

방사선 조사된 수입 참깨, 들깨의 광여기 발광

이상덕 · 우시호 · 양재승
 한국원자력연구소 조사식품검지실

Pulsed Photostimulated Luminescence (PPSL) of Irradiated Importation Sesame and Perilla Seeds

Sang-Duk Yi, Si-Ho Woo and Jae-Seung Yang

Detection Lab. of Irradiated Food, Korea Atomic Energy Research Institute

A study was carried out to establish a detection method for imported sesame and perilla seeds using pulsed photostimulated luminescence (PPSL) whether they have been irradiated or not. Samples were packed in polyethylene bags and irradiated at 1, 5, and 10 kGy with a dose rate of 10 kGy/h. The whole sample of sesame and perilla and the minerals separated from seeds were introduced in the sample chamber and measured PPSL photon counts for 60 and 120 s. The PPSL photon counts of samples increased with increasing irradiation dose and showed a higher correlation coefficients in separated minerals than in sesame and perilla seeds themselves. These results suggest that imported sesame and perilla seeds be possibly detected by both their whole sample and separated minerals by PPSL measurements.

Key words : Pulsed photostimulated luminescence (PPSL), detection, gamma irradiation, sesame and perilla seeds

서 론

광여기발광(optically stimulated luminescence; OSL)은 광물질에 축적된 선량을 확인하여 고고학적 연대측정의 기술로의 응용성이 인정된 이후⁽¹⁾, 530~1030 nm 파장대의 적외선으로 장석을 자극하였을 때 몇 개의 피크가 확인되면서 그 중요성이 인식되었다^(2,3). 이후 많은 연구들은 이 기술을 연대측정을 위한 한 방법으로 확립하기 위하여 이루어져 왔으며⁽⁴⁻¹²⁾, Sanderson 등⁽¹³⁻¹⁴⁾에 의해서 처음으로 방사선 조사된 향신료와 조미료의 조사여부를 확인하기 위한 방법으로써 적용이 검토되었다. 대부분의 식품들은 방사선에 노출되었을 때 식품을 이루는 분자구조에 또는 혼입된 불순물 즉, 광물질 등에 전자를 포획하는 형태로 에너지를 저장하게 된다⁽¹⁵⁾. 이때 방사선 조사된 식품에 전자기적으로 발생된 적외선을 조사하게 되면 식품내부에 포획된 저장에너지가 빛의 형태로 방출되게 된다⁽¹⁶⁾. 이러한 방사 특이적인 성질을 이용한 방법이 광여기발광법이며, 이 현상은 거의 모든 방사선 조사식품에서 발생된다^(13-14, 16-20).

또한 광여기발광법은 다른 검지법에 비하여 실험장비의 가격이 비교적 싸고, 측정시간이 60에서 120초 정도로 짧으며, 측정방법이 간단하기 때문에 초보자들도 쉽게 실험을 할 수 있는 장점으로 인하여 조사식품의 검역시에 가장 현장적용 가능성이 높은 검지기술이다⁽¹⁵⁻¹⁶⁾. 이전의 광여기발광에 의한 검지연구는 향신료와 새우⁽¹⁶⁾, 감자와 건조오징어⁽¹⁷⁾, 백삼분말⁽¹⁸⁾, 국내산 참깨와 들깨⁽¹⁹⁾, 전분, 곡류, 콩류, 밀 등⁽²⁰⁾에 대하여 수행되었으며, 모든 연구 결과에서 방사선 조사식품이 비조사식품에 비하여 높은 광여기발광을 보여 조사식품의 조사여부 확인을 위한 검지법으로써 그 적용이 가능함을 인정받았다.

따라서, 본 연구는 이전의 연구에서 검토되지 않은 중국산 참깨와 들깨, 수단산 참깨의 광여기발광을 검토하여 수입 참깨와 들깨의 조사 여부의 확인이 가능한지를 알아보았다.

재료 및 방법

재료 및 방사선조사

본 실험에 사용된 중국산 참깨와 들깨, 수단산 참깨는 농수산물유통공사에서 확인된 것으로 구입하였다. 방사선 조사를 위해 시료를 polyethylene film으로 포장하였고, 한국원자력연구소 내 Co-60 조사시설(AECL, Canada)을 이용하여 1, 5 및 10 kGy로 조사하였다. 이때 흡수선량확인은 ceric-cerous dosimeter를 사용하였고 총 흡수선량 오차는 ±0.2 kGy이었다.

