

高タンパク食品中のキサントレン系色素分析法に関する検討 Analysis of xanthene colors in high protein food

山下毅 (北部環境共生センター), 中川大輔, 篠崎史義 (保健衛生推進室), 伴楚行則
Takeshi YAMASHITA, Daisuke NAKAGAWA, Fumiyoshi SHINOZAKI, Yukinori BANNO

Abstract

A new analysis method for xanthene colors in high protein food, such as cod roes, was developed. Samples were homogenized with 10mM Tris-HCl and proteins in the samples were digested overnight by Proteinase K at 45°C. Xanthene colors were extracted from samples with methanol / 10mM Tris-HCl solution by ultrasonic waves. Extracts were purified by Amino (NH₂) SPE Bulk Sorbent. Xanthene colors in the purified extracts were determined by LC-Photo Diode Array (PDA). Compared with the conventional method, limit of detection in this method were improved. Furthermore, we examined detection by Fluorescence (FL) detectors. FL detectors showed a higher sensitivity of detection for xanthene colors than it by PDA.

Key Words

キサントレン系色素 xanthene colors, プロテアーゼ K Proteinase K, 高速液体クロマトグラフィー high performance liquid chromatography

1 はじめに

現在我が国では、生鮮品など一部の食品を除き、着色を目的として 12 種類の酸性タール系色素の使用が認められており、これらの色素を食品に使用した場合には使用量の多少に関わらず表示の義務がある。このため、行政機関等において、色素の適正な使用または表示が行われているかどうかを確認するには、食品に少量使用された色素であっても検出できるような、感度の良い定性試験が必要となる。

現在の酸性タール系色素分析では、水、エタノール、アンモニア水等で抽出し、抽出液を酸性にした後、ポリアミドカラムにより精製する方法が一般的に採用されているが、この方法では、高タンパク食品において、赤色 3 号等のキサントレン骨格を持つ色素の回収効率が悪く、表示にある色素を検出できない事例が報告されている¹⁻³⁾。そこで今回、高タンパク食品の内、当機関で毎年検査を実施しているタラコについてキサントレン系色素の回収効率を向上させることを目的として抽出・精製方法の開発(酵素分解法)を行った。また、これまでフォトダイオードアレイ(PDA)により行っていた検出に加えて、蛍光検出器(FL)による検出条件についても検討し、一定の知見を得たので、これを報告する。

2 方法

(1) 試料

京都市内に流通していた無着色タラコを使用した。

(2) 試薬及び標準品

蒸留水(ナカライテスク), メタノール(関東化学), エタノール(純正化学), アセトニトリル(関東化学)は液体クロマトグラフ用を, トリスヒドロキシアミノメタン(ナカライテスク), 塩酸(ナカライテスク), アンモニア水(ナカライテスク), 酢酸アンモニウム(和光純薬工業)は特級を用いた。タンパク分解酵素として Proteinase K(和光純薬工業)を, 弱陰イオン交換体として Amino (NH₂) SPE Bulk Sorbent (Agilent Technologies)を使用した。各種標準品(黄色 4 号(Y4), 赤色 2 号(R2), 青色 2 号(B2), 赤色 102 号(R102), 黄色 5 号(Y5), 赤色 40 号(R40), 緑色 3 号(G3), 青色 1 号(B1), 赤色 3 号(R3), 赤色 106 号(R106), 赤色 104 号(R104), 赤色 105 号(R105))は東京化成工業から購入したものをを使用した。

(3) 装置

ア LC : Nexera (島津製作所)
イ PDA : SPD-M20A (島津製作所)
ウ FL : RF-10AXL (島津製作所)

(4) 試験溶液の調製

ア 従来法
試料 10 g を量り採り, 1 %アンモニア含有 70 %エタノールを 90 ml 加えて, 水浴上で 10 分間加温

抽出を行った。冷後、室温下 3,000 rpm で 5 分間遠心分離し、上清を採り、酢酸(3 → 50)で中和した。これを水浴上で 20 ml 程度まで濃縮し、酢酸(3 → 50)で pH3 ~ 4 に調製し、抽出溶液とした。含水ポリアミドを先端に石英ウールを詰めたクロマト管に流し込み、20 ml 酢酸(1 → 100)でコンディショニングした後、抽出溶液を負荷した。クロマト管を酢酸(1 → 100)で洗液が透明になるまで洗浄した後、蒸留水 20 ml で洗浄し、1 %アンモニア水 : エタノール(1 : 1)で溶出した。溶出液を酢酸(3 → 50)で中和し、ロータリーエバポレーターにより 40°C で減圧乾固した。残留物に 10 %エタノールを 1 ml 加えて、超音波で溶解し、0.2 μm メンブランフィルターを通じたものを試験溶液とした。

イ 酵素分解法

試料 5 g を量り採り、20 mM Tris - HCl(pH7.8) を 10ml 加えて 1 分間ホモジナイズし、Proteinase K 溶液(20 mg/ml)を 100 μL 加え、良く振とう後、約 45 °C のインキュベーター内で遮光下一晩放置した。20mM Tris - HCl (pH7.8) : メタノール (1 : 1)を 10 ml 加え、均一な溶液とした後、5 分間超音波で抽出したものを、室温下 9,000 rpm で 3 分間遠心分離し、上清を採った。これに Amino (NH₂) SPE Bulk Sorbent を 2 g 加えて、溶液中の色素が移行するまで振とうし、しばらく静置した後、上清を廃棄した。沈殿に 20 mM Tris - HCl (pH7.8)を 100 ml 加えて振とうした後、上清を廃棄する操作を、上清の濁りがなくなるまで繰り返した。メタノール 50 ml を加え、振とうし、しばらく静置した後、上清を廃棄した。これを先端に石英ウールを詰めたクロマト管に流し込み、2 %アンモニア水 : エタノール (1 : 1) をカラムの色が無くなるまで注入し、溶出液をロータリーエバポレーターにより 40°C で減圧乾固した。残留物に 10 %エタノールを 0.5 ml 加えて、超音波で溶解し、0.2 μm メンブランフィルターを通じたものを試験溶液とした。

