原 著

低エネルギー電子線を用いた殻付き生卵の殺菌における線量評価

片岡憲昭[†], 関口正之, 河原大吾

東京都立産業技術研究センター

[†]kataoka.noriaki@iri-tokyo.jp

2018 年 9 月 18 日 受付

2019 年 12 月 27 日 受理

低エネルギー電子線を用いて生卵の卵殻のみを殺菌し可食部の線量を我が国で食品に認められる照射限度値 (0.10 Gy) 以下にするための照射条件を、線量計測実験とモンテカルロシミュレーションで評価した。その結果、卵殻の深度線量分布の評価から加速電圧 80–200 kV の照射条件が有効であった。可食部の線量は、80–150 kV の電子線照射で 0.10 Gy 以下となった。また、電子線のエネルギーが低い程、制動 X 線の寄与は少なく可食部の線量も減少した。

Key Words: sterilization, low energy electron beam, egg, eggshell, bremsstrahlung, Monte Carlo simulation

1. 緒 言

サルモネラ菌 (*Salmonella enteritidis*) による食中毒は 2006 年から 4 年間で 416 件起こっており、そのうち 35 件は鶏卵製品が原因である¹⁾。1992 年以降、卵及びその加工品が原因と疑われる 224 件の内、201 件 (約 90%) が殻付き卵におけるサルモネラ菌を原因とする食中毒であった。また、2007 年にはパック前に洗浄した製品で 2030 パック中 5 パック (0.25%) の卵殻からサルモネラ菌が検出された事例も報告されている²⁾。

そのため、卵選別包装施設 (GP (Grading & Packaging) センター) の衛生管理要項では、洗卵に関して、下記の管理運営基準に従うように指示している³⁾。

1. 30°C 以上かつ卵温より 5°C 高い洗浄水を用いること。
2. 洗浄水及びすすぎ水は、150 ppm 以上の次亜塩素酸ナトリウム又はこれと同等以上の効果を有する殺菌剤を用いること。
3. すすぎ水の温度は洗浄水より 5°C 以上高いこと。

この管理運営基準に従った処理を実施する場合、薬剤処理による薬剤残留や廃液の環境への負荷、さらに風味が落ちるという欠点が挙げられる。その代替法として、本研究では低エネルギー電子線による卵殻表面の殺菌処理について可能性を検討した。

電子線は加速電圧を調整することで透過力をコントロールすることが可能であり、表面に汚染が限定される場合には、低エネルギー電子線で表面のみを処理する⁴⁾。生卵への放射線殺菌についてはアメリカ食品医薬局 (FDA) が最大線量を 3 kGy までと定めており 2–3 kGy でサルモネラ菌は検出限界値まで菌数が減少する^{5,6)}。

日本国内では食品衛生法上、食品への放射線照射は原則禁止されており、「食品の製造工程又は加工工程において、その製造工程又は加工工程の管理のために照射する場合であって、食品の吸収線量が 0.10 グレイ以下のとき及び D 各条の項において特別の定めをする場合は、この限りでない」⁷⁾と、例外を定義する形で利用範囲が定められている。D 各条は、ばれいしょの発芽防止に関する条例である。従って、食品の異物検査や厚さ計測に伴う X 線検査等に関

しては、0.10Gy までの使用が食品の種類によらず認められている。また、放射線の定義は、原子力基本法に拠るとされており、1MeV 未満の低エネルギー電子線は、食品衛生法上で使用が制限されている放射線にはあたらない。そこで、低エネルギー電子線の食品の可食部における吸収線量が0.10Gy を超えなければ、食品への放射線の照射を一般的に禁止している現行の食品衛生法の趣旨に反することなく利用することが可能と考えられる。ここで、卵殻表面中のサルモネラ菌を確実に殺菌できる線量を低エネルギー電子線で照射した場合に、可食部の線量が0.10Gy 以下となる条件を満たすには

- ①電子線の可食部への入射が非常に小さいこと
- ②装置に付随する Ti 箔や被照射体などから発生する制動 X 線の吸収線量が0.10Gy 以下となること

が必要条件となる。制動 X 線は電子線が物質を通過する際に生成し、通過する物質の原子番号のほぼ2乗に比例して増大する⁸⁾。電子線発生装置で加速された電子は、内部の真空を保持するとともに電子を加速するための高電圧が印加された Ti 箔や Al 箔からなるウィンドウを通過して外部に放射されるため、電子線の通過により制動 X 線が生成する。また、卵殻や照射室の遮へい体を通る際、制動 X 線が同時に生成され、可食部に入射することで吸収線量が増大する⁹⁾。

