

조사처리한 건조수산물의 전처리 방법에 따른 Luminescence 판별 특성

김문영^{1,2} · 안재준¹ · 김귀란¹ · 곽지영^{1,3} · 박건상³ · 이경진³ · 권중호^{1†}

¹경북대학교 식품공학과

²SPC 식품안전센터

³식품의약품안전처

Luminescence Identification Characteristics for Irradiated Dried Fishery Products

Moon-Young Kim^{1,2}, Jae-Jun Ahn¹, Gui-Ran Kim¹, Ji-Young Kwak^{1,3},
Kun-Sang Park³, Kyung-Jin Lee³, and Joong-Ho Kwon^{1†}

¹School of Food Science and Technology, Kyungpook National University, Daegu 702-701, Korea

²Food Safety Center, SPC Company, Seoul 137-887, Korea

³Ministry of Food and Drug Safety, Chungbuk 396-700, Korea

ABSTRACT Photostimulated luminescence (PSL) and thermoluminescence (TL) analyses were conducted for the detection of different gamma-irradiated dried fishes (mussel, squid, beka squid, mitra squid, plaice, and saury) at 0, 1, 5 and 10 kGy. For TL analysis, the contaminating silicate minerals were obtained by density separation or acid hydrolysis treatment. PSL determinations indicated that all the non-irradiated samples showed PSL photon counts/60 s (PCs) lower than 700 PCs (negative), but the irradiated mussel sample at 5 and 10 kGy were only possibility identified showing higher than 5000 PCs (positive). Irrespective of sample kinds and methods of mineral separation, all the non-irradiated samples showed TL glow curves in low-intensity with a maximum peak only after 250°C. However, all the irradiated samples produced TL glow curves in high intensity with a maximum peak particularly in the temperature range of 150~250°C. In conclusion, more distinguishable TL results [glow curve, TL ratio (TL₁/TL₂)] were obtained from the marker minerals separated by acid hydrolysis rather than density method.

Key words: dried fishery products, acid hydrolysis, density separation, irradiation, luminescence identification

서 론

최근 수산물 교역량이 증가함에 따라 건조수산품 수출검사 및 위생안전성 확보의 중요성이 증가하고 있다(1). 수산물의 주요 수입국은 주로 중국, 일본, 베트남 등이며 국립수산물품질관리원에서는 수출입 수산물의 안전성 검사를 실시하여 제품별, 용도별 및 국가별로 검사관리를 실시하고 있다(2). 현행 식품공전의 건어류의 품질기준은 고유의 색택과 향미를 가지고 이미·이취가 없어야 하고, 건어포류의 경우는 수분함량이 20% 이하, 조미건포류는 28% 이하이며, 이산화황 0.03 g/kg 이하, 미생물 규격은 대장균군이 음성(3)으로 명시하고 있다.

건조수산품의 살균방법으로는 건조방법과 화학처리법 등이 이용되고 있으며 최근 화학 훈증제에 대한 사용금지와 잔류기준이 엄격해짐에 따라 조사처리가 대체기술로 대두되고 있다(4,5). 또한 식품조사기술은 농수축산물이나 가공

식품에 cobalt-60(Co-60), cesium-137(Cs-137) 등 방사성 동위원소에서 방출되는 감마선을 씨면 DNA 합성 등 살아있는 세포의 작용을 억제, 식중독균 등 유해 미생물과 해충을 살균·살충하고 발아·숙성을 정체시켜 저장성을 높여 준다(6). 지금까지 사용되어 온 화학약제(훈증제, 살균제, 농약 등)와 열처리 등의 대안으로서 그 효과와 타당성이 인정되어 50여 개국에서 이용이 허가되어 있다(7). 또한 감마선은 열을 수반하지 않는 비열처리로서, 투과력이 강해 완전포장 상태의 식품도 처리할 수 있는 장점이 있다(8). 현재 한국을 포함한 세계 50여 개국에서 250여종의 식품에 대하여 사용이 허가되어 있으며(9), 국내에서는 26개 품목에 대하여 방사선 조사가 허가되어 있다. 또한 식품의 조사여부를 확인하는 방법으로서, 광자극발광분석법(photostimulated luminescence, PSL), 열발광분석법(thermoluminescence, TL), 전자스핀공명법(electron spin resonance spectroscopy, ESR), GC-MS 분석법(gas chromatography/mass spectroscopy) 등이 고시되어 있다(10). 건조수산품에 대한 방사선 조사는 현재 16개국에서 허가되어 있으며, 국내에서는 건어류 분말의 위생화 처리를 위해 최대 7 kGy 이하

Received 3 June 2013; Accepted 3 July 2013

*Corresponding author.

