.9%)
<sup>114</sup> Sn (0.67%)	9.8	<sup>113</sup> Sn	115.1d	E C			
<sup>124</sup> Sn (5.8%)	8.4	<sup>123m</sup> Sn	40.08m	$\beta^-$	1.26(99.94%)		0.1600 (85.5%)
		<sup>123</sup> Sn	129.2d	$\beta^-$	0.32(0.60%) 1.42(99.4%)		0.031 0.60
<sup>123</sup> Sb (42.7%)	9.0	<sup>122</sup> Sb	2.68d	$\beta^-$	0.274(5%) 1.42(67%) 1.98(26%)		0.564(70%) 1.257(0.81%) 0.693(3.8%) 0.141(0.79%) 0.0355(6.7%)
<sup>127</sup> I (100%)	9.3	<sup>126</sup> I	130d	E C			
<sup>133</sup> Cs (100%)	9.1	<sup>132</sup> Cs	6.47d	E C $\beta^+$ $\beta^-$	98% 0.403(弱) 0.810(2%)		0.668(97%) 0.465(1.9%)



# 核反応 $^{127}\text{I}(\gamma, n)^{126}\text{I}$ の生じ易さ

10 MeV以下のエネルギー領域では核反応が生じにくい！！

理論計算上誘導  
放射能は検出され  
ないはず

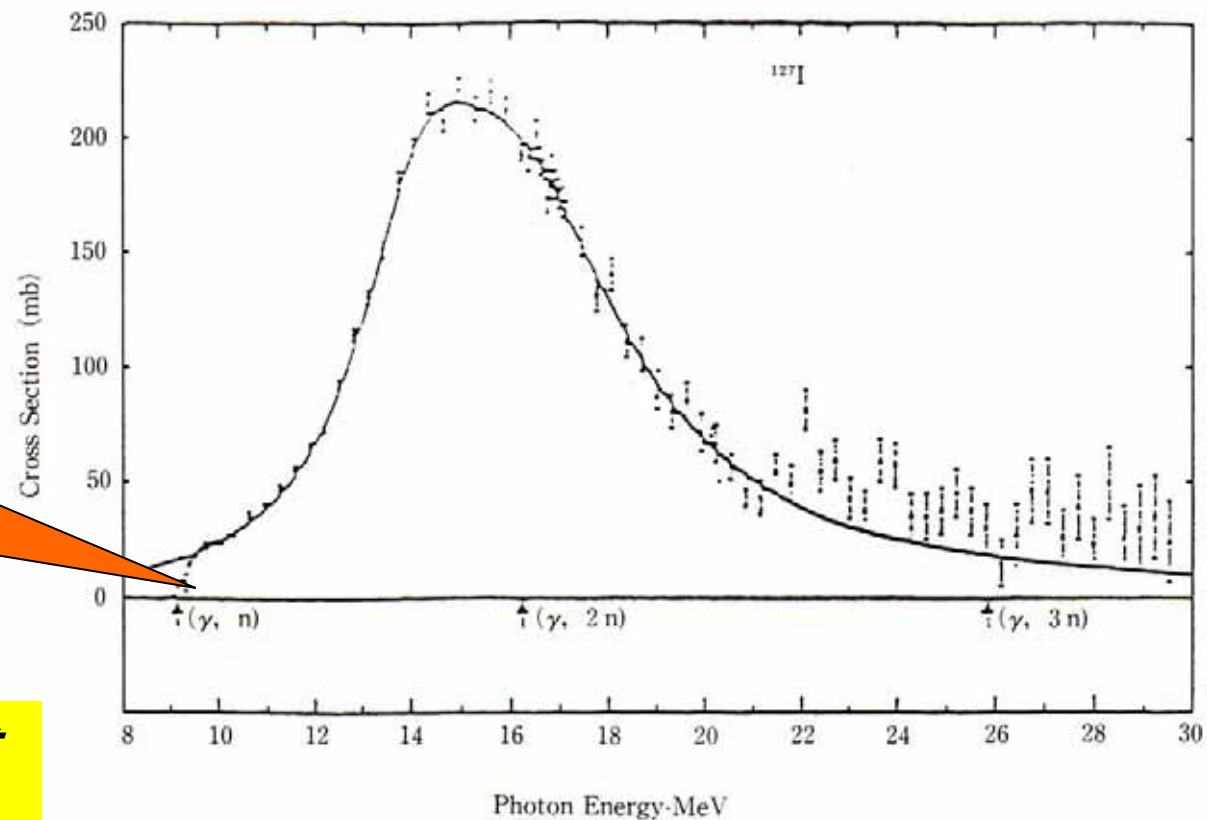


Fig. A 4 Excitation function of  $^{127}\text{I}(\gamma, n)^{126}\text{I}$  reaction.<sup>3)</sup>