上記を踏まえ、第一段階として本研究では、卵殻に低エネルギー電子線を一方向から照射し、可食部の線量が0.10Gy 以下となるような照射条件を実験及びモンテカルロシミュレーションにより検討した。

2. 実 験

2.1 電子線照射条件

低エネルギー電子加速器(岩崎電気社製: EC250/30/180L 型)を用いて電子線(加速電圧: 80kV, 100kV, 150kV, 200kV, 250kV)を照

Fig. 1 Geometric arrangement of the TLD disk under the eggshell.

射ウィンドウ—模擬試料間の距離2.5cm, 電流0.1mA, 搬送速度10m/min, 窒素ガス雰囲気下で卵の模擬試料に照射した。

2.2 卵の模擬試料と線量測定法

生卵の卵殻膜及び中身を取り除き、乾燥した卵殻の鈍端部(卵殻が薄く、気孔が多い部分)を使用した。卵内部にサランラップを敷き2%寒天を流し固化したものを生卵の模擬試料とした。電子線照射線量(表面線量)はラジオクロミックフィルム線量計(RCD Far West Technology 社製 FWT 60-810, 厚さ約10 μ m)で測定した。卵殻を透過した電子線及び同時に生成した制動 X 線の線量は、卵殻とラップで包んだ寒天との間に TLD 100 (Thermo Fisher Scientific 社製: Disk: ϕ 3.6mm $\times$ 0.25mm)を挟んで評価した(Fig. 1)。卵殻を透過する電子線と制動 X 線の線量への寄与は、TLD100を卵殻の下に密着、及び卵殻の下に1~5枚積層したポリエチレンフィルム(PE: 厚さ40 μ m, 面密度3.72mg/cm²)を配置しその後ろにTLD100を配置した条件で吸収線量を求め評価した。

2.3 TLD 素子の校正と X 線エネルギー分布測定

タングステンターゲットとする X 線照射装置(エクスロン・インターナショナル社製: MG 452), または, γ 線照射装置(ポニー工業社製: PS-3200T, 185TBq)を用いて, TLD 素子に基準線量の X 線または γ 線を照射し, 校正曲線を作成した。X 線は, Al フィルター(厚

さ3mm)を付け、管電圧(80kV, 100kV, 150kV, 200kV, 250kV)で行い、 γ 線は ^{137}Cs (662keV)の線源を用いた。線量は十数mGy~400mGyの範囲とし、電離箱(Fluke Biomedical社製:35040, PWT社製:TN31013プローブ)の測定値を基準とした。TLD 100の発光量はTLDリーダー(Thermo Fisher Scientific社製:Harshaw 3500)で求め、電離箱で測定した線量に対する発光量の校正曲線を求めた。この校正曲線を用いて卵殻を通過した制動X線の線量を求めた。

また、同様のX線装置で発生するX線についても管電圧(80kV, 100kV, 150kV, 200kV, 250kV)で照射し、CdTe半導体検出器(クリアパルス社製:SCT404010)を用いて下記の条件におけるX線のエネルギースペクトルを測定した。

- 1) フィルターなし+卵殻なし
- 2) フィルターなし+卵殻
- 3) Al フィルター(厚さ3mm)+卵殻

上記の2)及び3)の条件では、プローブは卵殻裏側に密着させ、生卵の模擬試料で覆った状態で測定した。

2・4 シミュレーション解析

粒子・重イオン輸送計算コードPHITS(Version 3.02)¹⁰⁾を用いて卵の電子線照射モデルを作成した。Fig. 2にモデル体系を示す。6cm×6cmの面線源の平行ビームをz軸正の向きに照射し、線源から20 μm 離れた位置にあるチタン箔10 μm を通過することで電子線が広範囲に照射される線源モデルである。炭酸カルシウムからなる卵殻は気孔を考慮して密度2.0g/cm³、可食部は水と同等と仮定し密度1.0g/cm³とした。他の領域は標準空気とし、照射ウィンドウ(チタン箔)と卵殻表面の距離を2.5cmとした。電子線のエネルギーは80keV, 100keV, 150keV, 200keV, 250keVとし、卵のモデルに 6.25×10^{12} 個の電子が照射される条件を想定した。この時に照射される電子の数は、2.1項の照射条件(電流0.1mA, 搬送速度10m/min)で照射した

Fig. 2 Geometry of electron irradiation to egg by Monte Carlo simulation (PHITS). The edible part of the egg is separated in 3 part. □: examination area in order to measure absorbed dose (Color online).