E-mail: jhkwon@knu.ac.kr, Phone: 82-53-950-5775

의 감마선 조사가 허가되어 있다(11). 건조수산품의 경우 TL 방법 이용 시 뼈 및 유기성분에 의하여 거짓양성의 결과를 발생시킬 수 있으므로, 현행 방법(비중분리법)을 보완한 객관적인 판정을 위한 방법이 요구되고 있다(12,13).

본 연구는 건조수산품의 조사여부 확인방법으로서 PSL 방법과 TL 방법에서 비중분리법(density separation, DS)과 산가수분해법(acid hydrolysis, AH) 등 전처리 방법에 따른 결과를 비교·분석하여 정확하고 신속하며 재현성이 높은 조사식품 확인시험법을 확립하고 이에 대한 기술 자료를 검증하고자 하였다.

재료 및 방법

실험재료

대구 서문시장에서 판매되는 오징어, 한치, 꿀뚜기, 홍합, 가자미, 꽁치 6종을 선택하였다. 시료는 모두 건조된 형태로서 절단되지 않은 원형의 상태로 구입하였다. 시료는 일정량으로 세절한 후, 폴리에틸렌 포장용기에 담아 조사하여 실험에 이용하였다.

감마선 조사

건조수산품 6종의 감마선 조사는 첨단방사선과학연구소의 Co-60 감마선 조사시설(100 kCi point source, AECL, IR-79, MDS Nordion International Co. Ltd., Ottawa, Canada)을 이용하여 실온에서 시간당 일정한 선량률로 0, 1, 5, 10 kGy의 총 흡수선량을 얻도록 하였다. 이때 흡수선량은 ceric/cerous dosimeter를 사용하였다. TL normalization을 위한 재조사(re-irradiation)는 동일한 조사시설을 이용하여 1 kGy의 흡수선량을 얻도록 하였다.

광자극발광(PSL) 분석

PSL 측정방법은 방사선 조사에 의하여 흡수된 에너지를 적외선으로 자극하여 발산되는 광자를 계측하는 방법이다(14). PSL 측정에 사용되는 시료는 빛에 대한 노출을 최대한으로 줄이고 교차오염을 피하면서 1회용 페트리디시(Φ 50 mm)에 시료를 약 7~10 g 고르게 펼쳐 담은 후 PSL system(pulsed PSL irradiated food screening system, SURRC, Scotland, UK)의 시료 챔버에 넣고 PSL photon count를 측정하였다. 방사선이 조사된 표준물질(파프리카 분말)과 조사되지 않은 표준물질을 사용하여 기기의 상태 및 측정 조건을 확인한 후 공 페트리디시로 기기의 오염 여부를 확인한 다음 시료당 2회 반복으로 측정하였다(9). 측정 결과의 판정에 사용되는 threshold value는 $T_1=700$ counts/60 s와 $T_2=5000$ counts/60 s로, 측정값이 T_1 미만이면 음성시료(negative, -)로, T_2 초과이면 양성시료(positive, +)로 판정하고, 측정값이 T_1 ~ T_2 의 값을 나타내면 중간시료(intermediate, M)로 판정하였다(15~17).

열발광(TL)분석법 전처리

비중분리법(density separation method, DS): TL 방법은 EN1788법(18)에 준하여 수행하였다. 즉 시료 약 100 g을 취한 다음 중류수를 가하여 혼탁액을 만들고, 이 혼탁액을 초음파 교반기에서 5분간 처리한 후 nylon sieve(pore size 125 μm)로 여과하여 일정 시간 정치시킨 후 잔사를 원심분리용기에 모았다. 여기에 비중을 2.0으로 맞춘 텅스텐산나트륨용액(sodium metatungstate)을 5 mL를 첨가하여 초음파 교반기에서 5분간 처리한 후 2분 동안 원심분리($1,000\times g$)하여 유기물을 제거하고 중류수로 세척하였다. 일반적으로 혼입된 광물질에는 carbonate를 함유할 수 있으며, 이 carbonate는 1차 측정(TL_1)에서의 glow curve peak에 대해 영향을 초래하므로 1 N HCl 2 mL를 가해 10 분간 암소에서 정치하여 carbonate를 제거하였고 1 N NH₄OH 2 mL를 가해 중화시켰다. 중화된 광물질은 중류수로 충분히 세척한 후 아세톤으로 다시 세척하여 건조시켰다. 건조된 광물질은 TL disc에 약 0.2~1.0 mg을 옮겨 담고 50°C 건조기에서 16시간 예열한 후 측정하였다(9).

