

X線並びに γ 線を照射した食品に生じる誘導放射能

食品部 宮原 誠

Induced Radioactivity in Irradiated Foods by X Ray or gamma Ray

Summary

In the course of the archival studies on safety of irradiated foods by the US Army, experimental records conducted by Glass & Smith, and Kruger & Wilson were investigated, based on our experimental experience. Food irradiation by Co-60 or 4~24MeV X ray can induce small amount of radioactivity in the foods. The principal mechanisms of the nuclear reactions are (γ , n). The resulting nuclear products found in irradiated target solutions were Ba-135m, Pb-204m, Hg-199m, Ag-107m, Ag-109m, Cd-111m, Cd-113m, Sn-117m, Sn-119m, Sr-87m, Nb-93m, In-113m, In-115m, Te-123m, Te-125m, Lu-178m, Hf-160m by the (γ , n) reaction. The total radio-activities in beef, bacon, shrimp, chicken, and green beans were counted at 60 days after irradiation by Cs-137, Co-60, and fuel element. The activities more than background were found in irradiated bacon and beef by Co-60.

and activities were found in most foods when foods were irradiated by high energy X ray and the fuel element. The results were understood as the neutron activation by (γ , n) or (n, γ) reaction. Therefore, high energy X ray and spent fuel element were not used for food irradiation.

As the results of this study Co-60 has been used with small amount of induced radioactivity in food.

Keywords: food irradiation; induced radioactivity; nuclear reaction

1. はじめに

数MeVの電子線を食品に照射すると食品中に誘導放射能が発生するので、IAEA (International Atomic and Energy Agency) は食品照射のGMPを提案し、規制をするように促した。前報¹⁾でその論拠となった論文を現代の知識を基に精査した。

日常食べる食品の放射化は老若男女を問わず放射性物質の摂取量を増大させ、体内被曝を増加させ、種々のガンを引き起こすなどの危険性があり、放射線処理食品の安全性を考える上で重要である。ここで扱う元のデータは古いがその後食品中の誘導放射能についての研究はほとんどなく、現在でもいわば最新の研究成果であり、現在までの照射食品の安全性論議などに大きな影響を与えてきた重要な内容である。しかし、軍のベールのなかで研究されたこともあって、詳細なデータは学術報告などとして広く公表されてこなかった。そのため現在でも詳細な文献を入手することは難しく、2005年の食品安全委員会の調査報告書にもこのNatick研究所の放射化の研究に言及がない^{2,3)}。さらに千ページにならんとするNatick研究所の報告書をまとめた資料もみあたらないので、煩瑣をいとわずデータや実験手法を記載し、後日のこれらのデータを検証する際の参考となるようにした。

2002年から2004年頃にかけて、照射食品の安全性調

査研究に資する目的で調査研究し、今回、高エネルギーX線による放射化を中心に調べたので報告する。

1-1 調査方法

アメリカ合衆国農務省図書館 (NAL) で現地調査を行い、同図書館の参考員からの聞き取り調査、アメリカ東部農業研究所フィラデルフィア支所 セイヤー博士の文献コレクションを調査した。実際の資料は同国コロラド州大学ボールディ校Norlin図書館、アメリカ合衆国・国立公文書館 (NARA) オーディオビジュアル部、デンバー市立図書館、カルフォルニア大学ロスアンゼルス校Hugh & Hazel Darling 法律図書館、ロサンゼルス市立図書館などで文献検索等を実施し、我が国では入手できない文献を収集した。同国大使館農務部の協力のもと3年間の調査期間を要した。1万ページを超える塊集された報告書はマイクロフィッシュに記録されており、その中から、放射化に関連する資料を探し出す作業を行った。

1-2 主な報告書

理論的な組み立てと検証実験はKrugerとWilsonによって1958年会計年度から1960年まで実行され、種々の線源の中性子束を測定し、実際の食品の放射化を測定した⁴⁾。1962年にアメリカ合衆国陸軍Natick研究所はさらにスタンフォードのGlassとSmithに高エネルギー電子線照射装置による放射化について、理論構築と実験を行わせた⁵⁾。

引き続き同じNatick研究所のMeyerはこれとほぼ同じ検証を行い確かめた⁶⁾。しばらく時をおいて、Beckerは当時揃いはじめた核反応のデータを基礎に、誘導放射能の量を計算した⁷⁾。これをさらに発展させ、1979年に彼はNatick研究所に報告している⁸⁾。その後、イギリスで照射食品を認めるために、時の政府は英国原子力委員会に照射食品中の誘導放射能に関する報告を求めた⁹⁾。ここでも理論的な考察に基づいて、安全性の確認を行ったとしている。そこでヨーロッパやアメリカでの議論が終わり、規模は極めて小さいが、わが国でもアイソトープ協会が中心となって実験が行われ、同様な結論を得た^{10) 11)}。1995年WHOは5MeVまでのX線照射についての安全性を検討する中で、放射化の問題を理論的に論じている¹²⁾。さらに最近ではIAEAが前述の報告書を出している¹³⁾。本小論では実際の実験を行った結果を取り扱い、特定の断りがないときは、以下に示す実験結果はGlassとSmith^{14,15)}と KrugerとWilson^{4, 16)}らが1960年頃を書いたもので、IAEA⁷⁾が計算の論拠としたものでもある。

