

既存添加物調製原材料への放射線照射に関する研究 —殺菌効果・色素抽出効率—

Studies on Irradiation of Ionizing Radiation in Raw Materials used to Prepare Existing Food Additives — Decontamination Effect • Extraction Efficiency of Pigment —

(2012年3月31日受理)

北島 葉子 高尾奈津子 橋本 香織 多田 幹郎
Yoko Kitajima Natuko Takao Kaori Hashimoto Mikiro Tada

Key words : 放射線殺菌, 既存添加物調製原材料, 色素抽出効率, ガンマー線照射, 電子線照射

抄 録

既存添加物調製原材料は、その目的成分が、熱、酸、アルカリ等に対して不安定であるため穏やかな条件で調製される。一方、それらの原材料には多数の微生物が付着している。従って、最終製品への微生物混入が避けがたく、そのため非加熱殺菌法として有用性が認められている放射線殺菌を施すことが望まれる。

また、放射線を照射すると、汚染微生物の低減のみならず、物理的・化学的作用によって、食材の加工適性や物性が改善されることが知られている。

そこで、本研究では既存添加物調製原材料（ベニバナ、エンジ虫）に、放射線（ガンマー線、電子線）を照射して殺菌効果を検証すると共に、エンジ虫に予め放射線を照射して色素抽出効率ならびに色素組成への影響を検討した。

その結果、ガンマー線照射では、ベニバナ、エンジ虫の両試料共、5kGy以上の照射で殺菌が可能であることが確認された。電子線照射では、ベニバナで5kGy以上の線量で殺菌が可能であることを確認した。エンジ虫では5kGy照射では汚染微生物の残存が認められたが、10kGyの線量で照射することにより殺菌が可能であることが確認された。したがって、食品衛生上問題となる病原菌や腐敗菌の殺滅には、5kGyのガンマー線照射が必要であることが明らかとなり、5kGy以上の線量によるガンマー線照射は殺菌効果があると結論づけられた。なお、電子線照射による殺菌効果については更なる検討が必要である。

また、試料への放射線照射によって色素抽出量が増大することが認められた。

コチニール色素を製造基準に準じて色素抽出（75℃）を行った場合、ガンマー線照射試料では、色素抽出量が24%、37%と増大が認められた。電子線照射試料の場合では、18%、21%と増大した。

続いて、コチニール色素を製造基準に則して色素抽出（85℃）を行った場合、ガンマー線および電子線照射試料共に非照射試料と比べて5kGyで約10%色素抽出量が増大したが、10kGy、30kGyでは低下傾向を示した。

これらの結果から、色素抽出効率に及ぼす温度の効果が顕著であることが明らかとなった。

なお、色素組成への影響については、照射試料からの抽出液の吸収スペクトルのパターンはいずれも非照射試料からの抽出液のスペクトルと同一であり、照射によって色素組成の変化や他の色素分子への影響は無いと推察された。しかし、高線量の照射で色素抽出量が低下した原因として、色素分子が無色の成分にまで分解される可能性も考えられることから、更に検討が必要である。

I はじめに

放射線による生物学的作用（致死作用、代謝攪乱作用）を利用して食品の衛生化（病原菌、寄生虫の殺滅）や保蔵性の延長（腐敗菌、食害昆虫の殺滅）、化学的作用（重合、分解）および物理的作用（高分子化合物の高次構造変化）による改質効果を期待して、食品・食品原材料に放射線照射する技術を「食品照射」といい、放射線照射した食品を「照射食品」という。