산가수분해법(acid hydrolysis method, AH): 산가수분해법에 의한 시료의 미네랄 분리는 EN1788법(18)에 준하여 실시하였다. 즉 500 mL 둥근 플라스크에 시료 약 50 g과 6 N HCl 200 mL를 가한 후 100°C에서 2시간 동안 가열하여 가수분해 시켰다. 가수분해 된 시료에 일정량의 중류수를 가하여 30분 동안 정치시킨 후 2분간 원심분리($1,000\times g$)하여 유기물을 제거한 다음 중류수로 수회 세척하였다. 세척 후 분리된 미네랄을 건조하여 TL disc에 약 0.2~1.0 mg을 옮겨 담은 후 50°C 건조기에서 16시간 예열한 후 측정하였다.

열발광 분석

TL/OSL SYSTEM(TL/OSL SYSTEM TL-DA-20, RIS Ø, Roskilde, Denmark)을 이용하여 실온에서부터 350°C 까지 5°C/sec의 속도로 온도를 상승시키면서 측정하였다. 일반적으로 방사선이 조사된 시료는 150~250°C에서 최대 강도를 보이는 glow curve를 나타내지만, 비 조사구는 특징적인 glow curve를 나타내지 않거나 300°C 이상에서 자연 방사선에 의한 곡선을 나타낸다. 처음 측정 시 얻은 glow curve의 면적 값을 TL_1 이라 하고 재조사 후 측정해서 얻은 면적 값을 TL_2 라 하며, 그 후 방사선 조사식품이 나타내는 TL glow curve 범위의 TL ratio(TL_1/TL_2)를 구하여 이 ratio를 threshold value로 이용하면 조사 여부 확인이 가능하며, 이론상 흡수선량 예측을 가능하게 해준다(18). 이러한 1차 TL 측정에서 TL ratio 산출까지의 일련의 과정을 normalization이라 하며, TL ratio 값이 0.1 이하이면 비조사구로, 0.1 이상이면 조사구로 판단하였으며(9), TL 측정 시 판별결과에 대한 신뢰성을 얻기 위하여 blank test를 동시에 실시하여 이것의 TL glow curve 면적 값을 구해 blank 평균값에 표준편차의 3배수를 더하여 MDL(Minimal detect-

able integrated TL intensity)을 구하였고, 각 시료의 TL_2 값이 MDL의 10배를 넘으면 유효한 시험결과로 받아들였다.

실험결과 분석

본 연구에서 측정한 결과의 분석은 Origin 8.0 software (Origin Lab. Co., Northampton, MA, USA)를 사용하였다.

결과 및 고찰

건조수산물의 광자극발광 PSL 특성

건조수산물 6종의 조사여부를 스크리닝하기 위하여 PSL 방법을 측정한 결과는 Table 1과 같다. EN13571(16)에서는 검체에 균적외선을 조사하여 방출되는 광자 수(photon counts, PCs)가 700 이하이면 비 조사시료로, 5,000 이상이면 조사시료로 판별하도록 권고하고 있다. 비 조사된 건조수산물 6종은 모두 700 PCs 이하의 값을 나타내어 모두 비 조사시료로 판정 가능하였지만, 조사된 건조수산물은 5, 10 kGy 조사된 흥합을 제외하고 모두 음성 및 중간값으로 나타나 이들 건조 수산물(오징어, 한치, 꿀뚜기, 가자미, 꽁치)은 PSL 적용이 어려운 것으로 판단되었다. 건조흥합의 경우 1 kGy 조사구는 중간 값을 나타내었지만, 5 kGy 이상 조사된 시료에서는 20,000 PCs 이상으로 나타났다. 한편 Cho 등(19)의 결과에서도 조미건어포, 수산물가공품에 이용한 PSL 측정에서 일부 건조수산물 시료의 photon counts 가 조사여부에 따른 차이를 보이지 않아 본 연구결과와 유사하게 나타났다. 따라서 광자극발광법은 건조수산물에 대한 스크리닝 방법으로서 적용가능성이 낮았으며, 이는 유통과정 중 빛에 노출되어 광물질의 발광강도가 손실되어 나타난 결과로 사료되었다(20).

