

福島農総セ研報 12 : 1-49 (2021)

吸着剤の投与による泌乳牛における放射性セシウムの
飼料から乳への移行抑制に関する研究*
生沼 英之**

Study on suppression of radiocesium transfer from feed to milk
in lactating dairy cows by administration of adsorbents
Hideyuki OINUMA

Abstract

Soils, crops, forages, livestock and their products were contaminated with radiocesium ($^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$) spread by the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident in Japan in 2011. The Ministry of Health, Labor and Welfare in Japan regulates that the radiocesium activity concentration of milk to be shipped must be less than 50 Bq/kg-fresh, and The Ministry of Agriculture, Forestry and Fisheries in Japan regulates that the radiocesium activity concentration in feed for dairy cows must be less than 500 Bq/kg-dry. However, dairy industries require the milk with radiocesium activity concentration of less than 10 Bq/kg-fresh to ensure the safety and security of dairy products. It has been reported that suppression of the transfer of radiocesium to milk by administration adsorbents, but the administration of the adsorbents to produce milk with radiocesium activity concentration of less than 10 Bq/kg-fresh has not been performed. In order to suppress the radiocesium activity concentration in milk below 10 Bq/kg-fresh, the inhibitory effect of zeolite and Prussian blue, which are radiocesium adsorbents, on the migration of radiocesium from feed to milk was investigated using 48 lactating dairy cows.

In chapter 2, a total mixed ration (TMR) with a radioactive activity concentration of 202 Bq/kg-dry was fed to a lactating cow, and the radiocesium activity concentration in milk was monitored to set the adaptation period for feed containing radiocesium in the following feeding trials. As the radiocesium activity concentration in milk reached equilibrium 11 days after the administration of feed containing radiocesium, it was judged that 14 days was sufficient for the adaptation period in feeding trials of this study.

In chapter 3, three feeding trials were carried out in order to examine the effect of zeolite on the suppression of the transfer of radiocesium from feed to milk. In the first trial, a TMR with a radiocesium activity concentration of 202 Bq/kg-dry were fed to lactating dairy cows with zeolite at 0, 200 and 400 g/day. As a result, the radiocesium activity concentration in milk was reduced from 14.7 to 6.5 Bq/kg-fresh, and the transfer coefficient of radiocesium from feed to milk (Fm) was also suppressed from 3.46×10^{-3} to 1.50×10^{-3} by administration of zeolite. In the second trial, 1.0 g/day of finely divided and expanded surface area zeolite was administered to lactating dairy cows fed a TMR with a radioactive Cs concentration of 95 Bq/kg-dry. The radiocesium activity concentration in milk was reduced from 6.4 to 5.0 Bq/kg-fresh, and Fm was suppressed from 4.04×10^{-3} to 3.09×10^{-3} by feeding finely divided zeolite. In the third trial, zeolite coated with palm oil for promoting radiocesium absorption of the digestive tracts after rumen, or the zeolite used in the first trial was administered at 100 g/day to lactating dairy cows fed a TMR with a radiocesium activity concentration of 215 Bq/kg-dry. However, the radiocesium activity concentration in milk and Fm were not suppressed by either administration of zeolite. The average radiocesium activity concentration in milk and Fm were 13.9 Bq/kg-fresh and 3.54×10^{-3} , respectively.

In chapter 4, two feeding trials were conducted to investigate the effect of Prussian blue (PB) on the suppression of radiocesium transfer from feed to milk. In the first trial, solid salt including PB was administered by free licking or oral dosing to lactating dairy cows fed a TMR with a radiocesium activity concentration of 175 Bq/kg-dry. PB intake ranged from 0.0 to 3.0 g/day. The radiocesium activity concentration in milk reduced from 16.4 to 8.6 Bq/kg-fresh, and Fm suppressed from 4.77×10^{-3} to 2.61×10^{-3} as the PB intake increased. In the second trial, solid salt including PB with improved palatability was administered by free trial or oral dosing to lactating dairy cows fed a TMR with the radiocesium activity concentration of 927 Bq/kg-dry. PB intake was increased by improving the palatability of the solid salt containing PB, and the amount ranged from 0 to 18.9 g/day. Radiocesium activity concentration in milk reduced from 24.3 to 4.2 Bq/kg-fresh, and Fm suppressed from 1.68×10^{-3} to 0.28×10^{-3} with increasing PB intake.

In chapter 5, the results obtained from chapters 3 and 4 were combined to examine the factors that influence the radiocesium activity concentration in milk. Radiocesium activity concentrations in the feed used in this study ranged from 95 to 1,047 Bq/kg-dry, and mean and maximum values of radiocesium activity concentrations were 15.4 and 32.0 Bq/kg-fresh, respectively. It was suggested that the radiocesium activity concentration in milk was reduced with the decreases of the radiocesium activity concentration in feed and the intake of radiocesium, the dose of zeolite or PB, and the increase of the neutral detergent fiber concentration in the feed. The Fm was decreased by the administration of zeolite or PB, but the fluctuation range of Fm was large (mean: 2.80×10^{-3} , coefficient of variation: 49%).

In chapter 6, the transition of the radiocesium activity concentration in milk was investigated after the feed was switched from a feed with radiocesium to another feed containing no radiocesium. An exponential equation was derived between the number of days after switching the feed and the radiocesium activity concentration in milk. Radiocesium activity concentration in milk was halved in 4.2 days after the feed was changed, and it took 15 days until radiocesium could not be detected in the milk. It was suggested that feed containing no radiocesium must be fed for at least 8 days to reduce the radiocesium activity concentration below 10 Bq/kg-fresh when initial radiocesium activity concentration in milk exceeded 50 Bq/kg-fresh.

This study confirms that if the radiocesium activity concentration of the feed is less than 500 Bq/kg-dry, the radiocesium activity concentration in milk will be 50 Bq/kg-fresh or less and demonstrates that administration of zeolite or PB could reduce the radiocesium activity concentration of milk below 10 Bq/kg-fresh when the radiocesium activity concentration of the feed is less than 500 Bq/kg-dry. This study recommends administration of the adsorbent at all times even if the content of radioactive Cs is less than 500 Bq/kg-dry, because the fluctuation range of the transfer coefficient of radiocesium from feed to milk is large.