食品照射の利点は、食品衛生上問題となる病原菌や腐敗菌の大部分を死滅させる優れた殺菌能力を示すことが挙げられる。また、放射線照射による食品内部の温度上昇はわずかであり、食品の品質や成分の劣化（変質、香氣成分の揮散）に及ぼす影響がないため、加熱に制約のある食品に対して有効に適用できる。また、生鮮品、冷凍・冷蔵品の殺菌は、包装状態で殺菌処理を行うことが可能であるため微生物による再汚染を防ぐことができる。さらに、化学薬剤等を使用しない物理的処理であり、薬剤使用に対して認められる環境汚染や残留の問題もないため、例えば、オゾン層破壊につながる燻蒸剤（メチルプロマイド）の代替となり得る。このような食品照射の非加熱殺菌法としての有効性と有用性が認められ、多くの国々で実用化されている¹⁾。

日本においては、1967年に原子力委員会が「食品照射研究開発基本計画」を策定し、国家プロジェクトとして食品照射研究を開始した。その成果として、馬鈴薯の発芽防止を目的としたガンマー線照射が、1972年に食品衛生法に基づき許可がなされ、1974年に実用化された。しかし、その後、消費者団体の反対運動もあり、認可された食品はなく世界の流れから大きく遅れている。そのため、食品に放射線殺菌を施すことや照射食品・食材（原材料）あるいは添加物を日本に輸入することは禁止されている。

しかし、近年、病原性大腸菌（O-157）群、サルモネラ菌、黄色ブドウ球菌による食中毒事件が頻発し、食品業界ではHACCP等の食品製造の衛生管理に関する整備と規制化が加速された。さらに、食品衛生法では、「畜肉・魚肉加工品に使用する香辛料や乾燥野菜に付着している芽胞形成菌の数を1グラム当たり1000個以下にすること」と義務付けている。菌数低減を含めた品質要求が、製品

のみならず香辛料等の原料段階でも厳しくなっている。

一方、日本に輸入される香辛料や乾燥野菜等は化学薬剤使用の規制のため殺菌処理が施されておらず、1グラム当たり数十万～数百万個の微生物で汚染されている。そのため、多くの納入業者は製造過程において原材料に加熱殺菌を施しているが、香辛料や天然着色料では、加熱処理によって機能特性は著しく損なわれる。また、これらの天然由来の原材料には耐熱性の有芽胞細菌の混入が多く、適切な非加熱除菌法はないため、現在は製品の品質を犠牲にして加熱殺菌を行っている。なお、世界の諸国では、年間約40万t（2005年）の食品照射の処理が行われ、最も多くの国で実用化されている食品照射は香辛料や乾燥野菜の殺菌である。このように付着微生物数が高く、過熱殺菌法の適用の困難な食品・食品原材料については、放射線照射による衛生化が国際的に主流になりつつある。

これらの事情を背景として、長年、法の規制緩和に向けた取り組みが行われており、2000年には全日本スパイス協会が香辛料の微生物低減化を目的とした放射線照射の許可を求めた要請文を厚生労働省に提出している²⁾。しかし、法的許可と実用化が未だに行われていないのが現状である。

また、食品・食材に放射線を照射すると、微生物の殺菌が可能となり、腐敗や食中毒の危険性を軽減することができるだけでなく、食品・食材の加工適性や物性が改善されることも知られている。高原らは、予め放射線照射を施したブドウを使ってワインを醸造すると、アントシアニン色素の抽出効率が高まったと報告している³⁾。また、天草に放射線を照射すると寒天の収穫量が增大することや凝固剤としての性能が向上することが報告されている^{4) 5)}。

そこで、本研究では既存添加物調製原材料に対してガンマー線照射と電子線照射の2種の放射線で殺菌を施し、放射線照射による殺菌の効果を検証した。併せて、既存添加物調製原材料に予め放射線を照射して色素抽出効率ならびに色素組成への影響を検討した。

II 試料と方法

1) 試料

既存添加物調製原材料として、キク科ベニバナ（中国産）の乾燥花卉とカイガラムシ科エンジ虫（ペルー産）の乾燥物を用いた。両試料は三栄源エフ・エフ・アイ株式会社から供与を受けた。