(5) LC-PDA 及び LC-FL 分析条件

カラム : Shim-pack HR-ODS (3.0 mm i. d. × 150mm, 3 μm)
カラム温度 : 40 °C
移動相 : A 液 10 mM 酢酸アンモニウム水溶液

B 液 アセトニトリル

グラジエント条件 :

B 液 1 %(0 min) → 1 %(2.5 min) → 60 %(37.5 min) → 90 %(37.51 min) → 90 %(42.5 min) → 1 %(42.51 min) → 1 %(47.5 min)

流速 : 0.3 ml/min

注入量 : 5 μL

PDA : Y4 420 nm
R2 530 nm
B2 630 nm
R102 480 nm
Y5 480 nm
R40 480 nm
G3 630 nm
B1 630 nm
R3 530 nm
R106 530 nm
R104 530 nm
R105 530 nm

FL : R3, R106, R104, R105 Ex 540 nm Em 570 nm

3 結果及び考察

(1) 抽出方法の検討

今回の検討課題としたキサントニン系色素は、タンパク質に結合しやすいことが知られている。通常、タンパク質は疎水性残基が内向きとなるよう立体構造をとっており、キサントニン系色素との結合は、主に疎水性残基との相互作用で成り立っていると考えられているため⁴⁾、キサントニン系色素の中でもハロゲン置換基を多く持ち、疎水性の高い部位を持つ R3, R104, R105 の抽出効率が悪くなっていると予想された。また、キサントニン系色素は水溶液中で pH4.5 程度以下になると沈殿し始めるとされており¹⁾、従来法で用いられているポリアミドによる精製過程において、pH 3 ~ 4 とすることも、低回収効率の一因となっていると考えられた。

そこで今回、キサントニン系色素とタンパク質の結合を防ぐため、タンパク分解酵素を用いてタンパク質の立体構造を破壊することとした。また、キサントニン系色素の沈殿を防ぐため、精製方法を中性の弱陰イオン交換体を用いた分散固層による精製へと変更した。上記の条件を満たすために、タンパク分解酵素にはエンドペプチターゼの一種である Proteinase K を用いることとした。その理由として、Proteinase K は基質特

異性が低く、広い pH 範囲において安定で、pH 7.5 ~ 12 において最大酵素活性を示し、金属イオンにより活性が阻害されない特徴をもつことが挙げられる⁵⁾。

また、従来法では抽出溶液にエタノールを含む溶媒を用いているが、今回開発した試験法では、弱陰イオン交換体へのキサンテン系色素の吸着に、影響がエタノールよりも少ないと考えられるメタノールを採用し、濃度も 25%程度となるよう調整して、超音波による抽出を行った。

(2) 従来法との比較

今回開発した酵素分解法について、従来法との比較を行った。無着色タラコを酵素分解法では 5 g、従来法では 10 g 量り採り、酸性タール色素をそれぞれ 1, 2, 3, 4, 5 $\mu\text{g/g}$ となるよう添加して均一化し、遮光下室温で 24 時間放置した後、それぞれの試験法で抽出・精製を行った。

その結果、従来法では今回の検討での最高添加濃度である 5 $\mu\text{g/g}$ においても R3, R104, R105 は検出されなかったのに対し、酵素分解法ではキサンテン系色素を 4 種とも検出することができた (図 1)。これに加えて、酵素分解法では、今回検討した最低添加濃度である 1 $\mu\text{g/g}$ においても、添加した 12 種類の酸性タール色素を全て検出可能であった (図 2)。以上の結果から、今回検討した酵素分解法はタラコ等の高タンパク食品中からのキサンテン系色素の抽出に有用であると考えられた。

(3) 検出条件の検討

食品に使用された色素が少量である場合、検出器にも高い感度が要求される。一方、キサンテン系色素は蛍光特性を有することが知られており、TLC においても展開後の薄層板に特定の波長を照射すると赤色蛍光が見られることが定性確認に用いられている。この蛍光特性を利用し、従来の PDA に加えて、より選択性が高いと考えられる FL 検出器による測定を試みた。励起波長を 540 nm とし、得られる蛍光波長を観察したところ、4 種類のキサンテン系色素のうち、R105 の蛍光強度が他と比較すると弱かったため、これについて各波長での強度を比較した (図 3)。その結果、550 ~ 610 nm の範囲では 570 nm で最も強い蛍光強度が得られたため、これを FL 検出条件とした。この条件で、PDA 検出器でほぼピークが観察されなくなる濃度である 5 ng/ml 標準溶液を測定したところ、FL 検出器では PDA よりも S/N 比が改善されており、高感度な測定が可能であった (図 4 上)。また、今回開発した酵素分解法について空試験を実施し、得られた溶液について FL 検出器により測定したところ、定性を妨害するピークは見られなかった (図 4 下)。