Key words: cow, Fukushima, milk, zeolite, Prussian blue, radiocesium, transfer coefficient

キーワード : ウシ、福島、乳、ゼオライト、プルシアンブルー、放射性セシウム、移行係数

受付日 2020年9月15日 受理日 2020年12月7日

* 本論文は、岩手大学大学院学位論文を基に編集・加筆したものである。なお、本報告の一部は、日本畜産学会報、福島県農業総合センター研究報告、The 18th Asian-Australian Animal Production Congress、Journal of Environmental Radioactivity で報告した。

** 福島県農業総合センター畜産研究所、現在：福島県農林水産部農業振興課

目次

第1章 緒論.....	2		
1.1 原子力発電所事故による放射性物質の影響.....	2	4.4.7 放射性セシウムを含む飼料と移行係数の関係.....	29
1.2 福島県内の飼料生産と乳生産への影響.....	4	4.4.8 飼料の放射性セシウムの汚染経路と移行係数の関係.....	29
1.3 これまでの研究.....	4		
1.4 本研究の目的.....	5	第5章 放射性セシウム吸着剤の乳への放射性セシウムの移行抑制.....	30
1.5 論文の構成.....	5		
第2章 放射性セシウムの飼料から乳への移行確認.....	6	5.1 緒言.....	30
2.1 緒言.....	6	5.2 材料および方法.....	30
2.2 材料および方法.....	6	5.3 結果.....	31
2.2.1 乳への放射性セシウム移行確認試験.....	6	5.3.1 放射性セシウム吸着剤を用いない場合の乳への放射性セシウム移行.....	31
2.3 結果.....	7	5.3.2 放射性セシウム吸着剤投与時の乳への放射性セシウムの移行.....	33
2.3.1 乳への放射性セシウム移行確認試験.....	7	5.3.3 乳の放射性セシウム濃度と移行係数、濃度比および分配率.....	35
2.4 考察.....	7	5.4 考察.....	35
2.4.1 乳への放射性セシウム移行に及ぼす影響.....	7	5.4.1 放射性セシウム吸着剤を用いない場合の放射性セシウムの糞、尿および乳への移行.....	35
第3章 ゼオライトによる泌乳牛における乳への放射性セシウム移行抑制.....	8	5.4.2 放射性セシウム吸着剤投与時の放射性セシウムの糞、尿および乳への移行.....	36
3.1 緒言.....	8	5.4.3 放射性セシウムの飼料から乳への移行.....	37
3.2 材料および方法.....	9	第6章 放射性セシウムを含む飼料から含まない飼料に切替えた場合の乳の放射性セシウム濃度の推移.....	37
3.2.1 ゼオライト投与試験（第1試験）.....	9		
3.2.2 微粒子ゼオライト投与試験（第2試験）.....	10	6.1 緒言.....	37
3.2.3 油脂被覆ゼオライト投与試験（第3試験）.....	11	6.2 材料および方法.....	37
3.3 結果.....	12	6.2.1 乳の放射性セシウム減衰確認試験.....	37
3.3.1 ゼオライト投与試験（第1試験）.....	12	6.3 結果.....	38
3.3.2 微粒子ゼオライト投与試験（第2試験）.....	14	6.3.1 供試飼料の成分および化学成分.....	38
3.3.3 油脂被覆ゼオライト投与試験（第3試験）.....	15	6.3.2 放射性セシウムを含まない飼料給与による乳の放射性セシウムの減衰.....	38
3.4 考察.....	16	6.4 考察.....	39
3.4.1 乳への放射性セシウム移行に及ぼす影響.....	16	6.4.1 乳の放射性セシウムの減衰.....	39
3.4.2 ゼオライト投与が放射性セシウム移行に及ぼす影響.....	16	第7章 総合考察.....	39
3.4.3 ゼオライト投与が乳の生産性に及ぼす影響.....	18		
第4章 プルシアンブルー含有固形塩による泌乳牛における乳への放射性セシウム移行抑制.....	18	7.1 飼料の放射性セシウム濃度と乳の放射性セシウム濃度との関係.....	39
4.1 緒言.....	18	7.2 糞への放射性セシウム排出の重要性.....	40
4.2 材料および方法.....	19	7.3 ゼオライトとプルシアンブルーの乳への放射性セシウム移行抑制効果の比較.....	40
4.2.1 プルシアンブルー含有固形塩投与試験（第4試験）.....	20	7.3.1 ゼオライトとプルシアンブルーの比較.....	40
4.2.2 改良プルシアンブルー含有固形塩投与試験（第5試験）.....	21	7.3.2 プルシアンブルー利用の課題.....	40
4.3 結果.....	22	7.4 飼料から乳への放射性セシウムの移行係数の変動要因.....	41
4.3.1 プルシアンブルー含有固形塩投与試験（第4試験）.....	22	7.5 乳の放射性セシウム濃度を10 Bq/kg-fresh未満にするための飼養方法.....	42
4.3.2 改良プルシアンブルー含有固形塩投与試験（第5試験）.....	25	7.6 結論.....	43
4.4 考察.....	27	謝辞.....	43
4.4.1 摂取された放射性セシウムの排出経路.....	27	引用文献.....	44
4.4.2 放射性セシウムの吸収と排出.....	27	要約.....	49
4.4.3 家畜栄養素のミネラルへの影響.....	27		
4.4.4 乳への放射性セシウム移行抑制剤に対するプルシアンブルーと粘土鉱物との違い.....	28		
4.4.5 消化管から吸収された放射性セシウムの排出.....	28		
4.4.6 飼料から乳への放射性セシウム移行.....	29		