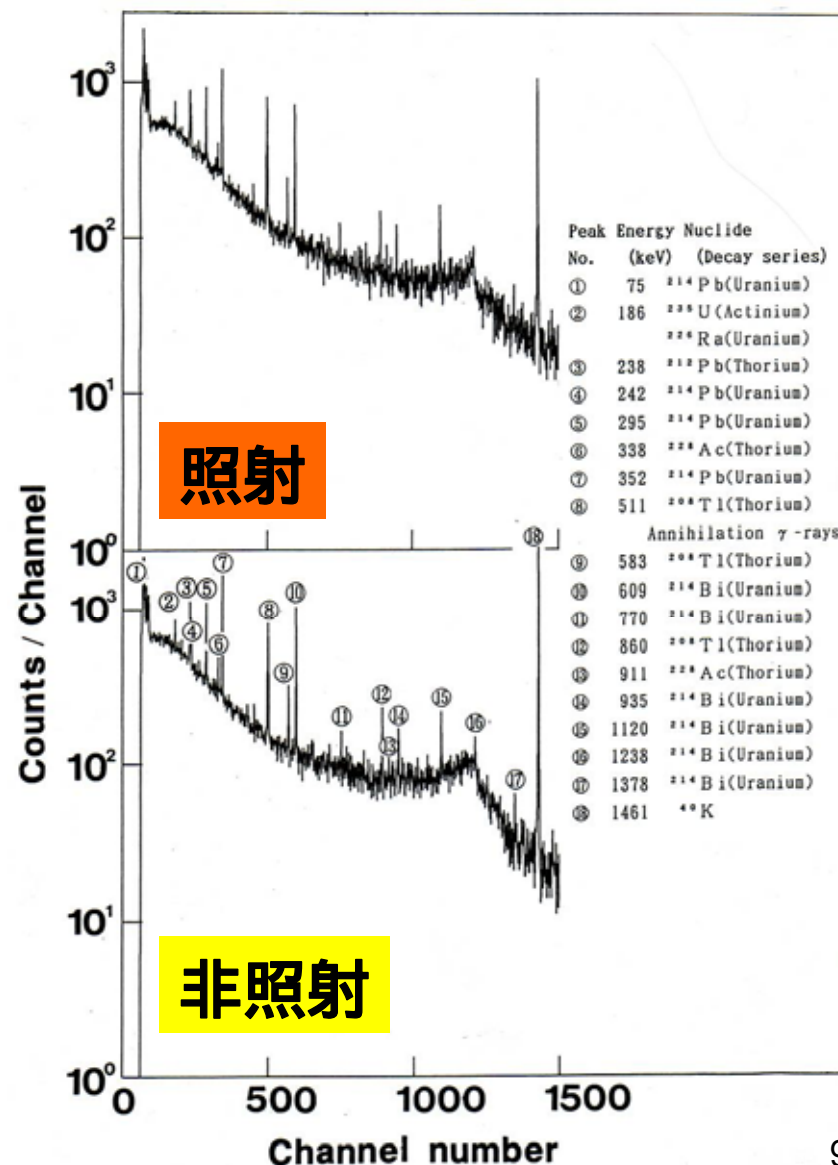
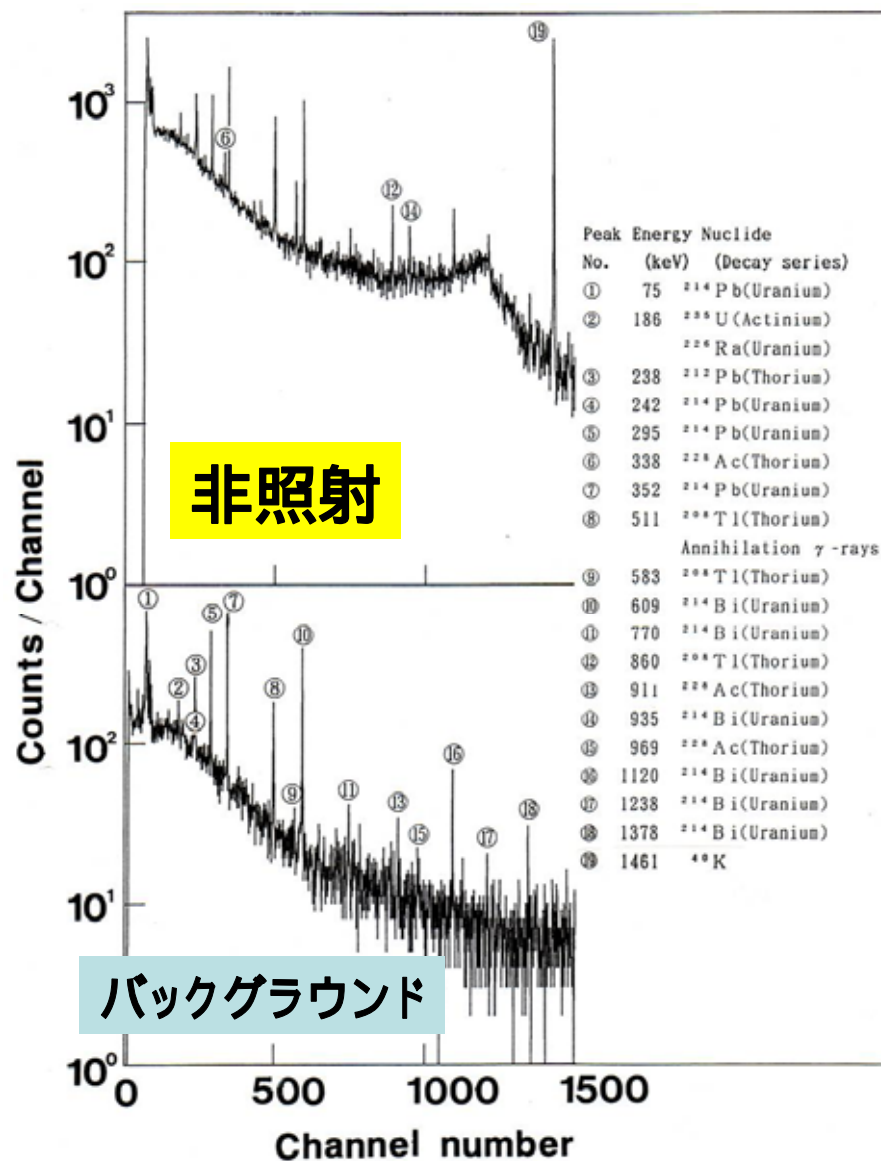
横軸：放射線(線)のエネルギー  
vs. 縦軸：核反応断面積(Cross Section)