2. 食品照射用線源と照射条件・線量測定法

当時の誘導放射能の測定方法と生成量の少ない核種や半減期の短い核種の検出手法は前の報告を参照されたい。¹⁾

2-1 使用済み核燃料棒を用いる γ 線照射

バリウム140—ランタン140崩壊系列からでる2.5MeVのガンマ線を利用する。試料と線源は空气中または水中に置き、線量管理は時間と距離で行った。試料は金属製のカンまたはステンレス容器に格納して、室温で照射した。Vallecitos (アメリカ最初の商用沸騰水型原子炉Vallecitos boiling water reactor (VBWR))のあったところで1957年から1963年まで操業、カルフォルニア州Pleasantonに所在)のGE (General Electronics) 実験施設にある装置を主に用いた。

線量測定はセリウム線量計を用い、10%の誤差で測定した。表面線量は4Mrad/h (40 kGy/h) で平均10から20Mrad (100kGy ~200kGy)の吸収線量を与えて測定した。

表1 中性子量の測定法

測定対象	熱中性子					速中性子		
使用した元素	インジ ユウム In-115	ジスプロ シウム Dy-164	金 Au-197	リン P-31	イオウ S-32	アルミ ニウム Al-27	アルミ ニウム Al-27	バナジウム V-51
使用核反応	(n, γ)	(n, γ)	(n, γ)	(n, p)	(n, p)	(n, p)	(n, α)	(n, α)
共鳴エネルギー (MeV)	1.46	4.9	—	—	—	—	—	—
反応閾値(MeV)				2.5	2.8	4.6	8.1	11.5
生成核	In-116	Dy-165	Au-198	Si-31	P-32	Mg-27	Na-24	Sc-48
半減期	54m	139m	2.7 d	2.6 h	14.5d	9.5m	14.8h	44h
測定した β 線の エネルギー (MeV)	1	1.25	1	1.5	1.71	1.7	1.4	0.64
測定素子の厚さ (mil)	5.4	7	2.7	30	30	30	30	30
最小検出フラック クス量 n/cm ² sec	1.6	0.2	10.6	170	50	210	80	30

Kruger, P., Wilson, C.R. "Study to Determine Neutron Fluxes in Food Irradiation Facilities", DA-19-129-QM-741, 1960.

2-2セシウム137とコバルト60を用いたガンマ線照射

食品試料50~200gをガラス製の容器に詰めて、室温で照射を行った。線量率は0.4と1.4Mrad(4~14kGy)であった。

セシウム照射装置はジョージア工科大学の12000Ci(144TBq)、コバルト60照射装置はSRI(Stanford Research Institute, Menlo Park California, 以下SRI)の2500Ci(92.5TBq)とLRL(Lawrence Radiation Laboratory, Berkeley,

CAで現在のErnest Orlando Lawrence Berkeley National Laboratory, 以下LRL)の2000Ci(74TBq)のガンマーセルを用いた。セシウム照射装置の線量測定はフリッケ線量計、コバルトのそれにはセリウム線量計を用い、それぞれ5,10%の誤差で測定した。表面線量率はセシウムで1.4Mrad/h, SRIで0.4Mrad/h, LRLで6Mrad/h(60kGy/h)で、平均吸収線量はそれぞれ1-10Mrad(10-100kGy/h), 10-500/Mrad(100-5000kGy/h), 15-30Mrad(150-300kGy/h)の吸収線量を与えた。

2-3 X線照射装置による照射

X線は加速器から出てくる電子線を重金属製の変換器にあててX線を発生させる。この実験に使用した装置のうち1MeVの装置はSRIに設置された装置で、共振変換電子加速器を装備している。タングステン製変換器から5インチの位置で照射した。線量測定にセリウム線量計を

用い、表面線量率10Mrad/h(100kGy)、平均吸収線量10Mrad(100kGy)であった。同様に4MeV, 8MeV,

16MeV/24MeVの装置はそれぞれファンデグラフ型, Lバンドリニアック型, Sバンドリニアック型の加速器を用い、金, タングステン, タンタル/タングステンの変換器を用いて、0.5, 5, 6/18インチの位置で照射した。線量測定はそれぞれセリウム, ブルーセロファン, ブルーセロファン/ガラスを用い、平均吸収線量は10, 2, 6-15/0.01-1Mrad(100, 20, 60~150/0.1~10kGy)で測定した。

3. 中性子線量の測定方法

中性子の量を測定するために、用いた種々のターゲットを表1示す。金, イリジウムなどを木ではさんで照射した。

4. 結果と考察

4-1 使用済み燃料による食品照射

アメリカ原子力委員会は核燃料棒をプールに沈め、そこから放出されるγ線を照射食品の線源にしようと試みた。このような施設はイギリスのWantage, アイダホのMTR, イリノイのArgonne国立研究所に設置された¹⁷⁾。

表2 使用済み燃料棒を線源とするγ線照射装置中の中性子フラックス(個/cm²sec)

施設名	熱中性子				エピサーマル中 性子				
	In	Dy	Au	平均	In	Au	P	S	Al
測定素子					Φ _r	φ f	Ee	Ee	Ee
					(1.46)	(4.9)	(2.5)	(2.8)	(8.1)
Dugway Proving Grouds(air)	4.1	9.9	—	7	0.5	—	<170	—	<80
Argonne National Lab (water)	168	172	160	167	4	1	—	—	<80
Materials Testing Reactor(water)	1700	1300	1300	1400	12	7	<170	—	<80
Savannah River Project(Water)	13000	8000	11000	11000	200	200	6650	—	<80
			18000				—	1100	<80

Krugar, P., Wilson, C.R. "Study to Determine Neutron Fluxes in Food Irradiation Facilities", DA-19-129-QM-741, 1960.