4 まとめ

本検討により、高タンパク食品であるタラコ中のキサンテン系色素を従来法に比べて高感度に検出することが可能となった。また、抽出溶液の濃縮や、中和を行わないため、操作が簡便で、多くの検体を一度に前処理することが可能

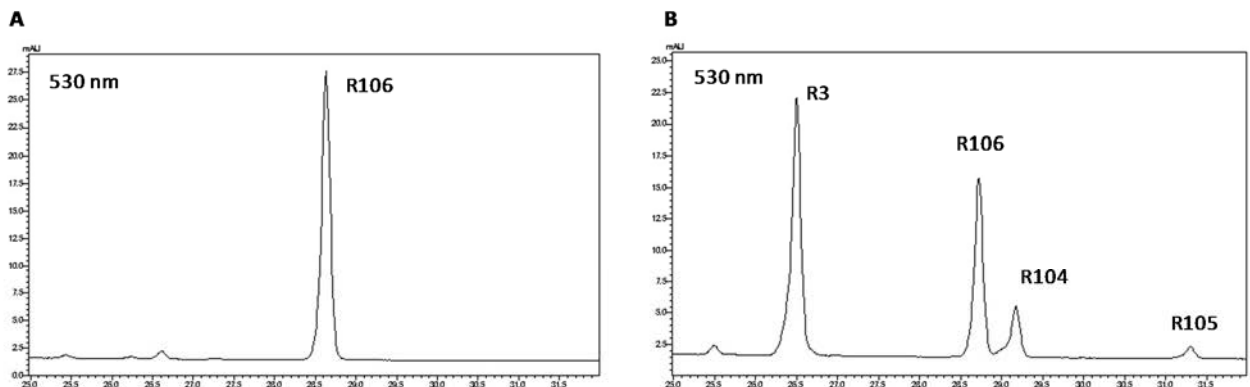


図1 従来法及び酵素分解法それぞれによる試験溶液のキサンテン系色素クロマトグラフの比較(5 $\mu\text{g/g}$)