第1章 緒論

1.1 原子力発電所事故による放射性物質の影響

2011年3月11日に発生した東日本大震災により東京電力福島第一原子力発電所で放射能漏れ事故（以下、福島第一原発事故）が発生し、原子炉の爆発により放射性セシウム（ ^{134}Cs と ^{137}Cs ）、放射性ヨウ素などの放射性物質が東日本一帯の草地、飼料畑、水田に飛散して粗飼料およびその土壌が汚染された（Kinoshita *et al.*, 2011; 小林ら, 2012）。放射性物質は数ヶ月間降下物として検出され続け（原子力規制委員会, 2013）、福島県の大家畜生産地帯である阿武隈山地から中通り地方を中心に全県下を汚染した（文部科学省, 2011）（Figure 1-1）。それらの汚染粗飼料を摂取した家畜の生産物から放射性物質が検出されたために、原乳の出荷制限、牧草の利用自粛、牛肉の出荷制限、あるいは堆肥の流通自粛が行われ、汚染地域の大家畜生産は甚大な経済的損失を被った。この事故から大気中に放出された放射性核種には、30年の物理学的半減期（IAEA, 1989）を有する ^{137}Cs が含まれているため、長期的に農作物汚染が継続することが予想されている。その影響は事故発生から10年目となる2020年においても原子力災害対策特別措置法に基づく原子力緊急事態宣言は継

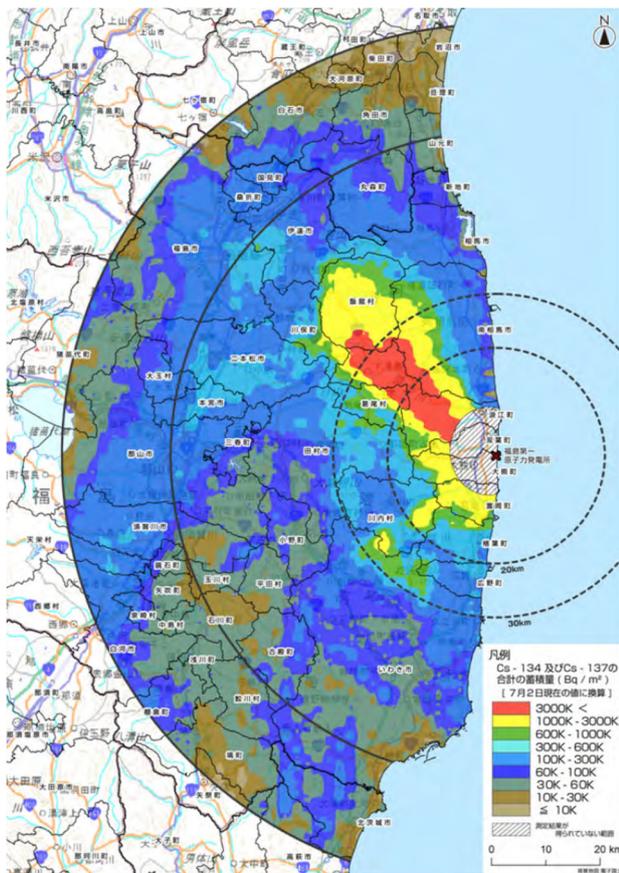


Figure 1-1 Distribution map of radiation dose by the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (2011).

* Revision of aircraft monitoring results based on the results of the creation of soil concentration map of radiocesium (MEXT, 30. August. 2011).

続され、家畜の移動制限のほか、原乳の出荷制限地域が一部設定されたままとなっている（厚生労働省, 2020）。

福島第一原発事故直後の2011年4月には、農林水産省から「原子力発電所事故を踏まえた粗飼料中の放射性物質の暫定許容値の設定等について」が通知され、乳用の経産牛および初回交配以降のウシに給与される粗飼料に含まれることが許容される放射性セシウム（Cs）は最大で300 Bq/kg 原物重（以下, Bq/kg-fresh）に制限された。2012年2月には、食品衛生法に基づく乳の放射性Csに関する基準値が新たに50 Bq/kg-freshに定められた（厚生労働省, 2012）ため、泌乳牛向け粗飼料の放射性Cs濃度の暫定許容値が100 Bq/kg（水分含有量80%換算）以下、すなわち500 Bq/kg 乾物重（以下, Bq/kg-dry）に再設定された（農林水産省, 2012）。福島第一原発事故で自然界に放出された放射性物質は、主として半減期が2.07年の ^{134}Cs と30.1年の ^{137}Cs であり、 ^{131}I の8日と比較して長期的な問題となる（IAEA, 1989）。

Tsuiki and Maeda (2012a; 2012b) は、草地における放射性Cs汚染は不均一に汚染されることを報告しており、放射性Cs濃度が500 Bq/kg-dry未滿の飼料を給与していても、意図せずに暫定許容値を上回る放射性Csを含む飼料が給与されてしまう可能性がある。また、Beresford *et al.* (1992) は、摂取した ^{137}Cs の家畜体内への吸収は、植生や草種の違い、土壌混入の有無により異なることを実証している。不均一な草地汚染と体内吸収の異なる放射性Csの混在は、同一ほ場で収穫・調製される粗飼料のなかにも、放射性Cs濃度が異なり、かつ、体内への吸収が異なる粗飼料があることを意味し、飼料から乳への放射性Cs移行は変動することを示している。

土壌から牧草への放射性Cs移行抑制対策は、草地や飼料畑の表土剥ぎによる除染、プラウ耕やロータリー耕による放射性Csを地中へのすき込みを実施している。また、カリ質肥料の増肥により、植物体への放射性Csの吸収を抑制させる対策を同時に実施しているが、表土が薄い草地や除染のための重機の乗り入れできない地形の草地などは未除染のままであり、吸収抑制対策も実施できない状態になっている。さらに、山林の多くは未除染であり、山林に隣接する牧草地は、山林からの放射性Csを含む落葉などの混入や土壌が牧草地内に流入する状態になっている。