Corresponding author : Jae-Seung Yang, Detection Laboratory of Irradiated Food, Korea Atomic Energy Research Institute Taejon 305-353, Korea
 Tel : 82-42-868-8064
 Fax : 82-42-868-8064
 E-mail : jsyang@nanum.kaeri.re.kr

광물질의 분리

광물질의 분리는 “European Committee for standard”에서 제정한 방법에 따라 분리하였다. 시료 100 g에 중류수 1000 mL를 가하고 이 혼합물을 초음파세척기로 5분 처리하고, 교반기(PC-420, Corning, USA)로 5분간 교반하여 부착된 광물질을 분리하였다. 이것을 nylon cloth(125 μm)로 여과한 후, 그 여액을 10분 동안 정 치하였다. 정 치 후에 상층액을 제거하였고 침전물을 Pasteur 피펫으로 15 mL 원심분리 용기로 옮겨서 원심분리(4,000×g, 4 min)한 후 다시 상층액을 제거하였다. 계속하여 sodium polytungstate 용액(2 g/mL) 5 mL를 가하여 Vortex 믹서(M37615, ThermoLyne, USA)로 1분간 교반하고, 초음파로 3분간 처리한 후 원심분리(4,000×g, 4 min)를 하여 광물질을 분리하였다. 부유물과 sodium polytungstate 용액을 제거하고 남아있는 광물질을 중류수로 2회 세척하였다. 이 광물질에 1 M HCl 2 mL를 가하고 10분간 정 치하여 광물질에 붙어있는 유기물을 제거한 후, 1 M 수산화 암모늄(NH₄OH) 2 mL를 가하여 5분간 중화시킨 다음 원심분리(4,000×g, 4 min)를 하여 상층액을 제거하였다. 이 광물질을 중류수로 2회 세척하고 중류수를 제거하였다. 광물질에 남아 있는 소량의 중류수를 제거하기 위해 아세톤 3 mL을 가하여 중류수를 아세톤으로 치환하였고, 이 과정을 2회 반복하였다. 잔존하는 아세톤을 완전히 건조시켜서 PPSL 측정용 광물질로 사용하였다⁽²¹⁾.

광여기 발광의 측정

PPSL 장치(serial; 0021, SURRC; Scottish Universities Research and Reactor Center, UK)는 컴퓨터, sample chamber, detector, 적외선 발광 diode가 내재되어 있는 적외선 발광장치 등으로 구성되어 있다. 시료로부터 광자극되어 발생되는 빛은 광증폭기를 통하여 증폭된 후에 1초당 방출된 빛의 양이 모두 누계로서 합산된 photon count로서 환산되어 자동적으로 기록되었다. 측정시료는 직경이 50 mm인 petri dish(Bibby Sterilin type 122)에 담겨진 후에 60초와 120초 동안 측정되었다⁽²²⁾. 이때의 cycle time은 1초, dark count는 25, PMT noise는 27이었고 측정된 시료의 양은 참깨 와 들깨 자체는 5 g, 분리된 광물질은 1 mg이었다.

통계분석

모든 실험은 3회 반복되었으며 통계분석은 SPSS(statistical package for social science, version 7.5)를 이용하여 Duncan의 다중검정법으로 통계적 유의성을 검정하였다($p<0.05$).

결과 및 고찰

Whole sample의 photon count

수입 참깨와 들깨 자체를 사용하여 60초와 120초 동안 측정된 photon count는 Table 1 및 Fig. 1과 같다. 측정시간이

Table 1. The changes of accumulated photon counts of imported perilla and sesame seeds measured by PPSL during 60 and 120 s
(Unit: photon counts)

Origin	Sample	Measurement time (s)	Irradiation dose (kGy)			
			0	1	5	10
Chinese	Sesame seeds	60	732 ^a ±167	105,178 ^b ±17,941	165,543 ^c ±24,539	158,744 ^c ±8,857
		120	1,111 ^a ±241	168,382 ^b ±31,375	251,569 ^c ±33,392	245,914 ^c ±12,104
	Perilla seeds	60	9,260 ^a ±2,312	432,926 ^b ±1,976	774,339 ^b ±33,997	1,169,025 ^d ±145,113
		120	15,053 ^a ±3,644	704,979 ^b ±25,680	1,231,538 ^b ±51,321	1,802,913 ^d ±237,814
Sudan	Sesame seeds	60	248 ^a ±64	56,321 ^b ±6,288	108,117 ^c ±14,429	104,732 ^c ±5,120
		120	204 ^a ±102	89,665 ^b ±8,490	170,574 ^c ±23,601	163,413 ^c ±17,542