2) 方法

(1) 放射線照射

ガンマー線照射は、独立行政法人農業・食品産業技術総合研究機構食品総合研究所の⁶⁰Coを線源として、3, 5, 10, 30kGyの線量を照射した。また、電子線照射は、原子燃料工業株式会社において高エネルギー電子線発生装置を線源として5, 10, 30kGyの線量を照射した。

(2) 放射線処理による殺菌効果の検証

非照射および照射試料を0.3g採取し、滅菌生理食塩水27mlとTween20（和光）（100倍希釈溶液）3mlを加えて120秒間、ストマッカーで処理した液を段階希釈した後、希釈溶液0.5mlを塗抹法により標準寒天培地上に接種して36°Cで24時間培養し、そのコロニー数を計測することにより殺菌効果を調べた。

(3) コチニール色素の色素抽出方法

コチニール色素の抽出方法は、食品添加物注解書に記載されている製造基準によると、85°Cで20分間攪拌抽出を行うと記載されている。まず、予備実験として食品添加物注解書に記載されている製造基準⁶⁾に準じて75°Cで色素抽出を行った。エンジ虫1g採取した後、75±3°Cの脱イオン水50mlを加えてウォーターバスシェーカー（40/min）で60分間攪拌抽出を行った。色素抽出量は製造基準に示されている20分間抽出毎の色素抽出液を0.1mol HCl水溶液で適宜希釈して、490nmの測定波長で吸光度を測定した。

次に、食品添加物注解書に記載されている製造基準に則して85°Cで色素抽出を行った。即ち、エンジ虫1g採取後、85±3°Cの脱イオン水50mlを加えてウォーターバスシェーカー（40/min）で20分間攪拌抽出を行った。その後、色素抽出液の吸光度を同様に測定した。

(4) 色素抽出効率の測定方法

色素抽出効率は、非照射試料から得られた色素抽出液の吸光度（原液濃度）を100として、照射試料との吸光

度比（%）で表した。

(5) 色素組成への影響

図1にコチニール色素分子（カルミン酸）の構造を示す。非照射試料および放射線照射試料から得られた色素抽出液は、色素組成あるいは色素分子の構造変化が生じることが予想される。色素組成が変化した場合、その吸収スペクトルに変化が生じる。

そこで、非照射および放射線照射（10kGy, 30kGy）試料から得たコチニール色素（75°C, 20分間抽出後）の吸収スペクトルのパターンを比較した。

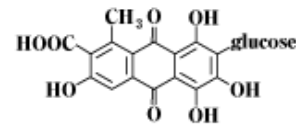


図1 コチニール色素（カルミン酸）の構造

IV 結果および考察

1) 放射線処理による殺菌効果の検証

既存添加物調製原材料の微生物汚染とガンマー線照射による殺菌効果を表1に示す。ベニバナ、エンジ虫は、いずれも3kGy照射により汚染微生物数を大幅に減少させることができた。また、5kGy照射では微生物が検出されなかった。

次に、既存添加物調製原材料の微生物汚染と電子線照射による殺菌効果を表2に示す。5kGyの線量で照射したベニバナでは微生物が検出されなかった。5kGy照射のエンジ虫では 1.5×10^2 コ/gの汚染微生物の残存が認められたが、10kGyの線量で照射することにより完全に殺滅できた。

したがって、ガンマー線照射試料では、5kGy以上の照射で殺菌が可能であることがわかった。しかし、5kGyの線量での電子線照射では、エンジ虫に汚染微生物の残存が認められた。林らは、香辛料に対する殺菌効果はガンマー線照射に比べて電子線照射では低くなると報告している。その原因として、電子線は線量率が高いために、過剰のラジカルを生成し、DNAと反応する以外にラジカルどおしが反応するために殺菌効果が低下すること、放射線による反応を触媒する酸素の供給が不足することで、殺菌効果が低下することを述べている⁷⁾。