このように、放射性Csを人為的に自然環境から完全に排除することは困難であることから、放射性Cs汚染地域における酪農復興のためには、放射性Csの規制基準に合致した粗飼料および食品衛生法の基準値を下回る乳を安定的に生産するための技術確立が強く求められている。さらに、泌乳牛の消化管内に取り込まれた放射性Csの排出を促進して体内からの被曝を最小限にすると共に、放射性Cs濃度が50 Bq/kg-fresh未滿の乳生産を安定的に行うために、飼料から乳への

放射性Csの移行を抑制する技術が必要になっている。

1.2 福島県内の飼料生産と乳生産への影響

2012年の福島県が行う飼料作物における緊急時環境放射線モニタリング検査(以下、モニタリング検査)では、除染済みの草地や飼料畑から生産された粗飼料の放射性Csが未検出である割合は59.5%であり、放射性Csを含む飼料の割合は、50–150 Bq/kg-dryの濃度範囲では13.8%、150–500 Bq/kg-dryの濃度範囲では6.8%、500 Bq/kg-dryの濃度を超過するものは2.8%であった(福島県, 2019)。

政府は2011年7月に策定した「東日本大震災からの復興の基本方針」において、「復興・創生期間」を2021年3月までの10年間と定め、粗飼料への放射性Cs移行を抑制するために、草地の表面土壌の剥ぎ取りによる放射性Csの除去、カリ質肥料の増肥、低速で反復回数を増加させた土壌の耕起などに併せ、粗飼料を調製する際の土壌の混入防止などの放射性Cs移行抑制対策が継続的に行われてきた。

2019年にはモニタリング検査を受けた粗飼料における放射性Csが未検出である割合は75.6%となり、50–150 Bq/kg-dryの濃度範囲では24.2%、150–500 Bq/kg-dryの濃度範囲では0.2%と高い濃度の割合が大幅に減少し、500 Bq/kg-dryを超過する事例はなくなった(福島県, 2019)。しかし、筆者らの調査では、放射性物質が除染されておらず畜産農家が利用していない草地において、暫定許容値を超過する放射性Csを含む牧草が確認されている。

一方、避難指示等区域(経済産業省, 2011)を除き、酪農経営が継続可能であった地域で生産された乳は、2011年4月25日以降のクーラーステーションや乳業施設におけるモニタリング検査では、放射性Csは検出されていない(福島県, 2019)。しかし、三橋(1996)やTakahashi *et al.*(2012)は、牛が放射性Csを含む飼料を摂取した場合、放射性Csはすみやかに乳に移行して検出されることを報告している。

佐伯ら(1994)は、乳から脱脂粉乳に加工する場合の¹³⁷Csの移行率は84.5%であると報告している。このことは、無脂固形分8.3%の乳から脱脂粉乳を1 kg製造するためには、12.1 kgの乳が必要となり、脱脂粉乳1 kg中の¹³⁷Csの濃縮倍率は10.2倍(12.1×0.845≒10.2)になることを示している。放射性Cs濃度が10 Bq/kg-freshの乳から製造された脱脂粉乳は、食品衛生法で定める食品の基準値である100 Bq/kg-fresh(厚生労働省, 2012)を超過することを意味する。このことから、指定生乳生産者団体および乳業者は、酪農家に対して放射性Cs濃度が10 Bq/kg-fresh未満の乳生産を強く求めている。

生乳受託販売取引を行う酪農団体は、乳の放射性Cs濃度を10 Bq/kg-fresh未満とするため、2013年に原発事故損害賠償対策酪農団体協議会の「生乳の放射性物質監視体制並びに自主管理基準」において、粗飼料中に許容される放射性Cs濃度を30 Bq/kg(水分含有量

80%換算) = 150 Bq/kg-dryと設定し、震災後10年目となる2020年においてもその基準を維持している。

このことから、暫定許容値未満の粗飼料や意図せず暫定許容値を超過した粗飼料が摂取された場合でも、放射性Cs濃度が10 Bq/kg-fresh未満の乳生産が可能となる技術開発と乳への放射性Cs移行のリスクを低減した泌乳牛の飼養管理が課題となっている。

1.3 これまでの研究

これまでの放射性物質の環境内循環における試験研究は1950年代から1960年代に行われた核実験により放出された放射性物質のグローバルフォールアウトを利用して行われてきた。その後、自然環境下に広く拡散した放射性物質に関する研究は、1986年のチェルノブイリ原子力発電所事故に関わるものを中心に、欧州の広範囲に及ぶ放射性Csの汚染に対して、自然環境中からの放射性Csの除去や移行抑制する技術として、ゼオライト、ベントナイト、パーミキュライトなどの粘土鉱物やプルシアンブルー(PB)化合物など様々な放射性物質吸着剤が検討された(Unsworth *et al.*, 1989; IAEA, 2006; Howard *et al.*, 2009a, 2009b)。

家畜への放射性物質吸着剤の影響については、乳牛(Johnson *et al.*, 1968; Arnaud *et al.*, 1988; Giese, 1989; Unsworth *et al.*, 1989; Voigt *et al.*, 1989)、ヒツジ(Phillippo *et al.*, 1988; Kaikkonen, 2000)、およびトナカイ(Birgitta *et al.*, 1990; Hove, 1993)などで調査され、粘土鉱物やPBは消化管で摂取した放射性Csを吸着して放射性Csを吸収抑制するために用いられてきた(Arnaud *et al.*, 1988; Giese, 1989; Unsworth *et al.*, 1989; Trckova *et al.*, 2004)。これらの放射性Cs吸着剤を用いて飼料から畜産生産物への移行性について検討され、放射性Cs吸着剤を飼料に混合して家畜に投与することにより、消化管内で吸着された放射性Csは、糞として排出が促進され、畜産生産物への放射性Csの移行抑制に有用であると報告されている(Unsworth *et al.*, 1989)。

放射性Cs吸着剤となり得るゼオライトやベントナイトは日本国内において飼料や土壌改良資材として流通しており、ゼオライトは酪農場において使用頻度が比較的高く、使用しやすい状況にある。一方、PBは、比較的安価で大量に入手可能な顔料であり、Csに特異的な吸着性があることが示されている(Voigt, 1993)。また、ヒトにおける放射性Csの体外除去剤としての医薬品が認可されている(Padiogardase; 日本メジフィジックス株式会社, 東京)。あわせて、福島第一原発事故の汚染水処理にも使用され、放射性Csの吸着効果があることが実証されている。