電子の数と同等数の電子とした。

卵殻の深度線量分布を算出する際には十分に厚い卵殻(0.6mm厚)を想定し、これを30層(0.02mm厚)の検査領域に分割し、上記の条件で電子線照射した際の各卵殻層の吸収線量を評価した。

また、各箇所における可食部の吸収線量は、卵殻を一般的な厚さ(0.4mm)とし、3等分にした各可食部の検査領域(2.0cm×2.0cm×0.1cm)をFig. 2のように設定し求めた。このモデルに上記照射条件の電子線が照射され、卵殻が3kGyの照射を受けた際の可食部の吸収線量を算出した。

さらに、80keVの電子線を卵のモデルに照射させた際に、Ti箔で散乱し、可食部(線源側の検査領域)で吸収されたX線のエネルギースペクトルを解析し、2.3項の実験で得られたX線のエネルギースペクトルと比較した。

3. 結果と考察

3・1 校正

Fig. 3に ^{137}Cs の γ 線及びAlフィルター(厚さ3mm)を取りつけて80kV~250kVの各管電

圧でX線を照射した際のTLD100の読み取り値(TL発光量)と電離箱で測定した線量との間の、線量校正曲線を示す。 γ 線の校正曲線の傾きを1.0とすると250kVは1.13, 200kVは1.19, 150kVは1.31, 100kVは1.36, 80kVでは1.36と増加し、X線のエネルギーが低くなるほど、感度が高くなった。Fig. 4に、80kVまたは150kVのX線がAlフィルターや卵殻を通過した前後のX線のエネルギースペクトルを示す。Alフィルターありの場合は、なしのX線に比べ低エネルギー成分がカットされ、平均エネ

Fig. 3 Dose response to TL intensity of TLD100 disk. X-ray of each tube voltages and γ -ray of ^{137}Cs .

ギーは高めの分布を示す。フィルターなしのX線では卵殻の有無によるスペクトルの分布の変化は少なく、フィルターありのX線の線量校正曲線で卵殻を透過するX線線量を求めることは過大(安全側)な評価となる。

Fig. 5に、80kVの電子線を照射した場合にTi箔から生じる制動X線のエネルギー分布のシミュレーション結果(PHITS)と、80kVのX線が卵殻及びAlフィルター(厚さ3mm)を透過した際の実験値のエネルギー分布を示す。図の縦軸は、各エネルギーにおける光子数の最大値を1として標準化した。X線照射装置では、タングステンターゲットに電子線を照射してX線を発生させているためタングステンの特性X線(59keVのピーク)が認められる。一方シミュレーションでは、X線発生装置とは異なり、Ti箔による電子線の散乱と制動X線の発生を模擬しているため、タングステンの特性X線のピークが認められなかった。結果として、電子線照射に伴うX線のスペクトルを模擬したシミュレーションの結果に最も近い実験のスペクトルは、フィルターなしのスペクトルであったが、可食部の線量0.10Gy以下の条件を満たすために安全側であるAlフィルター(厚さ3mm)のスペクトルを用いて校正を行った。

3・2 卵殻を通過した放射線量の評価

Fig. 1のように卵殻の下にPEフィルムを0～

Fig. 4 Energy spectrum of X-ray transmitted through Al filter (3 mm) or eggshell. Left: 80kV Right: 150kV

Fig. 5 Energy spectra of X-ray (80kV) transmitted through Al filter (3 mm) or eggshell and energy spectrum of bremsstrahlung with electron beam (80kV) simulated by PHITS. Each photon number is normalized by setting the maximum number to 1.

Fig. 6 TL intensities of TLD disk behind of PE films inserted as Fig. 1. The numbers in this figure (1~5) indicate the number of laminated PE films.