バックグラウンド: 元の報告書には記載がないが、中性子なので基本的にはゼロと考えられる。

表 3 Savannah の γ 線照射施設における照射食品の放射化 (dpm/lb/5Mrad)

食品	生成元素			
	塩素 3 8	カリウム 4 2	ナトリウム 2 4	リン 3 2
ベーコン	2800	30	720	—
ビーフシチュー	3000	60	1210	—
にんじん		30	240	—
キャベツ		60	110	—
鶏		80	230	50
鶏シチュー		60	480	—
たら		150	130	—
とうもろこし		60	90	—
小麦粉		20	20	—
果物の砂糖漬け		210	360	—
ソラマメ		30	70	—
挽き牛肉		90	310	—
挽き豚肉		100	250	—
牛乳		70	470	20
みかん		60	—	10
もも		40	60	—
パイナップルジャム		10	60	—
小エビ		50	500	2
サツマイモ		160	250	—
マグロ		50	280	20
ジャガイモ		60	180	20

Krugar, P., Wilson, C.R. "Study to Determine Neutron Fluxes in Food Irradiation Facilities", DA-19-129-QM-741, 1960.

誘導放射能の値はバックグラウンドを差し引いた比放射能として示されている。

この方法は照射技術上いくつかの難点を持っていた。

- 1) 線源に含まれる放射線に種々のエネルギーのガンマ線とベータ線が含まれる複雑な線源で、エネルギー的に弱い放射線が多いので表面線量だけが上昇し、食品内部までその効果を及ぼすことが難しい。
- 2) 種々の核種の混合物なので吸収線量の計算は複雑

であり、急速に減衰する放射能のために、毎日線源の位置を変えねばならないなど照射時に複雑な操作を必要とする。

- 3) 残留中性子放出のため、食品が放射化される可能性がある。
- 1), 2) は照射の工夫や労力で何とかしのげても 3) は

実験する必要があり、表1に示した方法を用いて中性子量を測定した。中性子の速度に応じて反応しやすいターゲットに補足し、 (n, γ) 反応で発生するガンマ線を測定し、熱中性子、エピサーマル中性子、速中性子の量を測定した。ターゲットには半減期の比較的短く測定しやすい元素を用いた。表1から用いる元素により算出される中性子量が異なり、およその値しかわからない。

空气中あるいは水中の使用済み燃料棒を使う4つの照射施設における中性子量を測定した。表2の結果が示すように、中性子フラックスが小さいものから、大きなものまで存在した。核燃料作成時の濃縮度合いや原子炉から外されたあとの経過時間によって、燃料棒に残存する放射性元素の種類と量が異なり、そのために中性子量に大きな差があったと考えられる。表によれば、中性子の持つエネルギーは熱振動程度のいわゆる熱中性子が主成分であった。食品照射にとって、誘導放射能を惹起させる中性子は不要で危険な要素なので、使用済み燃料棒を水中に沈め、この熱中性子をさらに減速し、その影響を少なくして、2.5MeVのガンマ線源として使用しようとしたのだろう。

表3に示すように食品を照射した時に発生する誘導放射能のデータを示した。上述のように水を使う工夫はしたが、ほとんどの食品が放射化することが判明した。ホウ素のような吸収剤がないのだから、水によって反射された熱中性子が食品中に進入することが、この結果から考えられる。たとえば、ベーコン、ビーフシチューの誘導放射能を現代の単位に変換すると50kGy照射で、それぞれ101,110Bq/kgの放射能が生じる計算である。塩素38は $^{37}\text{Cl}(n, \gamma)^{38}\text{Cl}$ で生じ、ベータ線を放出し、37分あまりの半減期をもつ。

燃料棒から出る中性子の問題を主な理由として、1958年FDAは中性子成分の多い使用済み燃料棒の線源を食品照射に用いることを禁じた。しかし、最新のWHOの資料でもこの線源を用いた昔の実験結果を掲載している¹⁸⁾。

4-2 コバルト60などのガンマ線源による誘導放射能

コバルト60とセシウム137による (γ, γ') 反応や4-24MeVのエネルギーを持つX線による (γ, n) 反応が調べられた。

(γ, γ') 反応による放射化を測定した。表4に水溶液をコバルト60などの線源を用い、5Mrad (50kGy) 照射した時の核アイソマーのデータを示す。

コバルト60が出す比較的低いエネルギーのガンマ線でも、核種によっては吸収したガンマ線と似たようなエネルギーの放出が起こり、たとえば、インジウムやカドミニウムにそれぞれ1.0 MeV, 1.4 MeVのガンマ線を照射すると (γ, γ') 反応が起こることなどが報告された。さらに、ストロンチウム、インジウムなどの化合物にコバルト60で11kGyから18kGy照射したところ、 (γ, γ') 反応が検出されたという¹⁹⁾。光子吸収の反応断面は小さくても、吸収線量が10 kGyを超えるとこの反応が検出できるようになることを意味しており、コバルト60による大量照射の際には留意が必要だ。