건조수산물의 TL glow curve 특성

두 가지 분석 방법에 따른 TL glow curve의 특성을 비교하기 위하여 시료를 0~10 kGy로 조사한 후 비 조사시료를 대조구로 하여 비중분리법(density separation, DS)과 산가수분해법(acid hydrolysis, AH)에 따라 추출된 미네랄을 사용하여 TL 측정한 결과는 Fig. 1, 2와 같다. 비 조사시료에서 DS과 AH 모두 특유의 발광곡선을 나타내지 않았으며 조사된 시료에서 두 방법 모두 150~250°C 부근에서 최고

peak를 가지는 glow curve를 나타내었다. 또한 TL intensity는 DS보다 AH에서 더 낮게 나타났는데, 이는 AH법은 열처리(100°C, 2 hr)에 의하여 광물질에 trap되어 있는 에너지가 일부 손실된 것으로 판단된다(21-23). Carmichael과 Sanderson(24)은 수산물(새우, 가재 등)에 대하여 DS법 및 AH법으로 전 처리한 후 TL 분석하였을 때, AH에서 TL intensity는 상대적으로 감소하였으나, 두 방법 모두 조사여부의 판별결과에는 영향을 미치지 않는다고 하여 본 연구의 결과와 유사한 결과를 나타내었다. 이러한 결과를 종합해 볼 때 TL glow curve의 온도범위 및 TL intensity는 비조사구와 조사구간의 차이가 분명하게 나타나 조사여부 판별이 가능하였다. 또한 DS 방법으로 분리한 건조수산물의 발광곡선은 AH 방법에 비해 발광강도는 높았으나, 발광곡선의 모양은 명확하지 않았다. 이는 건조수산물의 뼈나 유기물에서 유래된 결과로 사료되었으며(25), AH법은 DS 법에 비해 강산(6 N, HCl)을 사용하므로 건조수산물에 존재할 수 있는 뼈나 유기물이 완전히 제거되어 DS에 비해 명확한 발광곡선을 나타낸 것으로 판단되었다(12,13).

건조수산물의 TL ratio 특성

건조수산물 6종의 추출한 미네랄에 대한 TL glow curve의 normalization을 위해서 1차 glow curve(TL_1)를 측정한 후, 재조사(1 kGy)를 실시하여 2차 glow curve(TL_2)를 측정하였다. TL ratio(TL_1/TL_2)의 산출 결과는 Fig. 3과 같다. DS법과 AH법 모두 비 조사시료에서는 0.1 이하의 값을 나타내었다. 조사시료는 DS의 경우 일부시료를 제외하고 모든 시료에서 0.1 이상의 값을 나타내었다. TL ratio 0.1 이하의 값을 나타낸 시료는 꽁치였으며, 조사선량 1 및 5 kGy에서 0.1 이하의 값(negative)을 나타내어 TL ratio의 적용이 부적합하였다. AH 방법은 조사시료의 경우 0.1보다 높은 값을 나타내어 이미 설정한 비조사구(0.1 이하)와 조사구(0.1 이상) TL ratio 기준에 따라 조사 여부 확인이 가능하였다. TL normalization 방법에 의한 TL ratio 산출은 TL 판정결과의 신뢰도를 높일 수 있는 방법으로 여러 차례 보고된 바 있으며(26-28), 또한 Schreiber 등(29)은 shellfish에 대하여 TL 적용이 가능하다고 보고하여 본 연구와 유사한 결과를 나타내었다.

따라서 발광분석법(PSL, TL)을 이용한 건조수산물의 조

Table 1. Photostimulated luminescence determinations of gamma-irradiated dried fish (Unit: photon counts/60 sec)

Sample	Irradiation dose (kGy)			
	0	1	5	10
Dried squid	324±34 ¹⁾ (-) ²⁾	1,550±77 (M)	2,302±2,171 (M)	774±23 (M)
Beca squid	268±21 (-)	749±36 (M)	897±100 (M)	988±108 (M)
Mitra squid	247±8 (-)	835±58 (M)	729±18 (M)	889±141 (M)
Mussel	291±61 (-)	3,956±251 (M)	54,210±9,075 (+)	25,442±2,379 (+)
Plaice	292±2 (-)	986±390 (M)	1,394±417 (M)	881±82 (M)
Saury	272±10 (-)	612±431 (-)	307±7 (-)	370±33 (-)

¹⁾Means±SD (n=2).

²⁾Threshold value: $T_1=700$, $T_2=5,000$, (-)< T_1 , $T_1<(M)<T_2$, (+)> T_2 .