このことから、電子線は粒子線であるため透過性が乏しいことや、エンジ虫は固い外皮に包まれているため深部まで、均一に十分な照射ができなかったことが原因であると推察された。したがって、放射線照射による殺菌を行う場合は、放射線照射を行う際の環境や試料の梱包状態に留意する必要があると考えられた。

表1 既存添加物調整原材料の微生物汚染とガンマー線照射による殺菌効果

	非照射	3kGy	5kGy	10kGy
ベニバナ	8.5×10^3	$< 10^2$	0	0
エンジ虫	2.1×10^5	8.1×10^3	0	0

表2 既存添加物調整原材料の微生物汚染と電子線照射による殺菌効果

	非照射	5kGy	10kGy	30kGy
ベニバナ	8.5×10^3	0	0	0
エンジ虫	2.1×10^5	1.5×10^2	0	0

2) コチニール色素の色素抽出効率

コチニール色素を食品添加物注解書に記載されている製造基準に準じて75℃で60分間色素抽出を行い、吸光度(色素抽出量)を20分間毎に測定した結果を図2, 図3に示す。ガンマー線および電子線照射試料共に色素抽出は、40分間抽出までは、ほぼ直線的な増加が認められた。また、ガンマー線照射試料の場合、製造基準に示されている20分間抽出後の非照射試料からの浸出液の吸光度9.3(100)に対して、10kGyで12.73(137), 5kGyで11.56(124), 30kGyで11.25(121)であり、電子線照射では、10kGyで11.26(121), 30kGyで10.94(118), 5kGyで10.42(112)と増大が認められ、ガンマー線照射試料および電子線照射試料共に10kGyの照射で最大値を示した。なお、その効果は電子線照射に比べて、ガンマー線照射で高いことが明らかになった。

次に、コチニール色素の食品添加物注解書に記載されている製造基準に則して、85℃で20分間抽出を行った結果を図4, 図5に示す。非照射試料からの色素抽出液の吸光度は、75℃で20分間色素抽出を行った値9.3の約2.5倍の値23.0であり、75℃で60分間抽出を行った場合と同程度の値を示した。また、ガンマー線照射試料の場合、色素抽出効率は非照射と比べると5kGyの照射で10%増大し

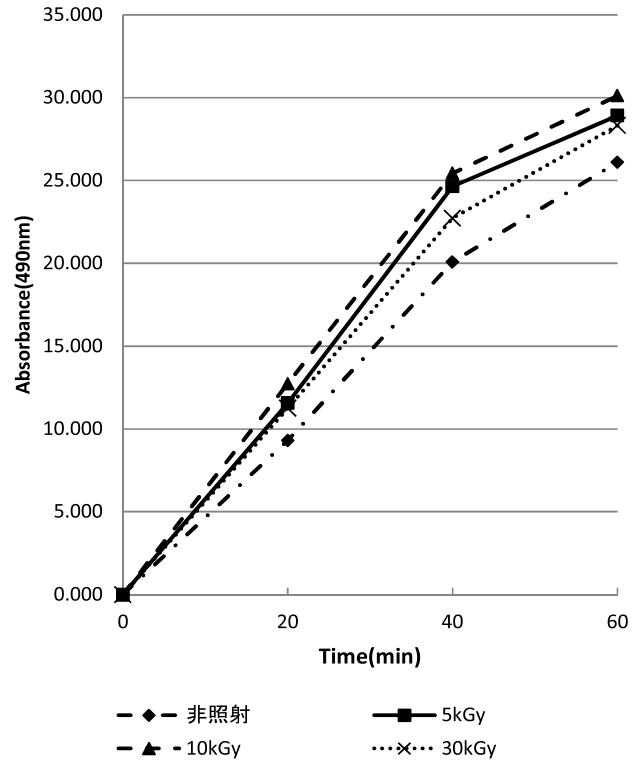


図2 ガンマー線照射試料からのコチニール色素抽出量と抽出時間の関係 (抽出温度: 75℃)