A: 従来法

B: 酵素分解法

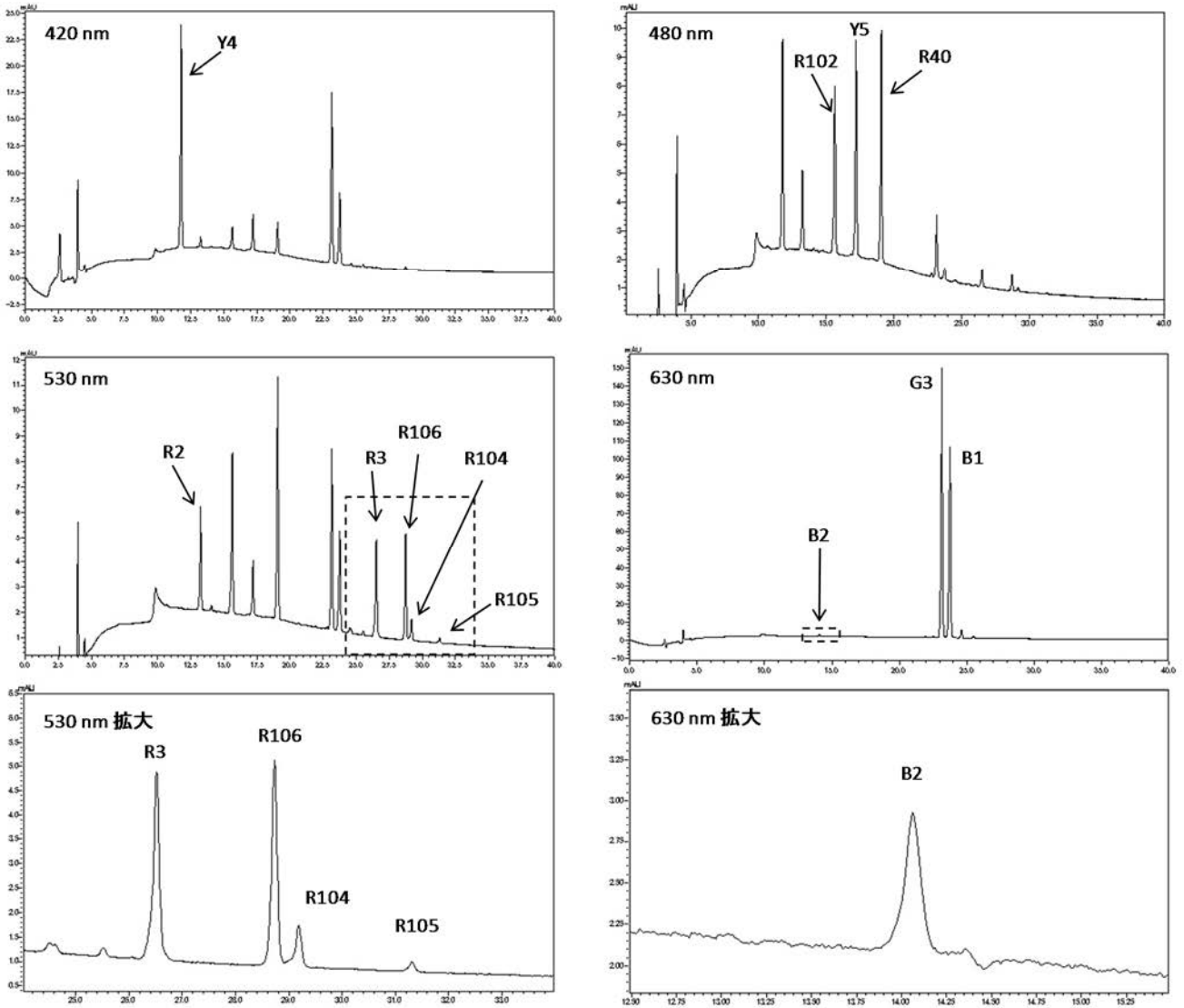


図2 酵素分解法により調製した1 μ g/g添加試料試験溶液のPDAクロマトグラム
下段図は中段図中破線部を拡大したもの

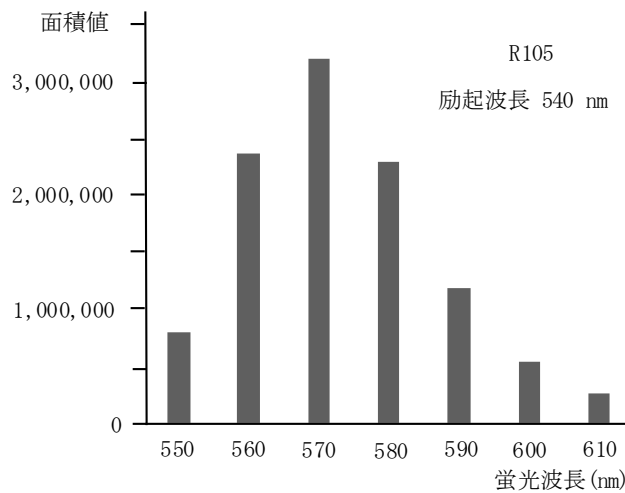


図3 540 nmにより励起された赤色105号の各蛍光波長におけるピーク面積値

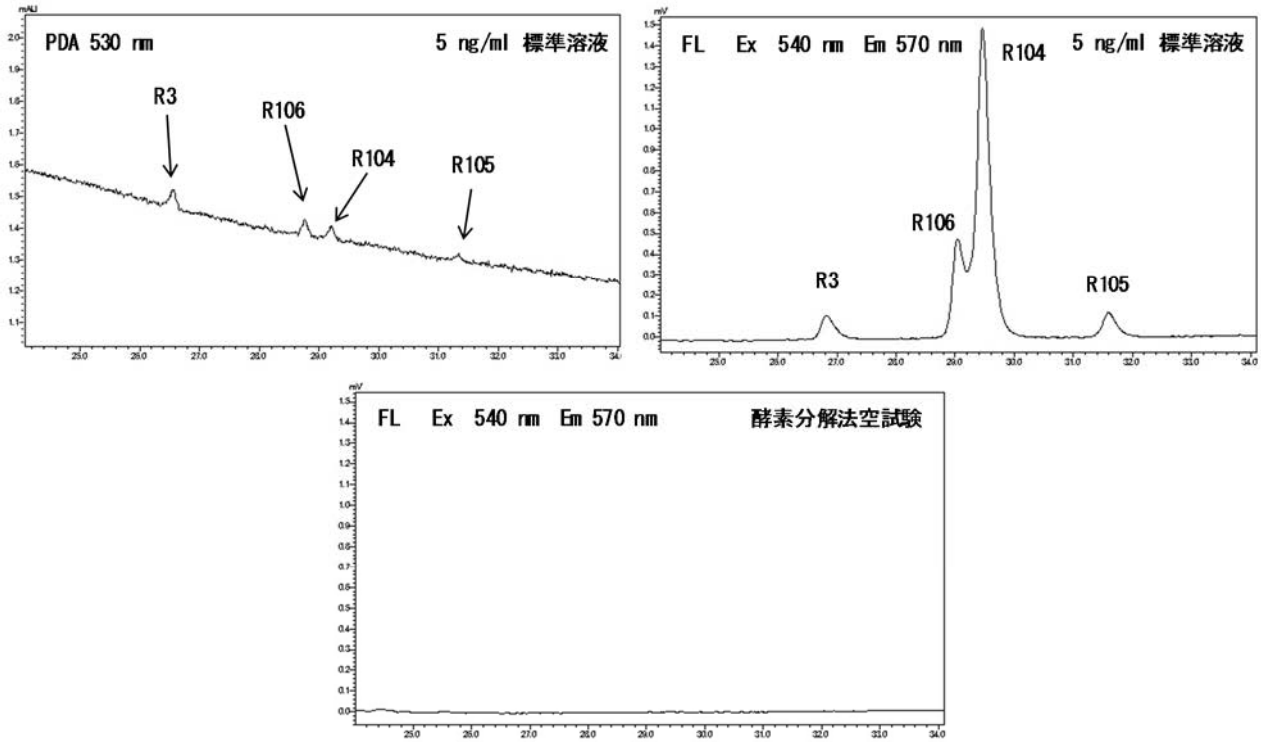


図4 キサンテン系色素のPDA及びFL検出器によるクロマトグラフ
 上 5 ng/ml標準溶液のPDA及びFLクロマトグラフの比較
 下 酵素分解法により調製した空試験試験溶液のFLクロマトグラフ

となった。Proteinase Kはタンパク変性剤である SDS や尿
 素等の存在下で、タンパク分解効率が上昇することが知ら
 れており⁵⁾、今後、酵素反応時間を短くするなどの検討を
 行う予定である。

5 引用文献

(1) 林 都香 他：食用酸性タール色素の抽出および精
 製法の検討，宮城県保健環境センター年報 27 p97 -
 99 (2009)

(2) 山口 友美 他：高タンパク質食品における食用酸
 性タール色素の抽出法の検討，宮城県保健環境セン
 ター年報 28 p98 - 100 (2010)