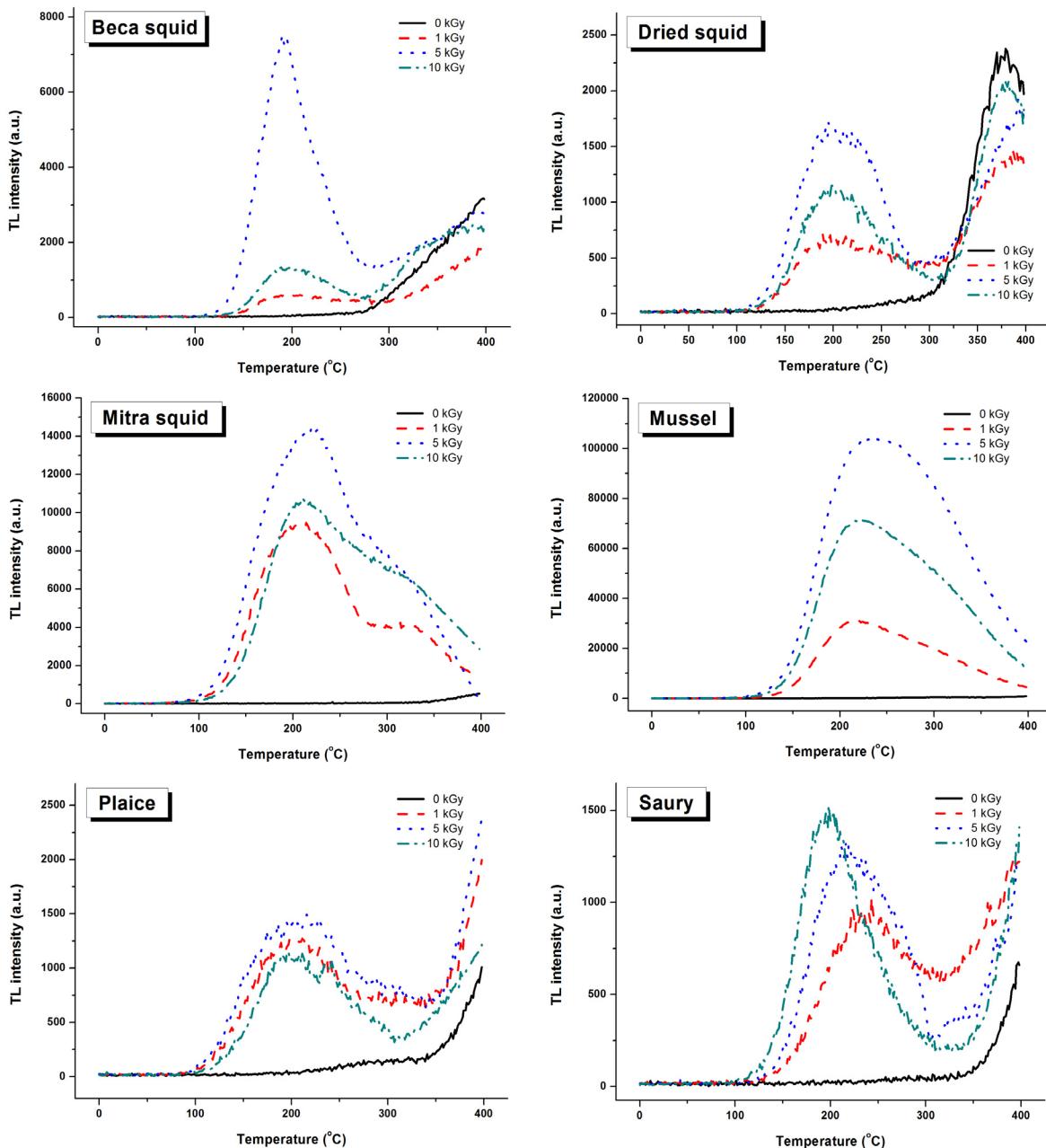


Fig. 1. TL glow curves of minerals separated from irradiated dried fishery products using density separation method (DS).

사여부 판별가능성은 PSL의 경우 적용가능성이 다소 낮은 것으로 판단되었으며, TL 방법은 전처리 방법으로서 AH 방법이 DS 방법보다 더욱 적합한 것으로 판단되었다.