ゼオライトはイオン交換能を持ち、ゼオライトが自らの持つアルカリ金属イオンを放出し、Csを吸着すると示唆されている(Nikolai, 1995)。しかし、ゼオライトは、家畜に摂取された際に生体のミネラルも吸着してしまい、ミネラル損失の原因となることが示唆され

ている (Giese, 1989; Jacob *et al.*, 2001; Trckova *et al.*, 2004)。一方、PB は、一般的にはヘキサシアノ鉄酸塩と呼ばれ、日本国内において農業利用は認められていないが、ゼオライト等の粘土鉱物と比較して、放射性 Cs を選択的に吸着する働きがあると報告されている (Giese, 1988)。このように、ゼオライトや PB は、泌乳牛における放射性 Cs の飼料から乳への移行を抑制し、酪農の復興・再開のための安定的な乳生産に有効であることが示唆されている。

飼料から乳への放射性 Cs の移行については、Howard *et al.* (2009b) によって、牧草地の植生の違い、葉面吸収と経根吸収の違い、汚染土壌の有無といった環境中の放射性 Cs 供給源を用いて、家畜の消化管から体内への放射性 Cs の動態が調査され、放射性 Cs 供給源により異なることが実証されている。Mayes *et al.*

(1996) は、放射性 Cs の体内への吸収はその形態によって変化し、イオンの形態で家畜に与えられたときに最も高いと報告している。また、粗飼料と濃厚飼料の給与量の違いにより、乳への放射性 Cs の移行が異なることが報告されている (Stewart *et al.*, 1965; Johnson *et al.*, 1968)。放射性 Cs に汚染された粗飼料が家畜に摂取されるまでには、様々な放射性 Cs 供給源と形態での供給が想定され、飼料から家畜への放射性 Cs の移行が大きく変動することが示唆されている。

飼料から乳への放射性 Cs の移行評価指標は、国際原子力機関 (IAEA, 2010) が、飼料から乳への放射性 Cs の移行係数 (Fm) の最小値、最大値および平均値は、それぞれ 6.0×10^{-4} 、 6.8×10^{-2} および 4.6×10^{-3} と公表している。また、IAEA (2010) は移行評価指標の一つとして、飼料と乳の放射性 Cs 濃度の比 (CR) を最小値、最大値および平均値は、それぞれ 3.6×10^{-3} 、 6.9×10^{-1} および 1.1×10^{-1} と示している。しかし、Howard *et al.* (2009a) は、Fm や CR といった飼料から乳への放射性 Cs の移行の評価指標は、同一飼料を用いても 2 桁の違いが現れることを報告している。このことは、これらの各指標は、いずれも最小値と最大値には大きな違いがあることに加え、各指標が異なる結果を示してしまうことを意味し、安定的に放射性 Cs 濃度が 10 Bq/kg-fresh 未満の乳生産を行うためには、移行評価指標の範囲と変動幅を明確にすることが課題となっている。

しかし、これまでに放射性 Cs 吸着剤や移行評価指標の実証に用いられた飼料の放射性 Cs 濃度は、日本の暫定許容値を大きく上回るものであり、福島第一原発事故により放出された放射性 Cs の影響や日本の酪農を行う環境下における放射性 Cs 濃度での評価指標は明らかにはなっていない。また、安定的に放射性 Cs 濃度が 10 Bq/kg-fresh 未満の乳を生産するための、放射性 Cs 吸着剤の使用による移行抑制の有効性、放射性 Cs の乳への移行に影響する要因、放射性 Cs 移行の評価指標の検討はなされていない。

暫定許容値未満の放射性 Cs を含む飼料から畜産生

産物への放射性 Cs の移行とその要因解析は、今後の泌乳牛の内部被曝防止と乳への放射性 Cs 移行抑制の考え方に大きく寄与するものであり、意図せず暫定許容値を上回る放射性 Cs 濃度の飼料が摂取された場合のリスク管理と 10 Bq/kg-fresh 未満の安定した乳生産に寄与するものである。

1.4 本研究の目的

原子力緊急事態宣言により、家畜の移動制限や原乳の出荷制限が継続されている地域があるなか、酪農の継続または再開のためには、泌乳牛の消化管内に取り込まれた放射性 Cs の排出を促進して体内からの被曝を最小限にする必要がある。また、意図せず暫定許容値を超過した飼料を給与した場合に対して安定的に放射性 Cs を移行抑制させる乳生産の技術確立が必要である。さらに、日本において販売可能な牛乳の放射性 Cs 濃度は食品衛生法における基準値で 50 Bq/kg-fresh に定められていることから、基準を満たす乳生産に加え、国内の乳業者が求める放射性 Cs 濃度が 10 Bq/kg-fresh 未満の乳を生産する技術を明らかにする必要がある。このためには、放射性 Cs 吸着剤を用い、消化管内で遊離する (Leggett *et al.*, 2003) と考えられる放射性 Cs を吸着して排出させ、体内への吸収を抑制することにより乳への移行を抑制させることが有効であると考えられる。しかし、これまでの得られた知見は、日本と異なる環境で生産された飼料で暫定許容値を大きく上回る飼料の放射性 Cs 濃度で得られたものあり、日本の暫定許容値未満の放射性 Cs 濃度での知見は少なく、放射性 Cs 濃度が 10 Bq/kg-fresh 未満の乳を生産するための放射性 Cs 吸着剤の使用については検討されていない。