(3) 古賀梓美 他：福岡市における辛子明太子の着色料
 検出状況と精製法の検討，福岡市保健環境研究所年
 報 p77-80 (2011)

(4) 相沢秀俊：タンパク質と食用色素の結合に関する研
 究 (1979)

(5) Ebeling W et al. “Proteinase K from *Tritirachium
 album*limber”. *Eur. J. Biochem.* 47 (1) p91-97
 (1974)

食品中の放射能測定における精度管理 多種類の測定容器選択の影響について

伴 埜 行 則*, 富 田 陽 子**, 並 河 幹 夫*

The quality control in radioactivity measurements in food
The effects of various types of measurement container selection

Yukinori BANNO, Yoko TOMITA, Mikio NAMIKAWA

Abstract

Radioactivity measurement of the food is intended for a variety of samples. Moreover, you will be prompted to rapid results with high sensitivity. We have prepared a variety of types of containers. As a result, we were able to carry out efficient inspection. On the other hand, volume, shape and measurement time is the main important factor of radioactivity measurement. Therefore, the use of many types of containers, will affect the measurement result.

Therefore, using the measurement results of the standard volume ray source, we analyze the effects of the container.

Then, we measured the soybean standard authentication sample and the like in a variety of capacity. And, we confirmed that the measurement results match.

Key Words

ゲルマニウム半導体検出器 Germanium semiconductor detector, 放射性セシウム radioactive cesium, 標準体積線源 standard volume-ray source, ピーク効率 peak efficiency, 大豆認証標準物質 Soybean standard certification sample

1 はじめに

放射能測定を行う試料は、水洗及び不要部分の除去等の前処理後、細切又はホモジナイザー等による均一化処理を行い、測定容器に規定量詰めした後、重量を測定し嵩密度を算出する。そして、一定時間測定し食品中放射能濃度を算出する。その時、測定容器の選択、嵩密度の算出及び測定時間の設定は、最重要ファクターとなる^{1), 2)}。

ゲルマニウム半導体検出器（以下Ge検出器）に用いる測定容器は、検出器を包み込むような独特の形状のマリネリ容器（0.7L及び2.0L）及び円筒型のU-8容器等が使用されている。そして、各容器に対してあらかじめ γ 線のエネルギーに対するピーク効率曲線を求め、測定結果の補正に適用する。ピーク効率曲線は、測定に用いる容器に、均一に混合線源を分散させた標準体積線源を測定し、 γ 線の各エネルギー（keV）を横軸、ピーク効率（%）を縦軸にプロットする。得られたポイントを曲線で結ぶと通常

100keV付近に極大値を持つ「へ」の字型の効率曲線を描く。

* 京都市衛生環境研究所生活衛生部門、

** 京都府保健環境研究所理化学課

標準体積線源は、9種類の混合線源をアルミナに吸着させ、使用する測定容器に充填密封したもので、半減期が短い核種は30日に満たない。その結果、製造後一定時間経過した標準体積線源は、一部ピークが消失してしまう。そのため、標準体積線源の購入・廃棄費用等を考慮すると、測定容器の種類は極力増やさない方が良いとされている³⁾。

しかし、実際には様々な食品が検査対象となり、限りなく低い検出下限値で迅速な報告が求められる。この要求に応えるためには、多種類の測定容器を用意し、測定試料量の制約を少なくすることが実践的である。

また、どの測定容器に対しても、測定下限値は一定レベ

ルに統一させたい。そのためには、測定容器の選択と嵩密度に応じて測定時間を調整する必要がある。そこで、過去の測定下限値と嵩密度のデータを解析し、測定容器毎に目安となる測定時間を算出した。

そして、容器選択が測定精度に及ぼす影響を確認するために、各容器の標準体積線源のデータを比較した。次いで、放射性セシウムの認証試料等を各測定容器に詰め、測定結果を比較検証した。

2 方法

(1) 装置

測定には、キャンペラ製のP形高純度Ge検出器(相対効率46%以上、分解能1.8keV以下)を用いた。

(2) 測定容器

5種類の容器(0.5L, 0.7L及び1.0Lのマリネリ容器, 0.1LのU8容器, 0.2Lの円筒型容器)を用いた(図1)。



図1 測定容器の外観

(3) 測定条件

定量は、¹³⁴Csはエネルギー605keV、¹³⁷Csは662keVの計数値に着目して算出した。各容器に共通の目標下限値を放射性セシウムとして1Bq/kg以下と設定し、測定時間を調整した。

(4) 試料

表1 測定対象試料の平均嵩密度と検体数

食品分類	嵩密度の平均値					検体数
	円筒型容器		マリネリ型容器			
	0.1L	0.2L	0.5L	0.7L	1L	
魚介類	1.22	1.01	1.10	1.03	1.07	139
魚介類加工品	1.15	1.01	1.08	0.98	1.03	52
肉類	1.25				1.00	15
乳製品		1.02	1.09	1.00	1.06	70
乳類加工品	1.13	1.06		1.00	0.78	55
野菜	1.06	0.99	1.02	1.01	1.02	501
野菜加工品類		1.06	1.07	1.04	0.96	11
果実	1.11	0.93	1.04	1.00	1.07	49
穀類およびその加工品		0.89	1.03	1.01	0.98	32
種実類			0.71		0.71	3