5枚積層させた時に通過した線量をTLD100で測定した。Fig. 6にPEフィルム厚さに対するTLの発光量の変化を示す。PEフィルムなしの場合、100kV~250kVにおいて、管電圧が高くなると発光量は急激に増加し、積層枚数1~5枚で一定の値を示した。80kVでは積層厚さに関わらず一定の値を示した。PEフィルム1枚で線量が急激に落ちたのは卵殻を通り抜けた電子線が遮蔽されたことを意味し、一定値となったのは制動X線によるものと判断される。本実験は卵殻膜(70 μ m)を剥がして照射してお

Table 1 Surface dose and inside dose of eggshell when eggshell was irradiated by electron beam with each acceleration voltage

Accelerated voltage [kV]	Surface dose (eggshell) [kGy]	Inside dose ^{*1, *2} [mGy]	Translated inside dose ^{*3} [mGy]
	A	B	(B/A $\times$ 3kGy)
80	5.9	13-14	6.6-7.1
100	9.1	17-19	5.6-6.3
150	9.7	34-42	10.5-13
200	8.7	89-132	30.7-45.5
250	5.3	113-230	64-130

*¹ Absorbed dose is measured inside the blunt end egg-shell. *² The value shows maximum and minimum dose when the test is repeated 5 times. *³ The value shows inside dose when surface dose (eggshell) is 3kGy.

り、卵殻膜の厚さはPEフィルム1~2枚に相当するため、PEフィルムを透過後の一定値を示した線量を可食部の線量として評価しても妥当と考えられる。

3.3 卵殻表面と卵殻内側の線量評価

卵殻の表面の吸収線量を、表面に設置したRCDで評価した。また、卵殻内側に入射した制動X線の線量を、3.2項で一定の値(PE積層枚数1~5枚)となったTL発光量に基づいて評価した。線量の換算は、Fig. 3の校正曲線に基づいて行った。これらの結果をTable 1に示す。卵殻内側の線量は5回測定した最大値と最小値を示す。また、各エネルギーの電子線照射において、卵殻表面が3kGyの照射を受けた際の卵殻内部の線量(換算線量)を併記した。加速電圧を高くすると卵殻内側の線量が増大する。また、表面線量を3kGyとする照射条件においては、可食部の線量を0.10Gy以下にするためには加速電圧150kV以下で照射すれば良いことがわかった。

3.4 PHITSによる電子線深度線量分布

厚さ0.6mmの卵殻に 6.25×10^{12} 個の電子(80kV, 100kV, 150kV, 200kV, 250kV)を照

Fig. 7 Depth dose distribution of eggshell irradiated by low energy electron beam with PHITS code.

射するケースを想定し、卵殻の深さ方向に対する吸収線量を PHITS コードによるシミュレーションで求めた結果を Fig. 7 に示す。200kV で照射した場合、0.2mm までは電子線による寄与であり、0.2mm 以降は線量が一定に推移しているため制動 X 線の寄与であることが示された。250kV で照射した場合、卵殻の最小薄さ (0.26mm) を超え、電子線が可食部に到達する。そのため可食部は、許容値である 0.10Gy を超える可能性が大きくなる。このように加速電圧が高すぎると電子線が可食部に到達し線量限度を超えるおそれがある一方で、サルモネラ菌が気孔を通して卵殻深部に侵入する可能性を考慮すると、加速電圧を上げて卵殻層まで電子線を透過させ殺菌する必要がある。従って、可食部への線量を許容値以下に抑え得る最大の加速電圧での処理が望ましい。

3・5 PHITS による可食部の線量評価

卵殻厚 0.4mm と 3 等分した可食部層から成る Fig. 2 の卵モデルに各エネルギーの電子線を照射するケースを想定し、各可食部層の検査領域における吸収線量を PHITS で解析した (Fig. 8)。図の縦軸は、卵殻が 3kGy の照射を受けた際の各可食部層の吸収線量である。この結果から、吸収線量は可食部層の場所によって大きく異なることがわかった。次に、この解析

Fig. 8 Absorbed dose of edible parts in the each examination area simulated by PHITS, assuming that eggshell surface is irradiated at 3kGy.

Fig. 9 Comparison of absorbed dose in edible part between experiment and simulation when surface eggshell is irradiated at 3kGy. The dose calculated by PHITS represents absorbed dose of edible part close to the source.