このことから、本研究では、泌乳牛の消化管内に取り込まれた放射性 Cs の排出を促進して体内からの被曝を最小限にすると共に、泌乳牛における乳へ放射性 Cs 移行を抑制し、食品衛生法における乳の放射性 Cs 濃度の基準値である 50 Bq/kg-fresh 未満の乳生産を行うことを目的に実施した。また、放射性 Cs 吸着剤の特性と移行評価指標の変動要因を明らかにし、国内の乳業者が求める放射性 Cs 濃度が 10 Bq/kg-fresh 未満の乳生産を行うための飼料給与方法を明らかにすることを目的に実施した。

1.5 論文の構成

本研究は、第 2 章において、放射性 Cs を含む飼料を給与する飼養試験の飼料馴致期間を設定するために、放射性 Cs の乳への移行と平衡状態に達する放射性 Cs 濃度の推移を調査した。第 3 章では、乳牛における飼料から乳への放射性 Cs 移行抑制に対するゼオライトの効果について、第 4 章では、乳牛における飼料から乳への放射性 Cs 移行抑制に対する PB 含有固形塩の効果について、第 5 章では、第 3 章および第 4 章で使用した乳牛の結果を解析し、放射性 Cs 吸着剤

による乳の放射性 Cs 濃度に影響を及ぼす要因を検討した。第6章では、放射性 Cs を含む飼料を中断して放射性 Cs を含まない飼料に切替えた後の乳の放射性 Cs 濃度の推移を調査した (Figure 1-2)。

第7章では、第3章から第6章の結果をもとに、飼

料の放射性 Cs と乳の放射性 Cs の関係、放射性 Cs 排出の重要性、飼料から乳への放射性 Cs 移行の要因と特徴、放射性 Cs 移行抑制効果のゼオライトと PB の比較および放射性 Cs 濃度が 10 Bq/kg-fresh 未満の乳を生産するための泌乳牛の飼養方法について考察した。

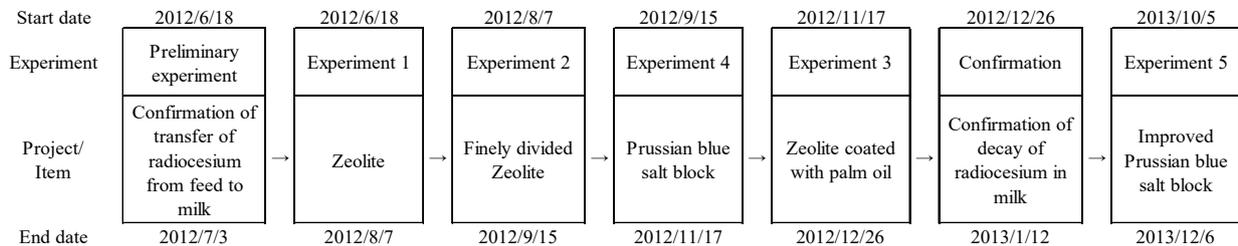


Figure 1-2 Order of conduct of experiments in this study.

第2章 放射性セシウムの飼料から乳への移行確認

2.1 緒言

飼料から乳への放射性 Cs 移行に関しては多くの報告がなされているが、福島第一原発事故において拡散された放射性物質がフォールアウトにより直接牧草に沈着し、さらにフォールアウトが継続する中で収穫・調製された粗飼料の放射性 Cs のトレーサビリティの実態は十分に把握されておらず、今後の確認は難しくなるものと考えられる。

このことから、放射性 Cs が飼料から乳へどのような移行を示し、平衡に達するまでの時間について経時的な確認が必要となる。本研究では、放射性 Cs の飼料から乳への移行と平衡状態を確認し、第3章以降で実施する飼養試験における放射性 Cs を含む飼料の馴致期間を設定することを目的に予備試験を行った。

2.2 材料および方法

第2章は、福島県農業総合センター畜産研究所(福島県福島市)において、福島県農業総合センター専門別検討会の承認(2012-E1-5-9-3)を得て、産業動物の飼養および保管に関する基準(昭和62年10月9日総理府告示第22号)に準拠して実施した。

2.2.1 乳への放射性セシウム移行確認試験

2012年6月18日から7月3日の15日間実施した。これまで放射性 Cs を含む飼料を摂取していない泌乳牛1頭に対して放射性 Cs を含む飼料を給与し、放射性 Cs の飼料から乳への経時的な移行と放射性 Cs の平衡状態を確認する試験を行った。

2.2.1.1 供試飼料

供試飼料は、福島県農業総合センター畜産研究所の圃場(福島第一原子力発電所から北西に68km; 福島市)において、2010年9月15日に播種し、福島第一原発事故のフォールアウトにより放射性 Cs が直接茎葉や土壌に沈着し、かつフォールアウトが継

続している圃場において、2011年5月16日に収穫・調製した放射性 Cs 濃度が 13,160 Bq/kg-dry のペレニアルライグラス (*Lolium perenne* L.) サイレージを用いた。また、2011年9月14日に調製した放射性 Cs 濃度が 15 Bq/kg-dry のトウモロコシ (*Zea mays* L.) サイレージを飼料に用いた。さらに、放射性 Cs を含まないオーツ (*Avena sativa* L.) 乾草、アルファルファ (*Medicago sativa* L.) 乾草および配合飼料を飼料会社から購入して試験に供した。これらの飼料を用いて放射性 Cs 濃度が飼料の暫定許容値(農林水産省, 2012)の1/2の濃度となる 250 Bq/kg-dry (50 Bq/kg (水分含有量 80%換算))になるように供試飼料を設計した。この供試飼料は、日量 35 kg 泌乳のための正味エネルギー (NEL)、可消化養分総量 (TDN) ならびに粗タンパク質 (CP) の要求量を満たすように完全混合飼料 (TMR) に調製した (NRC, 1988; NARO, 2006)。