豆類	1.34			1.02	2	
清涼飲料水	0.96	1.05	0.98	1.00	44	
冷凍食品				1.02	5	
缶詰・瓶詰め	1.14	0.92			4	
菓子類		1.31		1.13	3	
その他の食品	1.19	1.08	0.91	0.86	138	
平均	1.17	1.04	1.03	1.01	1.01	
検体数	404	198	257	136	128	1123

平成23年12月22日～平成26年までの検査対象は194種1123検体であり(表1)、希釈・濃縮操作は行わず、すべて「生試料」として検査に供した。

野菜類については、平成23年4月20日厚生労働省事務連絡「試料洗浄(土壌除去)標準作業書」⁴⁾に基づき洗浄した。魚介類は、内臓、骨、皮等を除き可食部のみにした。その他の食品は、可食部のみを検査に供し、弁当類等複合食品については、すべてを合わせて一食分検査とした。試料は、細切り後、フードプロセッサーで均一にして空隙が残らないよう測定容器に詰めた後、ドーナツ盤状の抑え器具等で所定のラインに合わせた。

(5) ピーク検出効率の算出

日本アイソトープ協会製造の標準体積線源を容器別に用意し、次式により各エネルギーに対するピーク検出効率を求めた(表2)。

$$\epsilon = \frac{N}{t \cdot I \cdot A}$$

ϵ : ピーク検出効率
 N : ピーク面積(計数)
 t : 計数時間(second)
 I : γ 線放出割合(%)
 A : 標準線源の放射能(kBq)

表2 容器別ピーク効率の算出例

Iso Name	Ener gy	Half Life (Y)	I	ピーク検出効率 ϵ				
				円筒		マリネリ		
				0.2L	0.1L	0.5L	0.7L	1L
¹³⁴ Cs	475	2.06	1.49	0.020	0.023	0.022	0.022	0.018
¹³⁴ Cs	563	2.06	8.36	0.017	0.019	0.019	0.019	0.015
¹³⁴ Cs	569	2.06	15.4	0.017	0.019	0.018	0.019	0.015
¹³⁴ Cs	605	2.06	97.6	0.017	0.019	0.019	0.019	0.015
¹³⁴ Cs	796	2.06	85.4	0.014	0.016	0.016	0.016	0.013
¹³⁴ Cs	802	2.06	8.69	0.014	0.016	0.015	0.016	0.013
¹³⁴ Cs	1039	2.06	0.99	0.012	0.014	0.014	0.014	0.011
¹³⁴ Cs	1168	2.06	1.79	0.013	0.015	0.014	0.015	0.011
¹³⁴ Cs	1365	2.06	3.02	0.012	0.014	0.013	0.014	0.011
¹³⁷ Cs	662	30.2	85.1	0.017	0.020	0.020	0.020	0.016

(6) 容器別測定値の比較

日本食品分析学会製放射能分析用 大豆認証標準物質（粉末状、低濃度）及び検出試料（タラ、2013/10/08 受付）を 0.1L、0.2L の円筒型容器及び 0.5L、0.7L のマリネリ容器に詰め測定した。

3 結果と考察

(1) 実試料の測定データを用いた測定時間の検証

食品中の検出下限値は、次式で求める。測定エネルギーによりγ線放出割合、容器の選択により検出効率が決まる。同一容器でも試料量は、測定試料の嵩密度により異なる。

$$Ad = \frac{Nd}{I \times \epsilon \times t \times V \times (S/100)}$$

Ad: 検出下限値
 Nd: ピーク検出限界カウント
 V: 試料量 (kg)
 S: 採取効率 (%)

表 1 に示すとおり測定試料は多岐にわたる。大多数の試料は、嵩密度 1.0 近辺を示したが、弁当類で約 1.4、ピーマン、ハクサイ、ミズ菜、ゴマ、茶葉等で約 0.6 であった。¹³⁴Cs はエネルギー 605keV、¹³⁷Cs は 662keV について表 2 のγ線放出割合、検出効率の数値を用い、検出下限値に 0.5Bq/kg を、ピーク検出限界カウント及び試料量は実測値のデータを代入した。採取効率は 100% とし測定時間を算出した。

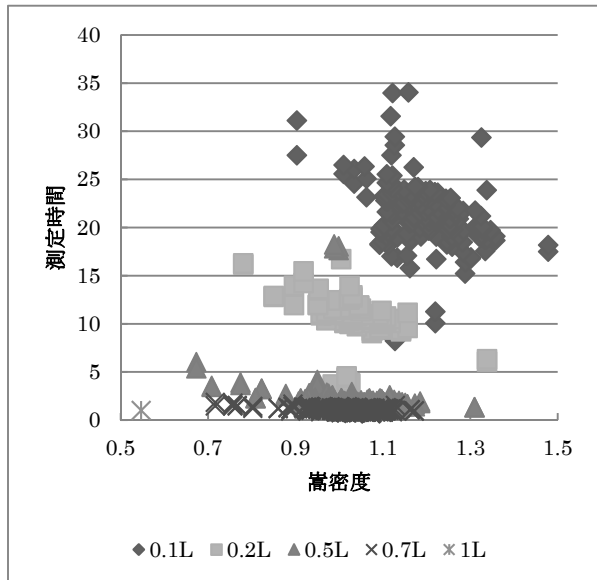


図 2 容器別測定時間と嵩密度

測定容器の容量と試料量より算出した嵩密度と算出測定時間との相関を図 2 に、容器別に回帰分析を行った

計算結果のまとめを表 3 に示す。

嵩密度が小さくなると測定時間が延びるが、各容器の測定時間は概ね 0.1L 円筒型で 20 時間、0.2L 円筒型で 10 時間、0.5L マリネリ型で 2 時間、0.7L 以上マリネリ型で 1 時間であった。容器の容量が大きくなるに従い、切片は小さく、傾き及び寄与率は大きくなる傾向が見られた。傾きから推測すると、嵩密度 0.5 の場合 0.1L 円筒型でおおよそプラス 6 時間、0.7L 以上マリネリ型でおおよそプラス 0.5 時間の延長が目安となることがわかった。