# 実際の放射能測定

- 実験材料:  
黒コショウ、白コショウ種子  
(マレーシア、サラワク産)
- 放射線照射:  
10 MeVライナック電子線、100 kGy
- 放射能測定:  
線: 20 cm厚みの鉄室内でリチウムドリフトゲルマニウム  
検出器、波高分析  
線: 2 ガスフローカウンター

# 黒コショウの線測定結果



# 線測定を検出限界

Table 2-5 Detection limits of radioactivity measurement for radionuclides listed in Table 2-2 by  $\gamma$ -ray spectrometry.

Nuclide	Half life	$\gamma$ energy(MeV) (% abundance)	Detection limit of count( $n=3\sigma$ )	Detection efficiency (%)	Detection limit of radioactivity (Bq)
$^{64}\text{Cu}$	12.8 h	1.34(0.48)	46	0.44	34
$^{69\text{m}}\text{Zn}$	13.8 h	0.439(100)	101	1.6	$9.4 \times 10^{-2}$
$^{111\text{m}}\text{Cd}$	48.6 m	0.246(94)	157	3.0	1.3
$^{113\text{m}}\text{Cd}$	14 y	0.265(0.1)	148	2.8	20
$^{115}\text{Cd}$	2.21 d	0.528(27.5)	84	1.2	$1.5 \times 10^{-1}$
$^{115\text{m}}\text{Cd}$	43 d	0.934(1.9)	64	0.88	1.5
$^{113}\text{Sn}$	115.1 d	0.392(64.2)	112	1.8	$3.8 \times 10^{-2}$
$^{122}\text{Sb}$	2.68 d	0.564(70)	82	1.2	$5.5 \times 10^{-2}$
$^{132}\text{Cs}$	6.47 d	0.668(97)	75	0.96	$3.7 \times 10^{-2}$
$^{135\text{m}}\text{Ba}$	28.7 h	0.268(16)	154	2.8	$2.9 \times 10^{-1}$
$^{199\text{m}}\text{Hg}$	44 m	0.158(58.4)	167	5.2	1.4
$^{203}\text{Hg}$	46.9 d	0.279(81.5)	132	2.7	$2.4 \times 10^{-2}$
$^{208}\text{Pb}$	0.8 s	1.064(90)	58	0.56	9920

# ベータ線測定結果

Table 2-4 Total beta measurement of pepper

Sample	10 MeV electron*	Radioactivity (cpm)**
Black pepper	irradiated	$3.4 \pm 0.5^{***}$
	non-irradiated	$2.8 \pm 0.4^{***}$
White pepper	irradiated	$1.4 \pm 0.3^{***}$
	non-irradiated	$1.2 \pm 0.3^{***}$
<hr/>		
Background		$1.2 \pm 0.4^{***}$

\* Irradiated 100 kGy. \*\* Measured immediately after irradiation.

\*\*\* All uncertainty statements made refer to 67% confidence level.

測定限界は $7.0 \times 10^{-2}$  Bq(酸化ウラン)

# 重金属をわざと加えて照射したコショウの 線測定

100 kGy照射直後の 線スペクトル

検出された放射能の変化

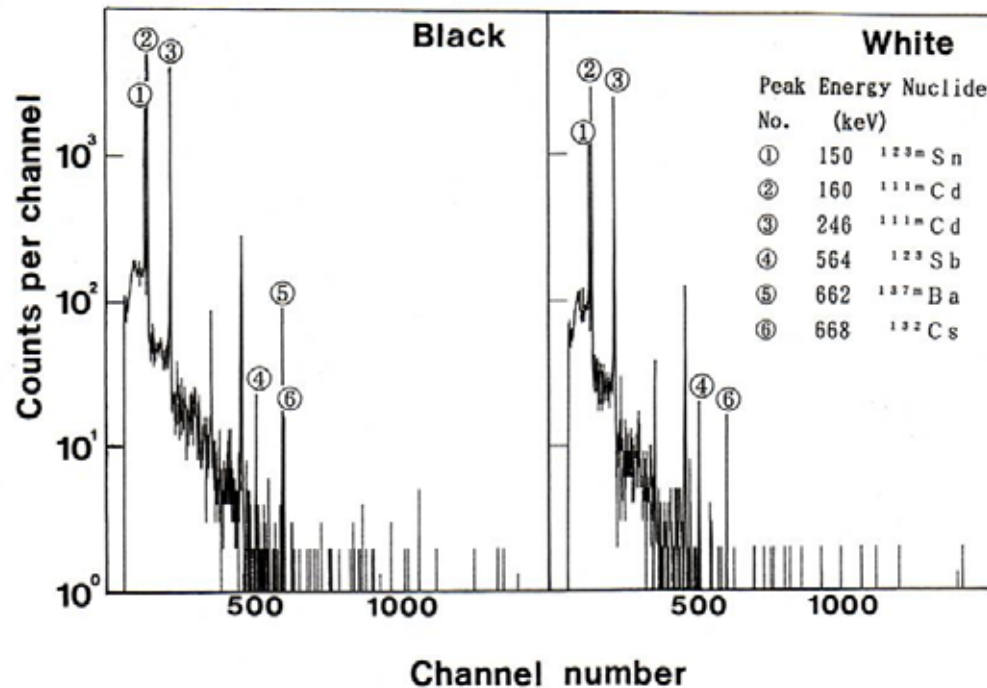


Table 2-6 Decrease of induced radioactivities in 100 kGy-irradiated metal-added pepper after 5-day storage