요 약

건조수산품의 조사여부 확인을 위하여 PSL-TL 방법으로 분석하였다. 비 조사 시료에서는 모두 700보다 낮은 PCs를 나타내었고 조사된 홍합 5, 10 kGy에서만 5,000 이상의 PCs를 나타내었으나 조사된 오징어, 한치, 꿀뚜기, 홍합, 가자미, 꽁치는 비 조사값과 중간값을 나타내었다. TL분석에

이용되는 광물질을 얻기 위해 비중분리법(DS)과 산가수분해법(AH)을 이용하였으며, 그 결과 비 조사시료에서는 250 °C 이상의 범위에서 낮은 intensity와 peak를 나타났으며 조사된 시료에서는 150~250°C 범위에서 높은 intensity와 peak를 나타내었다. 그러나 특히 AH 방법으로 미네랄을 분리하였을 때 TL ratio(TL_1/TL_2)과 TL glow curve 결과가 보다 정확한 결과를 얻을 수 있었다. 따라서 PSL 방법은 홍합시료에서만 적용 가능하였으며, TL 방법은 실험에 사용된 모든 건조수산품에 적용 가능하였으나, AH 방법으로 처리한 판별결과가 DS 방법보다 더 정확한 결과를 나타내었다.

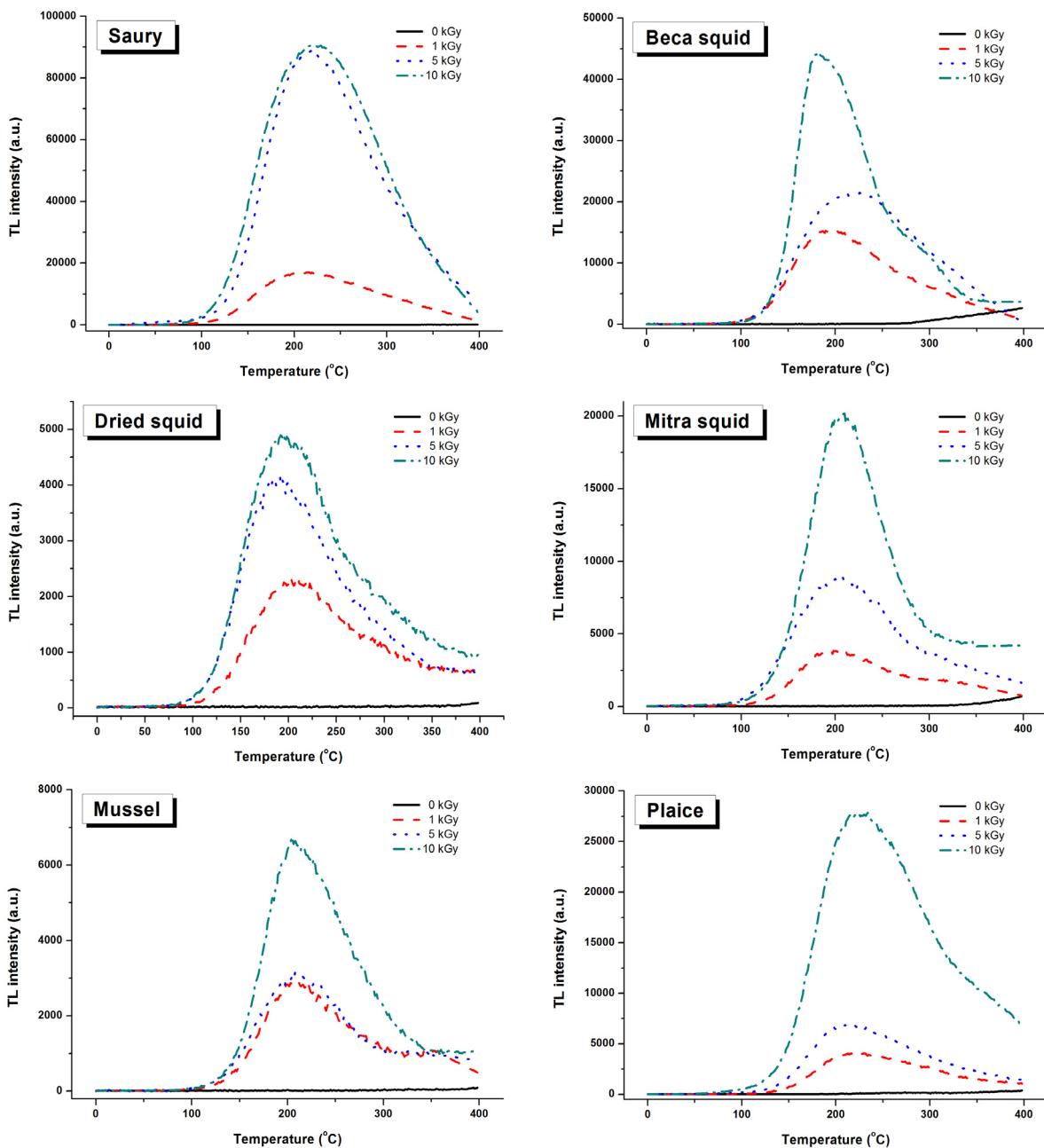


Fig. 2. TL glow curves of minerals separated from irradiated dried fishery products using acid hydrolysis method (AH).

감사의 글

이 논문은 2013학년도 경북대학교 학술연구비에 의하여 연구되었음. 이 논문은 2013년도 정부(교육과학기술부)의 지원으로 한국연구재단의 기초연구사업지원을 받아 수행된 것으로 이에 감사드립니다(NRF-2013R1A1A4A03006993).

REFERENCES

- TRASS. 2013. Trade Statistics System. Available from http://trass.kctdi.or.kr/service/board/BoardServlet?cmd=Detail&sc.boardid=B00014&sc.row_id=187&sc.pageNo=1.