表 3 容器別回帰分析のまとめ

容器容量	0.1L	0.2L	0.5L	0.7L	1L
試行数	170	86	358	314	749
平均時間	21.04	10.55	1.84	1.08	0.99
切片	35.02	24.72	6.144	2.424	2.592
傾き	-11.72	-13.77	-4.14	-1.32	-1.58
寄与率	0.0688	0.1849	0.2411	0.2759	0.2766

(2) 自己吸収係数と容器選択

自己吸収は、測定試料自体が放射線を散乱（吸収）する現象で、γ線エネルギー、線源/試料の材質及び密度に依存する⁵⁾。測定対象の試料は、様々で構成元素の種類も多様なため、試料ごとに異なる数値になるが、食品の場合軽元素が主となるため、質量吸収係数はほぼ一定となる。ただ、同じ試料でも詰め方に差が生じ、結果として嵩密度のみが自己吸収係数を決めるパラメータとなる¹⁾。実試料の測定結果を用い、嵩密度と¹³⁷Cs のエネルギー 662keV に対する自己吸収係数の相関図を図 3 に示す。

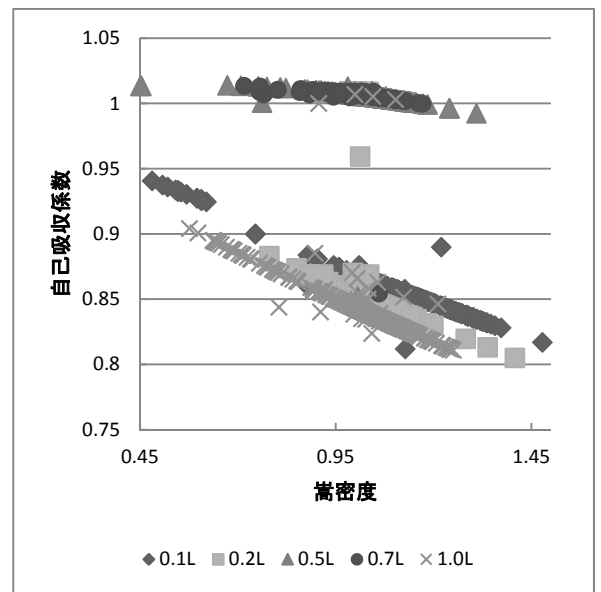


図 3 容器別自己吸収係数と嵩密度

試料のマテリアルは、96.8%が水・寒天で、残りが海底土・土壌・灰化物であった。

嵩密度が高くなるほど、自己吸収係数は小さくなる傾向にあるが、0.5L及び0.7Lのマリネリ容器については、嵩密度に関わらず1付近の一定の値を示す傾向が見られた。しかし、同じマリネリ容器でも1L容量の場合、嵩密度に応じ減少する場合と1付近の一定値を示す場合が観察された。

(3) サム効果補正係数と容器選択

放射線が複数本同時に観測されると、その放射線のエネルギーを足し合わせたエネルギーとして検出されることがあり、サム・コインシデンス効果と称し、相対効率の良い検出器ほど影響を及ぼす場合があるといわれている²⁾。

¹³⁷Csは662keV 1本の放射線が観測されるのに対し、¹³⁴Csは複数本の放射線が観測されるため、サム効果補正係数が設定される。その平均値は、0.911±0.010でほぼ一定値となった。

(4) 標準体積線源を用いた点検

表4 標準体積線源を用いた点検結果

容器	円筒型		マリネリ型		
	容量(L)	0.1L	0.2L	0.5L	0.7L
重量 (kg)	0.1053	0.2004	0.5231	0.7425	1.075
証明値 (kBq)	5.44	0.784	1.00	0.142	2.12
95%信頼区間下	97	93	94	83	96
95%信頼区間上	103	107	106	117	104
測定回数	21	21	103	63	219
平均測定時間 (h)	24	12	2	1.5	1
AVG (%)	100.6	99.9	98.1	99	101.3
CV (%)	1.3	2.1	0.9	0.4	0.9

放射性核種の壊変現象は、「壊変する」「壊変しない」の統計学的現象でポアソン分布に従う。したがって、計数値が多くなると正規分布に近似できる²⁾。また、計数値Nは、 $\pm\sqrt{N}$ の計数誤差を伴う。Nを大きくすると計数誤差の相対値は小さくなる。

測定容器を変更する都度、装置の状態を確認する目的で使用する容器と同じ容量の標準体積線源を測定した。¹³⁷Csの661.64keVに着目し、算出された放射能濃度を校正証明書にある数値と比較した。2011年12月～2016年9月の間に測定したデータを容器別に集計し、ばらつきを評価した。分布の95%が入る範囲はN±2×標準偏差となるため、¹³⁷Csの計数値がこの範囲

にあることで真度の確認とした。体積標準線源を用いた¹³⁷Csの測定値は、日本アイソトープ協会の校正証明書の示す値に対し98.1～103.3%、分散の最大は0.2L円筒型容器の2.3%、範囲の最大は0.7Lマリネリ容器の7.7%となり、各標準体積線源を総計427回測定した結果、すべてこの範囲に入っていた(表4)。