^{a-d}Means with the same superscripts in each row are not significantly different among group by Duncan's multiple range test in one way ANOVA ($p<0.05$)

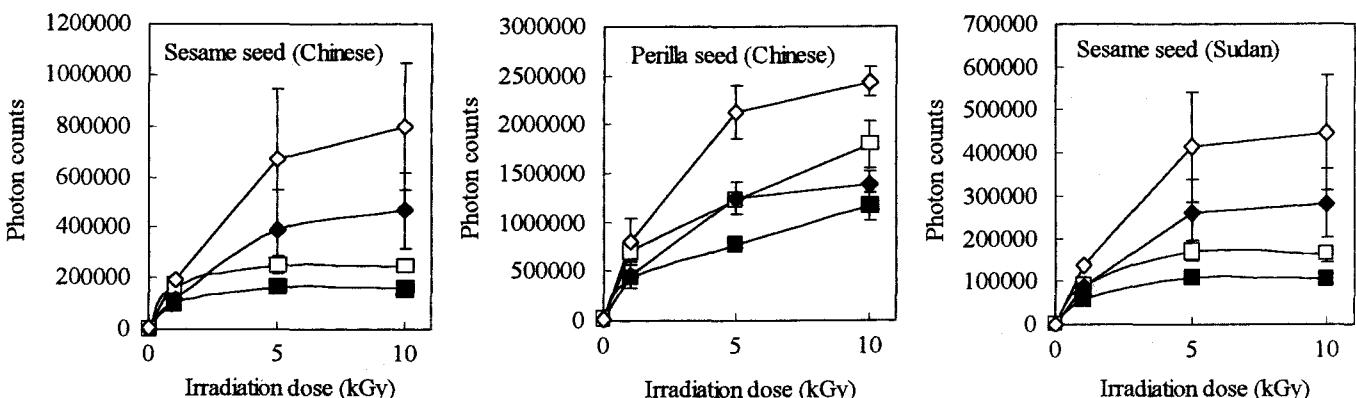


Fig. 1. The differences of accumulated photon counts of imported perilla and sesame seeds, and separated minerals measured by PPSL during the 60 and 120 s

■ - ■ Whole sample, 60s □ - □ Whole sample, 120s ◆ - ◆ Mineral, 60s ◇ - ◇ Mineral, 120s

Table 2. The changes of accumulated photon counts of minerals separated from imported perilla and sesame seeds measured by PPSL during 60 and 120 s
(Unit: photon counts)

Origin	Sample	Measurement time (s)	Irradiation dose (kGy)			
			0	1	5	10
Chinese	Sesame seeds	60	2,405 ^a ±101	113,741 ^b ±6,097	388,703 ^c ±161,168	467,192 ^d ±148,982
		120	4,372 ^a ±370	195,939 ^b ±4,669	669,008 ^c ±276,195	800,168 ^d ±249,643
	Perilla seeds	60	12,916 ^a ±6,711	464,581 ^b ±139,992	1,252,409 ^c ±168,835	1,387,895 ^d ±143,242
		120	22,996 ^a ±12,186	802,410 ^b ±233,277	2,126,406 ^c ±267,864	2,438,838 ^d ±148,780
Sudan	Sesame seeds	60	554 ^a ±108	85,313 ^b ±1,847	258,778 ^c ±81,060	282,930 ^d ±81,484
		120	828 ^a ±148	138,235 ^b ±4,952	413,577 ^c ±128,753	447,201 ^d ±133,390

^{a-d}Means with the same superscripts in each row are not significantly different among group by Duncan's multiple range test in one way ANOVA ($p<0.05$)

Table 3. Correlation equations and coefficients between irradiation doses and photon counts of imported perilla and sesame seeds measured by PPSL during the 60 and 120 s