2.2.1.2 給与試験および試料採取

供試動物としてこれまで放射性 Cs を含まない飼料で飼養されていたホルスタイン種泌乳牛1頭(体重 721 kg、産次 3 産、分娩後日数 98 日)を用い、個別ストールにスタンションで係留して飼養した。供試飼料は給与量の 10%程度を食べ残すように調整し、8:00 と 16:00 に1日量の半分ずつ動物に給与した。残飼は朝の給与前に全て回収した。放射性 Cs を含まない水はウォーターカップで自由に摂取させた。また、固形塩(ボビリックス P; 日本全薬工業株式会社, 福島)は自由に摂取させた。実験期間は、放射性 Cs を摂取してから約 12 日後に乳の放射性 Cs 濃度が平衡化したとする既知の報告 (Takahashi *et al.*, 2012) および牛の新たな給与飼料を調整するために少なくとも 10~14 日が必要であり、その後、反すう動物の消化試験のために 5~10 日の収集期間が必要であると提案した (Cochran and Galyeen, 1994) 既知の報告に基づいて設定した。搾乳は 8:30 と 16:

30 に行い、乳の放射性 Cs の移行と平衡状態を確認するために、給与直後 (0 日後)、1、3、5、7、9、11、13、15 日後に乳量を計測した。なお、朝夕の採取した乳を乳量に対して一定の割合で混合して、放射性 Cs 分析用の試料とした。予備試験期間中は、給与量および残飼量を毎日秤量し、乾物摂取量を求めた。

2.2.1.3 試料の分析

飼料原料および給与飼料は 60°C、72 時間の通風乾燥機で予備乾燥させ、1 mm スクリーンをつけた粉砕機 (SM2000 パワーカッティングミル; 株式会社 レッチェ, 東京) で粉砕し、分析に供した。粉砕した試料は 135°C2 時間乾燥法で乾物 (DM)、600°C2 時間灰化で粗灰分、粗脂肪はジエチルエーテル抽出法 (AOAC, 2000) で算出した。CP をケルダール法 (AOAC, 2000) で、粗灰分を含まない中性デタージェント繊維 (NDFom) および酸性デタージェント繊維 (ADFom) はデタージェント分析法 (Van Soest *et al.*, 1991) でそれぞれ測定した。

2.2.1.4 試料の放射性セシウム濃度測定

放射性 Cs 濃度測定のために、乳 1,000 g は 200°C のホットプレートで水分除去した試料を用いた。また、供試飼料および残飼は 60°C の通風乾燥機で、水分除去したものをを用いた。いずれの測定試料も 100 ml の U8 容器 (ポリプロピレン製; 径 55 mm × 60 mm) を用いて測定に供した。放射性物質の測定は、高純度ゲルマニウム半導体検出器 (GEM40-76; セイコー・イーザーアンドジー株式会社, 東京) を用いたガンマ線スペクトロメトリーにより放射性 Cs を同定した。

ガンマ線の定量は、¹³⁴Cs は 604 keV を、¹³⁷Cs は 661 keV とし、IAEA-444 (Shakhashiro and Sansone, 2010) と IAEA-372 (Martin and Shakhashiro, 2010) を標準線源として用いた。効率調整は東北大学電子光理学研究センター (宮城県仙台市) に依頼した。放射性 Cs 濃度は、十分な計数値が得られるように、飼料は 10,800 秒および乳は 14,400 秒の測定を行い、計数値積算法 (Covell, 1959) で算出した。放射性 Cs 濃度は ¹³⁴Cs と ¹³⁷Cs を合算したものとした。

2.3 結果

2.3.1 乳への放射性セシウム移行確認試験

2.3.1.1 供試飼料の成分および化学成分

供試飼料の配合割合と化学成分を Table 2-1 に示した。TMR の乾物率、TDN、CP および NDFom 含量は、それぞれ 73.0%、65.4%、16.0% および 51.6% であった。TMR の乾物中の放射性 Cs 濃度は 202 Bq/kg-dry、水分含有量を 80% に換算した放射性 Cs 濃度は 40 Bq/kg であった。

2.3.1.2 放射性セシウムを含む飼料給与による乳への放射性セシウムの移行

放射性 Cs を含む TMR を給与し、放射性 Cs を平均 4,311 Bq/日摂取させると放射性 Cs は給与 1 日目

で乳に移行した。乳の放射性 Cs 濃度は、3 日後で最高の 23.5 Bq/kg-fresh となり、それ以降、15 日後まで 20 Bq/kg-fresh 程度の濃度で平衡状態となった (Figure 2-1)。

Table 2-1 Ingredients and chemical composition of total mixed rations in preliminary experiment of transfer of radiocesium from feed to milk.

Ingredients (% dry)	
Concentrate mix pellet ¹⁾	34.5
Oat hay	29.2
Alfalfa hay	29.1
Corn silage ²⁾	6.4
Perennial ryegrass silage ²⁾	0.8
Chemical composition	
Dry matter (%)	73.0
Net energy lactation (Mcal/kg-dry)	1.48
Total digestible nutrients (% dry)	65.4
Crude protein (% dry)	16.0
NDFom ³⁾ (% dry)	51.6
ADFom ⁴⁾ (% dry)	29.2
Ether extract (% dry)	4.0
¹³⁴⁺¹³⁷ Cs ⁵⁾ (Bq/kg-dry)	202
¹³⁴⁺¹³⁷ Cs ⁵⁾ (Bq/kg in 80% moisture content)	40

¹⁾ Contained 36.5% corn grain, 20.2% soybean meal, 19.5% wheat bran, 18.0% beet pulp, 3.2% molasses, 1.0% dicalcium phosphate, 1.0% salt, and 0.6% calcium carbonate.

²⁾ Radiocesium activity concentrations of corn silage and perennial ryegrass silage were 15 Bq and 13,160 Bq/kg dry weight, respectively.

³⁾ Neutral detergent fiber not assayed with a heat stable amylase and expressed exclusive of residual ash.

⁴⁾ Acid detergent fiber expressed exclusive of residual ash.

⁵⁾ Radiocesium activity concentration was calculated by summing ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs.