表5にはセシウム137、コバルト60、使用済み燃料棒(FE)のガンマ線を実際の食品に5Mrad (50kGy) 照射したあと、測定できた誘導ベータ線の計測数(バックグラウンドを差し引いた計測数)を示す。コバルト60照射の場合、牛肉とベーコンの誘導されたカウント数は110と30cpm/gで、バックグラウンドの2.5, 3.1倍で、その他はバックグラウンドの2倍以下であった。核種が同定されていないので、どのような核反応で生成した元素が放射能を示すのか不明である。しかし、幸い計測効率が示されているので、ベクレルに換算した値を表に示した。この計算が正しければ、コバルト60による照射食品では125Bqから4.5kBqの誘導されたベータ線が観測されており、チェルノブイリ食品汚染対策で示された370Bq/kgという量から考えると大きな量である。

(γ, n) 反応を起こすのに必要な最低限のガンマ線のエネルギーはベリリウムの1.6, 2.2MeVとされている。2.5MeVのエネルギーを持つ使用済核燃料棒のガンマ線は (γ, γ') 反応を起こし、表5にあるように同時にベータ線量も増大した。これは食品中に大量に存在する重水素が (γ, n) 反応を起こし、中性子を発生させ、この中性子が周りの水により減速され、熱中性子となり、食品中の元素と (n, γ) 反応などを起こし、種々の放射性核種を生成したためと考えられる。

重水素に (γ, n) 反応を起こさせないガンマ線源として選定された元素がコバルト60やセシウム137であった。これらから出るガンマ線を線源に使う限り通常元素は (γ, n) 反応を起こさないで、照射食品は放射化されないとされたが、実際には (γ, γ') 反応や正体不明のベータ線放出核種が生じることがNatick研究所の一連の実験で明らかとなった。

表 4 コバルト 60 やセシウム 137 の γ 線照射で生成する核アイソマー(γ 線測定) ($\mu\text{Ci}/\text{g}$ 元素 / 5 Mrad)

核異性体	半減期	線源		
		Cs137	Co60	使用済み核燃料棒
Ba-135m	(28.7h)	$<1 \times 10^{-6}$	$<3 \times 10^{-8}$	1×10^{-6}
Pb-204m	(67m)	$<2 \times 10^{-6}$	$<4 \times 10^{-6}$	3×10^{-7}
Hg-199m	(42m)	$<3 \times 10^{-7}$	$<2 \times 10^{-6}$	2×10^{-4}
Fe		$<2 \times 10^{-7}$	$<3 \times 10^{-5}$	—
Zn		$<4 \times 10^{-7}$	$<3 \times 10^{-8}$	—
Ag107m	(44s)	$<1 \times 10^{-4}$	$<7 \times 10^{-3}$	—
Ag109m	(40s)			
Cd111m	(7.7m)	$<2 \times 10^{-2}$	6×10^{-4}	5×10^{-4}
Cd113m	(14.6y)			
Sn117m	(13.6d)	$<4 \times 10^{-8}$	$<3 \times 10^{-9}$	6×10^{-8}
Sn119m	(293d)			
Sr-87m	(2.8h)	$<4 \times 10^{-6}$	6×10^{-5}	1×10^{-4}
Nb-93m	(12y)	$<1 \times 10^{-7}$	$<2 \times 10^{-9}$	$<3 \times 10^{-6}$
In-113m	(1.67h)	—	—	1×10^{-3}
In-115m	(4.5h)	2×10^{-6}	9×10^{-4}	5×10^{-3}
Te-123m	(104d)	—	$<8 \times 10^{-9}$	9×10^{-8}
Te-125m	(58d)	$<7 \times 10^{-6}$	—	—
Lu-178m	(23m)	—	—	4×10^{-5}
Hf-160m	(5.5h)	4×10^{-7}	—	8×10^{-5}

Glass, R.A. & Smith, H.D., "Radioactive Isomers Produced in Foods by Gamma Rays and X Rays", Contract No DA-19-129-QM-1511 Report 3, 1960.