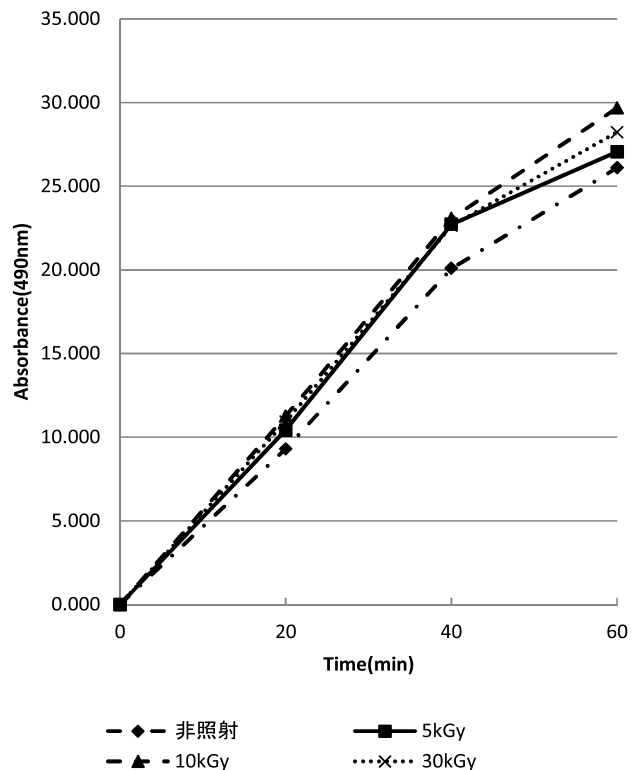


図3 電子線照射試料からのコチニール色素抽出量と抽出時間の関係 (抽出温度: 75℃)

たが、10kGyおよび30kGyの照射では、非照射と同様かもしくは減少することが認められた。また、これと同様に電子線照射試料では、5kGyの照射で7%の増大が認められたが、10kGyおよび30kGyの照射試料からの色素抽出効率は、非照射よりも低い値を示した。つまり、前述の予備実験結果の予測と異なり、色素抽出効率は、ガンマー線および電子線照射試料の場合、5kGyの照射で最大値を示した。5kGy以上の照射では、非照射と同様かもしくは減少することが認められた。これらの結果から、色素抽出効率に及ぼす温度の効果が顕著であることがわかった。また、5kGy以上の照射で色素抽出量が低下傾向を示した結果については、放射線照射試料と加熱による相乗的な作用によって、コチニール色素の分解が進行したことを予想させるが、この点については更に検討が必要である。また、コチニール色素は動物性のタンパク質（夾雑物）の混入が予想され、アレルギー源となる可能性が推測される⁸⁾。

今後は、色素抽出量に及ぼす放射線量、抽出温度の影響について検討が必要であると考えます。

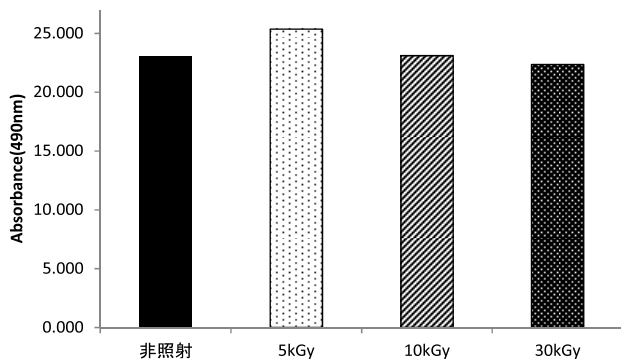


図4 ガンマー線照射試料からのコチニール色素抽出量 (85℃ 20分間抽出)