値を実験値と比較するためには、実験で用いた模擬試料の TLD と同じ可食部層の位置 (線源側) で吸収線量を評価する必要がある。そこで、PHITS の解析では線源側の検査領域における吸収線量値を採用し、実験値との比較評価を行った (Fig. 9)。その結果、実験値と同様に 80kV~150kV であれば、可食部層 (線源側) の線量が 0.10Gy よりも十分小さくなり、実験による線量の評価方法の有用性が解析から確かめられた。しかし、200kV~250kV において実験値と PHITS の解析値が異なり、実験値の方が大きな値となった。その原因は (1) 外部の比較的高いエネルギーの散乱電子が卵殻と寒天の間に存在する微細な隙間から TLD 線量計に入射

した可能性と、(2)卵殻の微細な気孔を通過してTLD線量計に電子線が直接入射した可能性の2つが考えられる。

4. 結 言

低エネルギー電子線を用いて生卵の卵殻を殺菌する際の、線量の評価方法を検討した。卵殻に電子線を照射し、表面線量を3kGyに換算した時に可食部の線量が0.10Gy以下となる条件を実験と解析により評価した。その結果、照射条件は80kV～150kVが適切であることが明らかとなった。

5. 今後の課題

今回の実験と解析は一方向からの照射という条件で行った。実際には生卵に対して多方向から均一に照射し、卵殻全体のサルモネラ菌を殺菌する必要がある。その際に、卵殻中の最も照射されにくい部分でも殺菌線量(3kGy)となり、可食部の線量がどこでも0.10Gy以下となるような照射殺菌方法を確立することが今後の課題となる。

文 献

- 1) 厚生労働省, 4. 食中毒統計資料, (2)過去の食中毒発生状況
https://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/kenkou_iryuu/shokuhin/syokuchu/04.html (accessed July 30, 2018)
- 2) 農林水産省, 消費安全局, 鶏卵の生産衛生管理ハンドブック(参考資料) —指導者編— (2012)
<http://www.maff.go.jp/j/syouan/seisaku/handbook/pdf/sairanshidoshu.pdf> (accessed July 30, 2018)
- 3) 厚生労働省通知, 卵選別包装施設の衛生管理要領 (1998)
http://www.jz-tamago.co.jp/pdf/E05_3_3.pdf (accessed July 25, 2018)
- 4) Hertwig, C., Meneses, N. and Mathys, A., Cold atmospheric pressure plasma and low energy electron beam as alternative nonthermal decontamination technologies for dry food surfaces: A review, *Trends Food Sci. Technol.*, **77**, 131–142 (2018)
- 5) Federal Register/Vol. 65, No. 141/Friday, July 21, 2000, 45280/Rules and Regulations
- 6) DEPARTMENT OF HEALTH AND HUMAN SERVICES, Food and Drug Administration 21 CFR Part179 (Docket No. 98F-0165)
- 7) 厚生省告示第370号, 第1食品 B食品一般の製造, 加工及び調理基準1 (1959)
https://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/kenkou_iryuu/shokuhin/jigyousya/shokuhin_kikaku/370b.html (accessed July 30, 2018)
- 8) Pages, L., Bertel, E., Joffre, H. and Sklavenitis, L., Energy loss, range, and bremsstrahlung yield for 10-keV to 100-MeV electrons in various elements and chemical compounds., *At. Data Nucl. Data Tables*, **4**, 1–27 (1972)
- 9) Schiller, S., etc., Electron beam technology, Published by John Wiley & Sons., Inc., VEB Verlag Technik, Berlin, 1982
- 10) Sato, T., Iwamoto, Y., Hashimoto, S., Ogawa, T., et al., Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **55**, 684–690 (2018)

Abstract**Dose Evaluation for Sterilization
of Shell Egg Using Low Energy Electron Beam**Noriaki KATAOKA[†], Masayuki SEKIGUCHI and Daigo KAWAHARA

Tokyo Metropolitan Industrial Technology Research Institute

[†]kataoka.noriaki@iri-tokyo.jp

When controlling food production or processing, irradiation of 0.10 Gy or less to food is permitted in Japan. We examined the dose absorbed in at the edible part when sterilizing shell eggs with low energy electron beam. Irradiation conditions with electron beam were evaluated by experiments and Monte Carlo simulation. The depth dose distribution of electron beam for eggshell indicated that the acceleration voltages from 80 kV to 200 kV were optimal for eggshell sterilization. Then, it was found that acceleration voltages from 80 kV to 150 kV were appropriate to reduce the dose of the edible part of egg in less than or equal to 0.10 Gy. And, contribution of bremsstrahlung for the edible part of egg decreased as the energy of electron beam was lowered.

(Received September 18, 2018)

(Accepted December 27, 2019)