誘導放射能の値はバックグラウンドを差し引いた比放射能として示されている。

表5 セシウム137、コバルト60などによる食品の放射化 (β 線測定) (カウント/分/g)

試料		バックグラウンド			
		ド	Cs137	Co60	使用済み燃料
牛肉	cpm/g	75	—	110	86
	Bq/kg	3125		4583	3583
ベーコン	cpm/g	14	—	30	110
	Bq/kg	583		1250	4583
エビ	cpm/g	50	87	40	80
	Bq/kg	2083	3625	1667	3333
鶏肉	cpm/g	31	26	24	25
	Bq/kg	1292	1083	1000	1042
ソラマメ	cpm/g	34	14	3	29
	Bq/kg	1417	583	125	1208

- a) 照射条件：Cs137, Co60, 使用済み燃料を用いたときの吸収線量はそれぞれ100kGy, 80k Gy, 140kGyであった。
- b) 測定条件：試料量は0.1~0.4g、バックグラウンド：0.5カウント/分、元の表はcpm/g
各食品の誘導放射能の量はバックグラウンドを差し引いた値。従ってバックグラウンド値は不要であるが、原表にあるので書き添えた。
- c) ガンマ線、ベータ線の計測効率はそれぞれ5%、40%として、筆者が計算した。
- d) Glass, R.A. & Smith, H.D., "Radioactive Isomers Produced in Foods by Gamma Rays and X Rays", Contract No DA-19-129-QM-1511 Report 3, 1960.

4-3 大きいエネルギーのX線による食品中の誘導放射能 (γ , γ') 反応と (γ , n) 反応

エネルギーの比較的強いガンマ・X線を照射した時は、(γ , γ') 反応と (γ , n) 反応がある割合で同時に起きた。彼らは種々の核種を含む水溶液をX線で照射し、その中に誘導される核種を分析した。表6はこのうち (γ , γ') 反応の結果を示す。食品に関連する元素の多くはこの反応を起こさないことがわかる。

表7は実際の食品に種々のエネルギーのX線を照射したときの誘導放射能 (バックグラウンドを指し引いた放射能) を示す。食品をそのまま何の処理もせずに γ 線を測定した場合、ベーコンに8~24MeVのX線を照射するとバックグラウンドの5倍~10倍ほどの誘導ガンマ線が測定された。その他の食品では誘導されたガンマ線は観測されなかった。

つぎに照射食品を灰化して、低エネルギーのガンマ線測定すると、大きいエネルギーのX線で照射された食品からは多くの誘導されたガンマ線が観測されるようになった。特に牛肉とベーコンに24MeVのX線を照射した場合、

バックグラウンドの4倍と130倍の誘導ガンマ線をそれぞれ観測した。

灰化後のベータ線を測定すると4から24MeV照射したソラマメはバックグラウンドの6倍程度のカウントがあった。ベーコンは同様な照射で2.5倍から8倍の誘導ベータ線を観測している。

表5と同様にベクレルに換算した値を表に示した。やはりX線は強力で多くの誘導放射能を生み出し、筆者の計算が正しければ、灰化後の誘導ベータ線の量は4や8MeVのX線ですら、牛肉で3kBq, エビで2kBq, 鶏肉で1kBq, ソラマメで3.4から6.3kBqであった。

この領域は10MeVの電子加速器からでる電子が作りうるX線のエネルギーであるので、留意する必要がある。

植物や加工食品の場合、含まれる元素が広範でかつ高濃度であるためと考えられるが、この実験では核種の解析がされていない。一方、この結果はアイソトープ協会の行った一連の研究結果と一致しており、電子線あるいはX線照射による放射化反応は顕著なものと考えられる。

表 6 各核種を含む水溶液を種々のエネルギーの X 線で照射したとき生成する核アイソマー
(γ 線測定) ($\mu\text{Ci}/\text{g}$ 元素 / 5 Mrad)

核異性体	半減期	X 線のエネルギー			
		4	8	16	24
Ba-135m	(28.7h)	1×10^{-4}	8×10^{-3}	0.3	1
Pb-204m	(67m)	1.4×10^{-3}	-	200	200
Hg-199m	(42m)	9×10^{-6}	2×10^{-3}	-	-
Fe		$< 1 \times 10^{-5}$	$< 3 \times 10^{-6}$	(γ , n)	(γ , n)
Zn		$< 1 \times 10^{-5}$	$< 3 \times 10^{-6}$	-	(γ , n)
Ag107m	(44s)	$< 2 \times 10^{-3}$	(γ , n)	(γ , n)	(γ , n)
Ag109m	(40s)				
Cd111m	(7.7m)	1×10^{-2}	2	(γ , n)	(γ , n)
Cd113m	(14.6y)				
Sn117m	(13.6d)	3×10^{-6}	-	3×10^{-4}	3×10^{-4}
Sn119m	(293d)				
Sr-87m	(2.8h)	2×10^{-3}	4×10^{-2}	63	8×10^2
Nb-93m	(12y)	-	-	-	(γ , n)
In-113m	(1.67h)			(γ , n)	8
In-115m	(4.5h)	6×10^{-3}	1	9	16
Te-123m	(104d)	-	-	2×10^{-5}	-
Te-125m	(58d)	-	-	-	6×10^{-5}
Lu-178m	(23m)	0.2	2×10^{-4}	0.4	0.5
Hf-160m	(5.5h)	-	9×10^{-6}	-	-

a) Zn, Fe はエネルギーが安定せず、核種を決定できなかった。

b) Glass, R.A. & Smith, H.D., "Radioactive Isomers Produced in Foods by Gamma Rays and X Rays",
Contract No DA-19-129-QM-1511 Report 3, 1960.