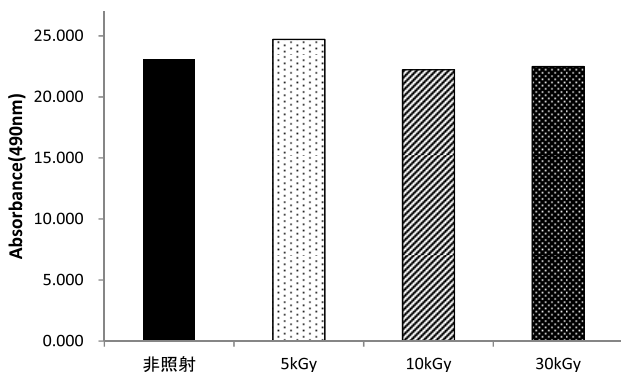


図5 電子線照射試料からのコチニール色素抽出量 (85℃ 20分間抽出)

3) 色素組成および色素構造への影響

図6に示すように照射 (10kGy, 30kGy) の有無による吸収スペクトルのパターンの変化は認められず、色素組成の変化や他の色素分子への変化は無いと推察された。しかし、高線量の照射で色素抽出量が低下した原因として、色素分子が無色の成分にまで分解される可能性も考えられることから、更に検討が必要である。

V ま と め

既存添加物調製原材料であるベニバナ花弁およびエンジ虫に3, 5, 10, 30kGyのガンマー線および, 5, 10, 30kGyの高エネルギー電子線を照射して, 放射線照射による殺菌の効果を検証した。併せて, コチニール色素の抽出効率ならびに色素組成への影響を検討して以下の結果を得た。

(1) ガンマー線照射では、ベニバナ、エンジ虫の両試料共、5kGy以上の照射で殺菌が可能であることが確認された。電子線照射では、ベニバナで5kGy以上の線量で殺菌が可能であることを確認した。エンジ虫では5kGy照射では汚染微生物の残存が認められたが、10kGyの線量で照射することにより殺菌が可能であることが確認された。したがって、食品衛生上問題となる病原菌や腐敗菌の殺滅には、5kGyのガンマー線照射が必要であることが明らかとなり、5kGy以上の線量によるガンマー線照射は殺菌効果があると結論づけられた。なお、電子線照射による殺菌効果については更なる検討が必要である。

(2) 試料への放射線照射によって色素抽出量が增大することが認められた。

コチニール色素を製造基準に準じて色素抽出 (75℃) を行った場合、ガンマー線照射試料では、色素抽出量が 24%、37%と増大が認められた。電子線照射試料の場合では、18%、21%と増大した。

続いて、コチニール色素を製造基準に則して色素抽出 (85℃) を行った場合、電子線およびガンマー線照射試料共に非照射試料と比べて5kGyで約10%色素抽出量が増大したが、10kGy, 30kGyでは低下傾向を示した。