(γ, n) product	Half life	Pepper Black/White	Radioactivity(Bq/g) after	
			0 days	5 days
$^{111m}\text{Cd}$	48.6 m	Black	$1.2 \times 10$	ND
		White	7.2	ND
$^{123m}\text{Sn}$	40.08 m	Black	9.2	ND
		White	5.7	ND
$^{122}\text{Sb}$	2.68 d	Black	$2.0 \times 10^{-1}$	$6.5 \times 10^{-2}$
		White	$2.1 \times 10^{-1}$	$6.5 \times 10^{-2}$
$^{137m}\text{Ba}$	2.552 m	Black	2.2	ND
		White	ND	ND
$^{132}\text{Cs}$	6.47 d	Black	$1.6 \times 10^{-1}$	$8.8 \times 10^{-2}$
		White	$1.2 \times 10^{-1}$	$7.7 \times 10^{-2}$

ND: Not detected.

Fig. 2-4 γ-ray spectra of the spiked samples containing CuS, ZnS, CdS, SnS, Sb<sub>2</sub>S<sub>3</sub>, CsCl and BaSO<sub>4</sub> measured for 0.6 ksec just after 10 MeV electron-irradiation. The listed compounds, 4.5 g each were added to 18 g of the pepper.

Right: White pepper, 100 kGy-irradiated.

Left : Black pepper, 100 kGy-irradiated.

Induced radionuclides are listed in the figure.



# 重金属添加照射コショウにおいて検出された放射能による通常の照射コショウの誘導放射能と放射線影響の推定

## 加えた重金属量ともとから含まれている重金属量との比率から誘導放射能を計算

## ICRP Publication 30により照射直後に1g摂取したと仮定して預託線量当量を計算

## コショウに元々含まれる<sup>40</sup>Kの10<sup>-6</sup>以下で問題なし！

Table 2-8 Estimation of induced radioactivity in 100 kGy-irradiated pepper and calculation of committed dose equivalent (H<sub>50</sub>) in gastrointestinal tract per intake of 1 g of irradiated pepper just after irradiation

Nuclide	Half life	Pepper Black/White	Radioactivity(Bq/g)		H <sub>50</sub> (Sv/g)
			metal-added	natural	
<sup>111m</sup> Cd	48.6 m	Black	1.2×10	3.5×10 <sup>-5</sup>	4.0×10 <sup>-16</sup>
		White	7.2	1.1×10 <sup>-5</sup>	1.3×10 <sup>-16</sup> (ST wall)
<sup>123m</sup> Sn	40.08 m	Black	9.2	3.9×10 <sup>-4</sup>	3.0×10 <sup>-16</sup>
		White	5.7	8.0×10 <sup>-5</sup>	6.1×10 <sup>-17</sup> (ST wall)
<sup>122</sup> Sb	2.68 d	Black	2.0×10 <sup>-1</sup>	1.9×10 <sup>-8</sup>	3.8×10 <sup>-16</sup>
		White	2.1×10 <sup>-1</sup>	3.6×10 <sup>-8</sup>	7.2×10 <sup>-16</sup> (LLI wall)
<sup>137m</sup> Ba	2.552 m	Black	2.2	8.7×10 <sup>-4</sup>	2.6×10 <sup>-15</sup>
		White	---	---	---
<sup>132</sup> Cs	6.47 d	Black	1.6×10 <sup>-1</sup>	1.7×10 <sup>-8</sup>	1.0×10 <sup>-17</sup>
		White	1.2×10 <sup>-1</sup>	1.7×10 <sup>-9</sup>	1.0×10 <sup>-18</sup> (ST wall)
<sup>40</sup> K (Natural activity in the sample)	1.26×10 <sup>9</sup> y	Black		3.7	2.0×10 <sup>-8</sup>
		White		1.8×10 <sup>-1</sup>	9.9×10 <sup>-10</sup> (ST wall)

ST wall: Stomach wall. LLI wall: Lower large intestine wall

# 結 論

- 放射線照射食品の誘導放射能 ( $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ のガンマ線、10 MeV電子線、5 MeV エックス線照射) に関しては理論計算による評価から問題はない。
- 照射香辛料に対する実際の放射能測定によっても誘導放射能及びその影響は無視できる