Origin	Sample	Measurement time (s)	Correlation equations and coefficients	
			From control to 5 kGy	From control to 10 kGy
Chinese	Sesame seeds	60	$y = 27856x + 34772 R^2 = 0.7813$	$y = 12896x + 55966 R^2 = 0.5926$
		120	$y = 41722x + 56911 R^2 = 0.7488$	$y = 19636x + 88198 R^2 = 0.5845$
	Perilla seeds	60	$y = 19110x + 16676 R^2 = 0.8783$	$y = 9138x + 30802 R^2 = 0.6738$
		120	$y = 30118x + 26579 R^2 = 0.8743$	$y = 14213x + 49110 R^2 = 0.8516$
Sudan	Sesame seeds	60	$y = 133684x + 138141 R^2 = 0.8516$	$y = 104075x + 180086 R^2 = 0.9187$
		120	$y = 211395x + 227732 R^2 = 0.8405$	$y = 159256x + 301596 R^2 = 0.9035$

x: irradiation dose (kGy), y: photon counts

증가할수록 photon count도 증가하는 경향을 보였으며, 모든 수입 참깨 및 들깨의 photon count는 5 kGy까지는 방사선 조사선량이 증가함에 따라 증가하는 경향을 보여 주었으나 10 kGy에서는 5 kGy에서와 비슷하거나 약간 높은 photon count를 보였다. 모든 시험구에서 5 kGy와 10 kGy에서의 photon count가 비슷하거나 약간 높은 이유는 방사선 조사에 의해서 시료에 포획되는 적외선 자극에 의해 방출 가능한 에너지가 5 kGy에서부터 시료 내부에 포화되어 더 많은 양의 방사선을 조사하여도 포획에너지가 증가하지 않기 때문에 적외선에 의해 자극되어 방출되는 빛의 양이 비슷하거나 약간 높은 것으로 생각된다. 중국산 참깨와 수단산 참깨간의 photon count는 유의적인 차이를 보이지 않았지만, 중국산 들깨는 상대적으로 참깨와 비교하여 높은 photon count를 보였다. 모든 시험구에서 비조사구보다 조사구에서 높은 photon count를 보여 수입산 참깨와 들깨의 조사여부의 판별이 가능하였다. 이전의 PPSL에 대한 연구는 많은 연구자들에 의해서 방사선 조사된 향신료와 새우⁽¹⁶⁾, 감자와 건조오징어⁽¹⁸⁾, 백삼분말⁽¹⁹⁾, 국내산 참깨, 들깨, 전분, 곡류, 콩류, 밀 등⁽²¹⁾에 대해 수행되었으며, photon count가 비조사구에서 보다 조사구에서 높았고 조사선량이 증가할수록 증가하였다는 보고들은 본 실험의 결과와 일치하는 경향을 보여주었다.

분리 광물질의 photon count

중국산 참깨와 들깨, 수단산 참깨로부터 분리된 광물질의 측정시간과 조사선량에 따른 photon count의 변화는 Table 2

와 같다. 측정시간이 길수록 photon count는 증가하였으며, 모든 시험구에서 비조사구에서 보다 조사구에서 더 높은 photon count를 보였다. 비조사구에서부터 5 kGy까지의 photon count는 직선적인 증가를 보였지만 5 kGy부터 10 kGy까지는 완만한 증가를 보여 참깨와 들깨 자체로 측정된 결과와 유사한 경향을 보여 주었다. 그리고 참깨와 들깨 자체로 측정된(5 g) photon count와 분리된 광물질(1 mg)로부터 측정된 photon count가 사용된 시료의 양은 큰 차이가 있음에도 불구하고 서로 비슷한 photon count를 보여 참깨와 들깨 자체보다도 그 중에 혼입되어 있는 광물질에 적외선에 의해 자극되어 방출될 수 있는 포획에너지가 더 많이 존재함을 알 수 있고 참깨와 들깨 자체로 측정한 시험구에서의 photon count는 참깨성분 자체와 혼입된 광물질 둘 다에서 방사되는 빛 에너지 임을 확인할 수 있었다.

이전의 연구에서 국내산 참깨와 들깨로부터 분리된 광물질의 photon count 역시 측정시간이 증가할수록 증가하였고, 방사선 조사선량이 증가할수록 5 kGy까지는 급격히 증가하다가 5 kGy에서 10 kGy까지는 비슷하거나 완만한 증가를 보였는데 이러한 경향은 수입 참깨와 들깨에서도 유사하게 나타났다. 그러나 분리된 광물질의 120초 동안 측정된 photon count는 국내산 참깨가 control이 13,981 1 kGy가 1,562,927 5 kGy가 2,840,431 10 kGy가 1,439,354 들깨가 control이 5,056 1 kGy가 997,768 5 kGy가 2,842,091 10 kGy가 1,929,297을 보여서 수입산 참깨와 들깨와 비교하였을 때 두 배정도 높은 photon count를 보였다. 이러한 차이는 수입국

Table 4. Correlation equations and coefficients between irradiation doses and photon counts of mineral separated from imported perilla and sesame seeds measured by PPSL during the 60 and 120 s