これらの結果から、色素抽出効率に及ぼす温度の

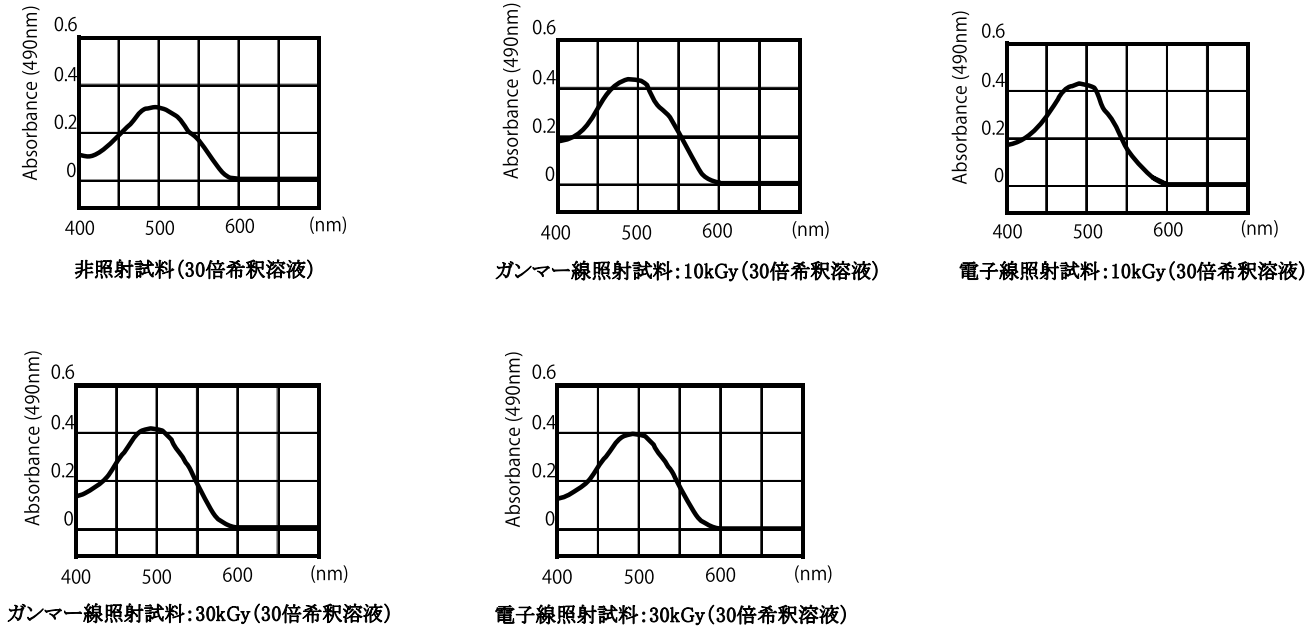


図6 コチニール色素抽出液の吸収スペクトル

効果が顕著であることが明らかとなった。

(3) 照射試料からの抽出液の吸収スペクトルのパターンはいずれも非照射試料からの抽出液のスペクトルと同一であり、照射によって色素組成の変化や他の色素分子への影響は無いと推察された。しかし、高線量の照射で色素抽出量が低下した原因として、色素分子が無色の成分にまで分解される可能性も考えられることから、更に検討が必要である。

VI 謝 辞

本研究を遂行するにあたり、実験試料をご提供頂きました三栄源エフ・エフ・アイ株式会社の東村豊氏、伊藤澄夫氏に深謝いたします。また、ガンマ線照射の実施を快く引き受けてくださった独立行政法人農業・食品産業技術総合研究機構食品総合研究所の等々力節子氏、電子線照射の実施を快く引き受けてくださった原子燃料工業株式会社の武川哲也氏には、ここに深く感謝いたします。

VII 参 考 文 献

1) 全日本スパイス協会 (2000), 香辛料の微生物汚染

の低減化を目的とする放射線照射の許可の要請に係わる添付資料

2) 多田幹郎 (2002), 放射線照射による天然食品添加物の衛生化, FFI Journal 205, 32-34

3) 高原康生, 安井孝, 後藤 (山本) 奈美, 鈴木崇, 戸塚昭 (1994) γ 線照射ブドウを用いた赤ワイン醸造における色素の抽出, 醸協89, 831 - 3

4) 松橋鉄治郎, 伊藤均 (1986), ガンマ線照射した海藻からのカラギーナン: その抽出工程の改善, 食品照射21, 43-49

5) 松橋信平 (1997), 海藻抽出成分の改質, 放射線利用技術データベース020025

6) 日本食品添加物協会 (2007), 第8版食品添加物公定書厚生労働省復刻版, p. 351, 591. 日本食品添加物協会, 東京

7) 林徹, Mamun, 等々力節子 (1993), 香辛料の殺菌技術としての電子線照射とガンマ線照射の比較. 食総研報57, 1 - 6

8) 市川まりこ (2010), 食品照射のリスクコミュニケーション食品照射の体験実験レポート. 放射線と産業 125, 16 - 20