(5) 同一試料の容器別測定値

大豆認証標準物質及び検出試料(タラ, 2013/10/08採取)を0.1L, 0.2Lの円筒型容器及び0.5L, 0.7Lのマリネリ容器に詰め、通常測定している測定時間について測定し、結果を表5にまとめた。

測定値の不確かさは、計数誤差に加え、試料の詰め方及び嵩密度のバラツキが加味される。実際、各容器の比重は、認証大豆で0.718～0.758、タラで0.97～1.023の範囲でばらついた。

認証大豆の測定結果は、認証値に対する割合として、¹³⁴Csで97～108%の範囲に、¹³⁷Csで97～101%の範囲に収まった。タラについては平均値に対する割合は、¹³⁴Csで97～103%、¹³⁷Csで92～104%の範囲に収まった。

表5 同一試料の容器別測定値

	容器	円筒型		マリネリ型			
		容量(L)	0.1	0.2	0.5		0.7
認証大豆	測定時間	24	15	2	1.5	認証値	
	比重	0.718	0.753	0.758	0.732		
	Cs-134 (Bq/kg)	36.8	36.0	38.0	40.1	37.1	
	%	±0.8	±0.7	±1.2	±1.2	±2.6	
	Cs-137 (Bq/kg)	66.1	66.3	68.1	68.8	68.2	
	%	±0.8	±0.8	±1.3	±1.3	±4.6	
	測定時間	47	18	2	3	平均値	
	比重	0.97	1	1.023	0.97		
	タラ	Cs-134 (Bq/kg)	12.1	12.7	12.1	12.9	12.5
		%	±0.2	±0.3	±0.3	±0.3	
Cs-137 (Bq/kg)		25.8	28.2	28.9	28.5	27.9	
%		±0.3	±0.4	±0.7	±0.5		

4 まとめ

どんな種類・容量の試料に対しても、高感度で迅速な放射能測定をするために多種類の測定容器を用意した。一方、放射能測定における容器の容量及び形状は、結果算出

の重要なファクターである¹⁾。そこで、多種類の容器使用が測定結果にどの程度影響するかを標準体積線源の測定結果を用いて検証したところ、許容範囲であることを確認した。次いで、認証大豆試料及びタラの検出試料を多種類の容器で測定し、測定結果が一致することを確認した。

本報告は、平成27年10月29日～30日に京都で開催された日本食品衛生学会のポスター発表したものに加筆したものである。

5 文献

- 1) 蜂須賀暁子：放射能分析における計数の統計的不確かさについて、食品衛生学雑誌, 57(2), J25-J29 (2016)
- 2) 放射性物質測定値の統計学的特徴と食品中のセシウム検査 公益社団法人 日本食品衛生協会 ISBN978-4-88925-065-7
- 3) ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー(放射能測定法シリーズ7) 文部科学省科学技術・学術政策局原子力安全課防災環境対策室
- 4) 「緊急時における食品の放射能測定マニュアル」に基づく検査における留意事項について『試料洗浄(土壤除去)標準作業書』平成23年4月20日厚生労働省医薬食品局食品安全部監視安全課事務連絡
- 5) 野口正安, 小峰隆志, 秋山正和：容積試料における γ 線自己吸収の補正法, RADIOISOTOPES, 49, 189-198(2000)

鴨川のカモにおけるインフルエンザウイルスの保有状況

微生物部門

○松本 剛芳, 林 美智子, 永棹 彰子,

1 目的

インフルエンザウイルスは変異しやすく, 平成 21 年に発生した新型インフルエンザ (AH1pdm) のように, しばしば大流行を引き起こす。

カモはインフルエンザウイルスの宿主であり, A 型インフルエンザウイルスの全ての亜型 (HA16 型, NA9 型) を保有している。また, カモは渡り鳥であり, インフルエンザウイルスの「運び屋」として注目されている。

そこで, 鴨川に飛来するカモの糞を採取し, インフルエンザウイルスの保有状況を調査した。

なお, 本調査研究は京都産業大学との共同研究である。

2 方法

平成 27 年 12 月から平成 28 年 3 月まで, 鴨川河畔 (丸太町橋から北山大橋間) にてカモの糞を採取した。

検査は, 実験施設が当研究所に無いため, 京都産業大学において実施し, 孵化鶏卵法によるウイルス分離 (及び同定) を行った。

3 結果

平成 27 年 12 月 7 日から平成 28 年 3 月 28 日まで (計 7 回), 鴨川河畔にてカモの糞を採取した。

採取した 174 検体は, 孵化鶏卵法でインフルエンザウイルスの分離を試みたが, インフルエンザウイルスは分離されなかった。

4 考察

本シーズンの調査において, カモ糞便からインフルエンザウイルスは分離されなかった。一方, 環境省が実施している野鳥における定期糞便検査の結果によると, 平成 26-27 年シーズンは 12854 検体から 27 検体の低病原性鳥インフルエンザウイルスが分離されている¹⁾。

本シーズンの京都市における調査ではインフルエンザウイルスは検出されなかったが, 全国的な調査結果を勘案すると, 今後も定期的な調査をすることが重要と考えられる。

5 参考文献等

1) 環境省自然環境局鳥獣保護業務室 (平成27年9月1日)

: 「平成26-27年シーズンの野鳥における鳥インフルエンザウイルス保有状況調査の結果について」