c) 誘導放射能の値はバックグラウンドを差し引いた比放射能として示されている。

表7 X線照射による食品の放射化

試料	バックグラウンド	X線源(MeV)				
		4	8	16	24	
未処理でγ線測定						
牛肉	cpm/g	3	2	8	0	6
	Bq/kg	1000	667	2667	0	2000
ベーコン	cpm/g	9	10	40	7	80
	Bq/kg	3000	3333	13333	2333	26667
エビ	cpm/g	1	0	4	8	5
	Bq/kg	333	0	1333	2667	1667
鶏肉	cpm/g	2	0	5	4	6
	Bq/kg	667	0	1667	1333	2000
ソラマメ	cpm/g	3	0	0	0	0
	Bq/kg	1000	0	0	0	0
灰化後γ線測定						
牛肉	cpm/g	21	21	22	21	63
	Bq/kg	7000	7000	7333	7000	21000
ベーコン	cpm/g	3	1	0	14	400
	Bq/kg	1000	333	0	4667	133333
エビ	cpm/g	16	14	18	16	63
	Bq/kg	5333	4667	6000	5333	21000
鶏肉	cpm/g	4	7	4	5	28
	Bq/kg	1333	2333	1333	1667	9333
ソラマメ	cpm/g	27	19	22	26	51
	Bq/kg	9000	6333	7333	8667	17000
灰化後β線測定						
牛肉	cpm/g	75	86	100	73	80
	Bq/kg	3125	3583	4167	3042	3333
ベーコン	cpm/g	14	23	14	19	94
	Bq/kg	583	958	583	792	3917
エビ	cpm/g	50	51	57	59	70
	Bq/kg	2083	2125	2375	2458	2917
鶏肉	cpm/g	31	26	25	25	30
	Bq/kg	1292	1083	1042	1042	1250
ソラマメ	cpm/g	34	83	150	150	170
	Bq/kg	1417	3458	6250	6250	7083

- a) 照射条件：4, 8, 16, 24MeVのX線を用いたときの吸収線量はそれぞれ0.1kGy, 0.5kGy, 2kGy, 3kGyであった。
- b) 元の表はcpm/g 各食品の誘導放射能の量はバックグラウンドを差し引いた値。従ってバックグラウンドの値は不要であるが、原表にあるので書き添えた。
- c) ガンマ線、ベータ線の計測効率はそれぞれ5%、40%として、筆者が計算した。
- d) Krugar, P., Wilson, C.R. "Study to Determine Neutron Fluxes in Food Irradiation Facilities", DA-19-129-QM-741, 1960.

4-4 電子線照射による中性子の発生

使用済み燃料棒の中性子フラックスを測定したのと同じ方法で各種の電子線照射装置の中性子線量を測定した。その結果を表8に示す。中性子の発生量は加速電圧が高い電子線照射装置ほどまた電流値が大きい装置ほど中性子線量が大きいことがわかる。電流値が数mAの装置は加速電圧が3MeV程度でも多くの中性子を発生した。一方、10MeV以上の装置ではきわめて小さな電流値でも多くの中性子を発生した。

反応断面積の大きさは電子線のエネルギーと共に変化するが、各元素の巨大共鳴領域をさげ、照射時の加速電圧は25MeVを最大とした。一方、15MeVを超えてようやく誘導放射能を観測する場合もあった。理論と合わないことから、加速電圧の測定に問題があったかもしれない。2003年、AOACの席でUSDAの担当者と議論したときにも、話題となり当時加速器のエネルギーを正確に測定するのは難しかったようだ。

いずれにしても、このように高速に加速された電子線は種々の核反応を食品中で起こす可能性があるだけでなく、施設の建設費が高価なことや、装置が安定して作動

するが、各元素の巨大共鳴領域をさげ、照射時の加速電圧は25MeVを最大とした。一方、15MeVを超えてようやく誘導放射能を観測する場合もあった。理論と合わないことから、加速電圧の測定に問題があったかもしれない。2003年、AOACの席でUSDAの担当者と議論したときにも、話題となり当時加速器のエネルギーを正確に測定するのは難しかったようだ。

表8 電子線照射施設の中性子量 (個/cm²・sec)

施設名	加速 電圧 MeV (電流 値μA)	測定素子 エビサーマル									
		熱中性子				中性子		高速中性子			
		Mn	In	Dy	Au	In	Au	P	Al	Al	V
						Φ _r	Φ _f	Ee	Ee	Ee	Ee
						(1.46)	(4.9)	(2.5)	(4.6)	(8.1)	(11.5)
GE	2 (1800)	<1.8	<1.8	<5.4	—	0.0063	—	—	—	—	—
GE	3.5 (4000)	318	330	316	—	3.2	—	<20000			
Barnes	8 (11-44)	<25	20	20	—	0.1	—	<8000			
ARCO	6 (11-46)	<16	19	19	—	0.3	—	<5000	<10000	<20000	<20000
MRH	15-35 (0.28)	97000	150000	98000	89000	670	1700	310000	530000	36000	<16000
Stanford U	30 (0.02- 0.05)	1900	<2000	1600	<4300	17	14	190000	1700000	<26000	31000

*Meyer, R.A., "Induced Radioactivity in Food and Electron Sterilization", US. Army Natick Laboratories, 1965 Glass, R.A. & Smith, H.D., "Radioactive Isomers Produced in Foods by Gamma Rays and X Rays", Contract No DA-19-129-QM-1511 Report 3, 1960.