- NFQS. 2012. National Fisheries Products Quality Management Service. Available from <http://www.nfqs.go.kr/2013/contents.asp?m=5&s=7&s2=1>.
- KFDA. 2010. *Food Code*. Korea Food and Drug Administration, Seoul, Korea. p 5-28-1.
- Kwon JH. 2010. *Safety and understanding of irradiated food*. Korea Food Safety Research Institute, Seoul, Korea. p 33-42.
- Kwon JH, Byun MW, Cho HO. 1992. Development of food irradiation technology and consumer attitude toward irradiated food in Korea. *Radioisotopes* 41: 654-662.
- Loaharanu P, Kava R, Choi EH. 2003. Irradiation enhances food safety and quality. American Council on Science and Health. Available from <http://www.acsh.org/opinion/irradiation.html>

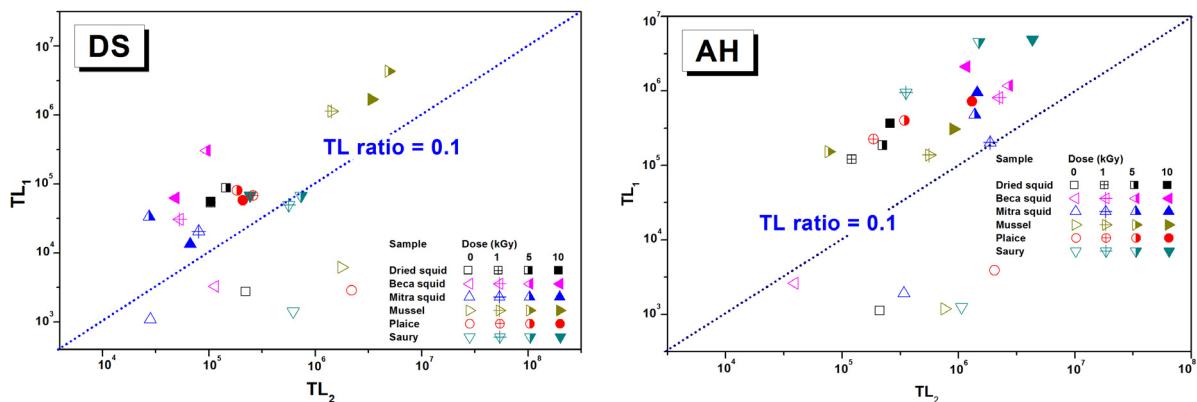


Fig. 3. TL ratio (TL_1/TL_2) of minerals separated from irradiated dried fishery products at different mineral separation methods (DS, density separation; AH, acid hydrolysis).