Origin	Sample	Measurement time (s)	Correlation equations and coefficients	
			From control to 5 kGy	From control to 10 kGy
Chinese	Sesame seeds	60	$y = 74826x + 18632 R^2 = 0.9913$	$y = 45823x + 59719 R^2 = 0.8911$
		120	$y = 128739x + 32295 R^2 = 0.9913$	$y = 78463x + 103519 R^2 = 0.8888$
	Perilla seeds	60	$y = 49280x + 16323 R^2 = 0.9812$	$y = 27390x + 47332 R^2 = 0.8331$
		120	$y = 78632x + 26950 R^2 = 0.9797$	$y = 43206x + 77137 R^2 = 0.8254$
Sudan	Sesame seeds	60	$y = 233344x + 109946 R^2 = 0.9686$	$y = 131200x + 254652 R^2 = 0.8334$
		120	$y = 395059x + 193819 R^2 = 0.9661$	$y = 230004x + 427647 R^2 = 0.8521$

x: irradiation dose (kGy), y: photon counts

의 토양을 구성하는 광물질의 조성의 차이에 의하여 기인된 것으로 생각된다.

상관식과 상관계수

수입 참깨 및 들깨 자체로 측정된 photon count의 조사선량에 따른 상관계수는 Table 3과 같다. 모든 시험구에서 측정시간에 따른 상관계수의 차이는 없었지만, 시료간의 차이는 인정되었다. 120초 동안 측정된 중국산 참깨와 들깨의 비조사구에서부터 5 kGy까지의 상관계수는 각각 0.7488와 0.8743이었고 비조사구에서부터 10 kGy까지는 0.5845, 0.8516를 보여 5 kGy까지에서 약간 더 높은 상관성을 보였고, 수단산 참깨에서는 반대의 경향을 보여주었다(Table 3). 수입 참깨 및 들깨로부터 분리된 광물질에서 측정된 photon count의 조사선량과 시료간의 상관식과 상관계수는 Table 4와 같다. 측정시간에 따른 상관계수의 차이는 역시 보이지 않았지만 시료와 조사선량에 따른 차이는 인정되었다. 120초 동안 측정된 photon count의 비조사구에서부터 5 kGy까지의 회귀계수는 각각 0.9913, 0.9797, 0.9661이었고 비조사구에서부터 10 kGy까지는 0.8888, 0.8254, 0.8521를 보여 비조사구에서부터 5 kGy까지에서 더 높은 상관성을 보여주었다. 또한 참깨와 들깨 자체로 측정된 시험구(Table 1)에서 보다 분리된 광물질로 측정된 시험구(Table 4)에서 더 높은 상관성을 보여 주었다. 따라서 whole sample 자체의 측정에 의해서도 조사여부의 판단은 가능하였지만 광물질을 분리하여 실험다면 조사여부에 대한 2차적인 확인을 하는 다중검지의 개념이 성립될 수 있고, 더 정확한 검지가 가능할 것으로 생각된다.

요약

본 연구는 PPSL를 이용하여 수입 참깨와 들깨의 방사선조사여부가 확인이 가능한지를 알아보기 위하여 수행되었다. 측정시간이 증가할수록 photon count도 증가하는 경향을 보였으며, 모든 수입 참깨 및 들깨와 여기에서 분리된 광물질의 photon count는 방사선 조사선량이 증가함에 따라 증가하는 경향을 보여 주었으나 10 kGy에서는 5 kGy에서와 비슷하거나 약간 높은 photon count를 보였다. 참깨와 들깨(5 g) 자체와 분리된 광물질(1 mg)로부터 측정된 photon count는 모두 비슷한 수치를 보여 광물질에서 더 높은 photon count

가 발생됨을 알 수 있었다. 또한 참깨, 들깨 자체로 측정된 시험구 보다 분리된 광물질에 대한 시험구에서 더 높은 상관성을 보여 주었다. 따라서 PPSL 측정시 참깨 및 들깨 자체를 사용하거나 분리된 광물질을 사용하여도 조사여부의 확인이 가능하였다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부에서 주관하는 원자력연구개발사업의 지원으로 수행되었습니다. 이에 감사드립니다.