バックグラウンド：元の報告書には記載がないが、中性子なので基本的にはゼロと考えられる。

しないことなどから、近年になるまで工場で稼動する装置は少なかったと考えられる。

このデータは表7のX線のデータと矛盾がある。8MeVのエネルギーで比較するとX線照射の場合多く食品について誘導放射能を観測したのに対し、理論的に最高8MeVのX線発生している電子線では誘導放射能を全く観測しなかったのである。変換効率が悪いとはいえ、これは後者の実験に問題があった可能性が高く、電子線加速器の加速電圧の測定が正しかったか疑問がある。

5. まとめと結論

現在照射食品に国際的に認められているコバルト60, 10MeVまでの電子線, 並びに5MeVまでのX線を用いても、食品中に含まれる元素によっては、放射能を帯びることが報告されている。

誘導放射化は原理的に起きないとされているコバルト60を50kGy照射した牛肉, ベーコンからバックグラウンドの2.4倍, 3倍の誘導放射能を検出した。また、核種は示されていないが、牛肉でも4.5kBq, ベーコン2.3kBq, 2.7kBqなどの誘導放射能が観測されている。さらに20kGy以下10kGy以上の照射でもカドミウムなどで(γ , γ') 反応が観察された。

Natick研究所のガンマ/X線照射による放射化実験の結果, 2.5MeV (使用済み燃料) ではベーコン, ビーフシチューから塩素38が観測され, ベーコンやソラマメからベータ線, ガンマ線を検出し, その放射化を確かめた。

8MeVの電子線は同程度のX線を伴うので, これを原因とする放射化物の生成が予想された。しかし, 電子線の場合, 全く放射化物を観測せず¹⁾, 同じエネルギーのX線の結果と矛盾する。

実際に生成する誘導放射能の量は照射装置の構造や運転の方法により異なる。従って, 中性子量は個々の施設について調査をする必要がある。IAEAの勧告に基づき¹³⁾, 放射化しにくい環境と条件で電子線照射すれば問題がすくなくなると考えられる。

誘導放射能の量が少ないので, ベータ線などの検討には無機塩類の水溶液を照射してその結果に基づきデータを出す必要があった。しかし, モデルはあくまでモデルで, 実際の食品とは異なった結果を与える可能性はゼロではない。実際, Natick研究所の報告にもあるが, 食品汚染物に由来すると考えられる核種が存在し, それが照射により放射化することや, あるいは包装容器が中性子源になり放射化が促進されるなど実際はモデルとは異なる結果を与えている。個別の条件を考慮しないと放射化の危険が増す場合がある。

安全性については当時の人々が考えなかった生物・生体内濃縮をするような化学形, アルファ線などを出す核

種を想定すると²⁰⁾, 体内カリウムより放射能が少ないからとかあるいは誘導放射能を測定できないからすなわち安全との結論は得られない。

毒性実験の中に, 照射直後の照射食品に問題ありとする研究があるので, 半減期の短い放射性物質による体内被曝の確定影響と確率影響を見積もる必要があるが, 今後の課題である。例えば, インドにおける照射小麦の安全性を調べる実験で, 照射直後の小麦を食べたグループの子供の末梢血中に倍数体細胞が多く検出されたという。各国でこれについて動物実験が繰り返されたが, それら複数の追試の間ですら一致した結果が得られていない^{21,22)}。原因についても, 統計的におかしい, 栄養の不足, 実験の失敗などに帰着され明確でない。このような現象を誘導放射能の確定影響等の観点から精査した論文を持ち合わせない。

現在照射食品を認めている各国において, 照射食品の安全性を論議した1990年頃, 本稿で示したようなデータの存在は一般に知られておらず, 誘導放射能のリスクについて厳密な議論は避けられてきた経緯がある。従って, 外国の例を参考にしても, これら誘導放射能が社会的に容認できるのか否か, 直ちに判断することは難しい。

照射食品を安全に流通させるためには, 一般に食品添加物が必要である。食品照射は多くのラジカルを食品中に発生させ, 食品中のビタミンEなどの抗酸化成分を極端に減少させるので, これらの影響を防止する必要がある。実際に実験動物用の照射餌料には多くの添加剤が使用されていること²³⁾ からも, それが必要不可欠であることは明らかだ。一般的に食品添加物のマイナスの面を食品照射は補えるかはケース・バイ・ケースで, これら保護的な添加剤を必要としない食品も考えられるので, それらについては食品照射技術のメリットは大きい。

最後に本稿とは目的が異なるので論じなかったが, 筆者らは, 誘導放射化が照射食品の検知に使用できないかとの観点から10MeVの電子線照射による誘導放射能を予備的に測定した²⁴⁾。Natick研究所の研究よりもっと広い範囲の元素について, 放射化が観測されており, 50年後の理論と高い測定技術に基づき, この問題はさらに精査が必要だろう。

一つ一つに引用ページを記さなかったが, 核反応については村上らのデータブックを使用し, 反応の解析を行った。²⁵⁾

謝 辞

本論を書くにあたっては, マイクロフィッシュを読み取り, その書かれた核反応を現在の知識で評価する作業が必要で, このためにもとデータであるスタンフォード大グループのデータについての解説と必要な作業につ