- ation-enhances-food-safety-and-quality/.
7. Kume T, Furuta M, Todoriki S, Uenoyama N, Kobayashi Y. 2009. Status of food irradiation in the world. *Radiat Phys Chem* 78: 222-226.
 8. Couey M. 1989. Heat treatment for control of postharvest diseases and insect pests of fruits. *Hortscience* 24: 198-202.
 9. KFDA. 2010. *Food Code*. Korea Food and Drug Administration. Seoul, Korea. p 10-8-41.
 10. Chauhan SK, Kumar R, Nadanabapathy S, Bawa AS. 2009. Detection methods for irradiated foods. *Compr Rev Food Sci Food Saf* 8: 4-16.
 11. Kwon JH, Chung HW, Kim BK, Ahn JJ, Kim GR, Jo DJ, Ahn KA. 2011. Research and application of identification methods for irradiated foods. *Safe Food* 6: 11-27.
 12. Kyung HK, Ahn JJ, Akram K, Kwon JH. 2012. Thermoluminescence analyses of irradiated dried sea foods using different methods of mineral separation. *Radiat Phys Chem* 81: 1224-1226.
 13. Sekiguchi M, Nakagawa S, Yunoki S. 2009. Detection of irradiation history of seasoning mixes composed of dried fish and its extract-TL analysis and application considerations for mineral separation from foods. *Bull Tokyo Metrop Ind Technol Res Int* 4: 24-27.
 14. Sanderson DCW, Clark RJ. 1994. Pulsed photostimulated luminescence of alkali feldspars. *Radiat Meas* 23: 633-639.
 15. Sanderson DCW. 1996. Luminescence detection of irradiated foods. In *Food Irradiation and the Chemist*. Johnston DE, Stevenson MH, eds. Royal Society Chemistry, Cambridge, UK. p 25-56.
 16. EN 13751. 2002. Foodstuffs—Detection of irradiated food using photostimulated luminescence. European Committee of Standardization (CEN), Brussels, Belgium.
 17. Schreiber GA. 1996. Thermo-luminescence and photo-stimulated luminescence techniques to identify irradiated foods. In *Detection Methods for Irradiated Foods*. McMurray CH, Stewart EM, Gray R, Pearce J, eds. The Royal Society of Chemistry, Cambridge, UK. p 121-123.
 18. EN 1788. 2001. Foodstuffs—Thermoluminescence detection of irradiated food from which silicate minerals can be isolated. European Committee of Standardization (CEN), Brussels, Belgium.
 19. Cho JI, Lee JA, Lee SH, Hwang IG. 2010. Monitoring on

- the foods not approved for irradiation in Korea by PSL and TL detection method. *J Fd Hyg Safe* 25: 73-78.
20. Ahn JJ, Kim GR, Akram K, Kim KS, Kwon JH. 2012. Effect of storage conditions on photostimulated luminescence of irradiated garlic and potatoes. *Food Res Int* 47: 315-320.
 21. Ahn JJ, Akram K, Lee J, Kim KS, Kwon JH. 2012. Identification of a gamma-irradiated ingredient (garlic powder) in Korean barbecue sauce by thermoluminescence analysis before and after pasteurization. *J Food Sci* 77: C476-C480.
 22. Ahn JJ, Akram K, Kwak JY, Jeong MS, Jang YD, Kwon JH. 2012. Radiation-induced thermoluminescence characteristics of feldspar following different heat and microwave treatments. *J Lumin* 132: 1964-1968.
 23. Lee J, Kausar T, Kim BK, Kwon JH. 2008. Detection of γ -irradiated sesame seeds before and after roasting by analyzing photostimulated luminescence, thermoluminescence and electron spin resonance. *J Agric Food Chem* 56: 7184-7188.
 24. Carmichael LA, Sanderson DCW. 2009. The use of acid hydrolysis for extracting minerals from shellfish for thermoluminescence detection of irradiation. *Food Chem* 68: 233-238.
 25. Ahn JJ, Akram K, Jeong MS, Kwak JY, Kwon JH. 2013. Identification of irradiated shellfish using well-characterized thermoluminescence properties of biogenic minerals present in the exoskeletons. *Food Anal Methods* 6: 1345-1352.
 26. Kwon JH, Jeong J, Chung HW. 2002. Thermoluminescence characteristics of minerals from irradiated potatoes of different origins of production. *Radiat Phys Chem* 63: 415-418.
 27. Beneitez P, Correcher V, Millan A, Calderon T. 1994. Thermoluminescence analysis for testing the irradiation of spices. *J Radioanal Nucl Chem* 185: 401-410.
 28. Kwon JH, Ahn JJ, Akram K, Son IJ, Lee SO. 2013. Characterization of radiation-induced luminescence properties and free radicals for the identification of different gamma-irradiated teas. *Anal Bioanal Chem* 405: 4225-4234.
 29. Schreiber GA, Hoffmann A, Helle N, Bögl KW. 1994. Methods for routine control of irradiated food: Determination of the irradiation status of shellfish by thermoluminescence analysis. *Radiat Phys Chem* 43: 533-544.