문헌

- Bulur, E. and Göksu, H.Y. Pulsed optically stimulated luminescence from $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ using green light emitting diodes. Radiat. Meas. 27: 479-488 (1997)
- Barnett, S.M. and Bailiff, I.K. Infrared stimulation spectra of sediments containing feldspars. Radiat. Meas. 27: 237-242 (1997)
- Duller, G.A.T. and BØtter-Jensen, L. Optically stimulated luminescence emission spectra from feldspars as a function of sample temperature. Radiat. Meas. 27: 145-151 (1997)
- Sanderson, D.C.W. and Clark, R.J. Pulsed photostimulated luminescence of alkali feldspars. Radiat. Meas. 23: 633-639 (1994)
- Wintle, A.G. and Murray, A.S. The relationship between quartz thermoluminescence, photo-transferred thermoluminescence, and optically stimulated luminescence. Radiat. Meas. 27: 611-624 (1997)
- Bulur, E. and Göksu, H.Y. Infrared (IR) stimulated luminescence from feldspars with linearly increasing excitation light intensity. Radiat. Meas. 30: 505-512 (1999)
- Clarke, M.L. and Rendell, H.M. Infra-red stimulated luminescence spectra of alkali feldspars. Radiat. Meas. 27: 221-236 (1997)
- Rieser, U., Hutt, G., Krötschek, M.R. and Stolz, W. Feldspar IRSL emission spectra at high and low temperatures. Radiat. Meas. 27: 273-278 (1997)
- Bailiff, I.K. and Barnett, S.M. Characteristics of infra-red stimulated luminescence from a feldspar at low temperatures. Radiat. Meas. 23: 541-545 (1994)
- Wintle, A.G. Infra-red stimulated luminescence dating of sediments. Radiat. Meas. 23: 607-612 (1994)
- Spooner, N.A. The anomalous fading of infra-red stimulated luminescence from feldspars. Radiat. Meas. 23: 625-632 (1994)
- Clark, R.J. and Sanderson, D.C.W. Photostimulated luminescence excitation spectroscopy of feldspars and micas. Radiat. Meas. 23: 641-646 (1994)
- Sanderson, D.C.W., Carmichael, L.A., Riain, S.N., Naylor, J.,

- Spencer, J.Q. Luminescence studies to identify irradiated food. *Food Science and Technology Today.* 8: 93-95 (1994)
14. Sanderson, D.C.W., Carmichael, L.A., Spencer, J.Q. and Naylor, J.D. Luminescence detection of shellfish. pp. 139-148 In: *Detection Methods for Irradiated Foods.* McMurray, C.H., Stewart, E.M., Gray, R. and Pearce, J. (eds.). The Royal Society of Chemistry, Cambridge, UK (1996)
15. Schreiber, G.A. Thermoluminescence and photostimulated luminescence techniques to indentify irradiated foods. pp. 121-123 In: *Detection Methods for Irradiated Foods.* McMurray, C.H., Stewart, E.M., Gray, R. and Pearce, J. (eds.). The Royal Society of Chemistry, Cambridge, UK (1996)
16. Sanderson, D.C.W., Carmichael, L.A. and Naylor, J.D. Recent advances in thermoluminescence and photostimulated luminescence detection methods for irradiated foods. pp. 125-138 In: *Detection Methods for Irradiated Foods.* McMurray, C.H., Stewart, E.M., Gray, R. and Pearce, J. (eds.). The Royal Society of Chemistry, Cambridge, UK (1996)
17. Hwang, K.T., Uhm, T.B., Wagner, U. and Schreiber, G.A. Application of photostimulated luminescence to detection of irradiated foods. *Korean J. Food Sci. Technol.* 30: 498-501 (1998)
18. Chung, H.W., Delincee, H. and Kwon, J.H. Photostimulated luminescence-thermoluminescence application to detection of irradiated white ginseng powder. *Korean J. Food Sci. Technol.* 32: 265-270 (2000)
19. Yi, S.D., Woo, S.H. and Yang, J.S. The use of pulsed photostimulated luminescence(PPSL) and thermoluminescence(TL) for the detection of irradiated perilla and sesame seeds. *J. Food Sci. Nutr.* 5: 142-147 (2000)
20. Yi, S.D. and Yang, J.S. The application of a pulsed photostimulated luminescence(PPSL) method for the detection of irradiated foodstuffs. *J. Food Sci. Nutr.* 5: 136-141 (2000)
21. European Committee for standard. Detection of irradiated food from which silicate minerals can be isolated-Method by thermoluminescence. English version of prEN 1788. (1997)
22. European Committee for standard. Detection of irradiated food using photostimulated luminescence. English version of prEN 13751 (1997)

(2001년 1월 8일 접수)