いてご助言をいただいた元東京都立産業技術研究所 谷崎良之博士に感謝する。JCOの事故のあと対応に追われる中 (γ , n) 反応, 中性子捕獲反応や加速器の仕組みなどの原子物理学についての詳細を丁寧に教授してくれた原子燃料工業NFI室の諸氏に衷心より感謝する。

参 考 文 献

- 1) 宮原 誠 誘導放射能の確認とその安全性 食品照射 41, 32-48 2006.
- 2) 三菱総合研究所 食品への放射線照射技術の安全性に関する欧米の取り組み状況調査報告書 内閣府食品安全委員会 平成15年度食品安全確保総合調査 2004年
- 3) 食品総合研究所 放射線照射食品の安全性に関する文献等の収集・整理等の調査報告内閣府食品安全委員会 平成16年度食品安全確保総合調査 2005年
- 4) Krugar, P., Wilson, C.R. "Study to Determine Neutron Fluxes in Food Irradiation Facilities", DA-19-129-QM-741, 1960.
- 5) Smith, D.H., "Radioactivities Produced in Foods by High-Energy Electrons", DA19-129-QM-1100, 1962.
- 6) Meyer, R.A., "Induced Radioactivity in Food and Electron Sterilization", US. Army Natick Laboratories, 1965.
- 7) Becker, R.L., "Radioactivity Induced in Food by 10-MeV Electron Irradiation", DAAGI7-76-0060, US. Army Natick Research and Development Command 1977.
- 8) Becker, R.L., "A Determination of the Radioactivity Induced in Food as a Result of Irradiation by Electron of Energy between 10 to 16 MeV", DAAK60-78-R-0007, US. Army Natick Research and Development Command 1979
- 9) National Radiological Protection Board, "Report on the Radiological Implication of Irradiated Foods", ANCIF, "Report on the Safety and Wholesomeness of Irradiated Foods" Appendix B 1985.
- 10) 武田篤彦, 古田雅一 "10MeV電子線照射食品中の誘導放射能について", 食品照射研究会 "研究成果最終報告書" 日本アイソトープ協会, 1992.
- 11) 橋爪 朗 "ガンマ線による誘導放射能 (10MeV以下の光核反応) 食品照射研究会 "研究成果最終報告書" 日本アイソトープ協会, 1992.
- 12) ICGFI "The Development of X-ray Machines for Food Irradiation" Joint FAO/IAEA/WHO Consultants Meeting on the Food irradiation 1995 Vienna.
- 13) IAEA "Natural and Induced Radioactivity in Food", IAEA-TecDoc-1287, 2002, Austria.
- 14) Glass, R.A. & Smith, H.D., "Radioactive Isomers Produced in Foods by Gamma Rays and X Rays", Contract No DA-19-129-QM-1511 Report 3, 1960.
- 15) Glass, R.A. & Smith, H.D., "Radioactivities Produced in Foods by High-Energy Electrons", Contract No DA-19-129-QM-1100 Report 10, 1960.
- 16) Krugar, P., Wilson, C.R. "Determination of Neutron Dosages by Food Irradiation Devices" Contract No DA-19-129-QM-741, Report 12 final 1960.
- 17) Jarrett, Sr, R.D., Isotope Radiation Sources, Josephson, E.S. & Peterson, M.S, Ed. Preservation of Food by Ionization Radiation Vol1, Chap6, CRC, Boca Raton, 1982.
- 18) WHO, "High-dose Irradiation: Wholesomeness of Food irradiated with Doses above 10kGy", WHO Technical Report Series 890, 1999, Geneva. pp.83.
- 19) 橋爪 朗, 八巻 務, 唐司定吉, 広庭隆行, 樋口進, "Co-60の大線量 γ 線照射によるアイソマーの励起と食品照射" 第36回理工学における同位元素・放射線研究発表会要旨, 日本アイソトープ協会, 1999, 東京.
- 20) 松岡 理, 放射性物質の人体摂取障害の記録 "日刊工業社, 1995, 東京; 近藤宗平 "低線量放射線の健康影響" 近畿大学出版局, 2005.
- 21) 世界保健機構 "照射食品の安全性と栄養適性" コープ出版, 東京1994, pp157~pp163. (原文WHO, "Safety and nutritional adequacy of irradiated food", WHO, Geneva, 1994 pp.94-pp101.)
- 22) Science Committee for Food, "Report of the Scientific Committee for Food", EUR,10840EN, Directorate-General, Commission of the European Communities 1986, pp 5.
- 23) IAEA, "Decontamination of Animal Feeds by Irradiation", Vienna, 1979, pp. 81.
- 24) Miyahara, M., Maitani, T., Nakamura, M., Tanizaki, Y., Kobayashi, A New Photon Activation Reaction Method for Detection of Irradiated Foods Which Treated with High Energy Electron Beam. A Fundamental Approach. "The 117th Annual AOAC International Meeting and Exposition, 2003.
- 25) 村上悠紀雄, 團野皓文, 小林威夫編 "放射線データブック", 地人書館, 1982, 東京.