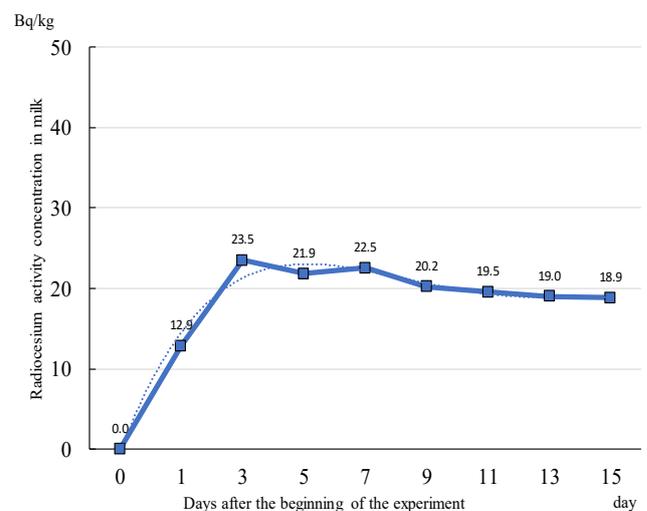


Figure 2-1 Transfer of radiocesium in milk after the beginning of the experiment.

2.4 考察

2.4.1 乳への放射性セシウム移行に及ぼす影響

本研究では、飼料の放射性 Cs 濃度が 202 Bq/kg-dry の TMR を給与し 4,311 Bq/日摂取させた場合、1 日後から乳への放射性 Cs の移行が見られ、3 日まで濃度が増加し、放射性 Cs 濃度は 20 Bq/kg-fresh 前後を推移し、11 日目には平衡状態となった (Figure 2-1)。三橋 (1996) は、約 50 Bq/日の飼料を摂取させた場合、乳の放射性 Cs 濃度は 6 日まで一定速度で増加し、最大 200 mBq/kg-fresh 程度となり、平衡になることを報告している。また、Takahashi *et al.* (2012) は、15,012 Bq/日の飼料を給与させた場合、放射性 Cs 濃度は 4 日目まで急激に増加し、35 Bq/kg-fresh 程度となり、12 日後に平衡状態になったことを報告している。

これらのことから、放射性 Cs を含む飼料を摂取した場合、飼料中の放射性 Cs は速やかに乳へと移行すると推察された。また、乳の放射性 Cs 濃度は放射性 Cs 摂取量によって影響を受けるが、乳の放射性 Cs 濃度が安定するまでの期間は放射性 Cs 摂取量の影響に関係なく、摂取から 11 日目で安定すると推察された。放射性 Cs を使用した消化試験を実施する場合も、ウシに新たな飼料を給与する場合は、調整期間として少なくとも 10~14 日が必要であり、その後の消化試験のために 5~10 日の収集期間が必要であるとの既知の報告 (Cochran and Galyean, 1994) と同様に、放射性 Cs を用いる飼養試験の飼料馴致期間は 14 日程度で十分であると考えられた。

第3章 ゼオライトによる泌乳牛における乳への放射性セシウム移行抑制

3.1 緒言

粘土鉱物の一種であるゼオライトは、陰イオン性の骨格からなるトンネル状の空隙構造を持ちアルミノケイ酸塩と呼ばれる (Baerlocher *et al.*, 2007; 山口ら, 2012) (Figure 3-1)。ゼオライトはイオン交換能を持つため、農業分野では土壌改良資材として、また、畜産分野では飼料用の資材としてアンモニアの除去、カビ毒吸着などに用いられている (Mumpton, 1999)。また、そのイオン吸着機能を利用して、放射性廃棄物から放射性物質を除去する処理にも用いられ、粒径の制御、再結晶化により、吸着能力の効率化が図られている (Wakihara and Tatami, 2013)。そのうち、ゼオライトが放射性 Cs の吸収を確認した動物実験では、ラットにおいて小腸と回腸が放射性 Cs の吸収および排出において最大の役割を果たしており、ゼオライトがその再吸収を抑制することが報告されている (Majle *et al.*, 1991)。また、大家畜における放射性物質の吸着については、乳牛において 10,000 Bq/日以上の放射性 Cs を摂取させる条件で、飼料から

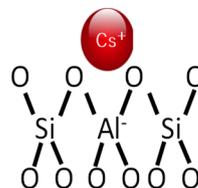
乳への移行性を検討し、ゼオライトを飼料に混合して投与すると放射性 Cs の乳への移行が抑制されると報告されている (Unsworth *et al.*, 1989)。しかし、これらの実証に用いられた飼料の放射性 Cs 濃度は、日本の暫定許容値を大きく上回るものであった。また、ゼオライトの分子構造は一定ではなく、産地の違い、粒子の大きさの違い、合成物と天然物での組成の違いなどによって吸着能力に差があり、吸着目的とする放射性 Cs の濃度や酸性度によって吸着性能が変化することが示されている (Baerlocher *et al.*, 2007; NIMS, 2012)。

著者らの研究グループでは、ウシに給与可能な飼料として流通しているゼオライト 5 製品について、放射性 Cs を含む飼料を摂取したウシの胃液に各製品を加え、嫌気条件下で培養したものを固液分離し放射性 Cs を分析することで、放射性 Cs の吸着能力の高い製品の種類を明らかにした (生沼ら, 2012)。また、竹中 (2012) は、25,000 Bq/日以上放射性 Cs を含む飼料を摂取した泌乳牛に対してそれらのゼオライトの投与が、尿への放射性 Cs の移行を抑制すると報告している。

しかし、福島第一原発事故によって汚染された暫定許容値を超過する放射性 Cs 濃度の飼料を泌乳牛に給与することによって放射性 Cs が乳に検出されることは報告されているが (橋本ら, 2011; 小林ら, 2012)、放射性 Cs 濃度が暫定許容値未満である飼料を給与した場合において、ゼオライトが飼料から乳への放射性 Cs の移行抑制に有効であるか否かの報告はなされていない。また、ゼオライト粒子の大きさの違いによる乳の放射性 Cs 移行抑制の報告はなされていない。さらに、大家畜における放射性 Cs の吸収と体内で分泌と再吸収についても明らかになっていない。

本研究では、放射性 Cs の暫定許容値である 500

Structural formula



Various structural diagrams ¹⁾

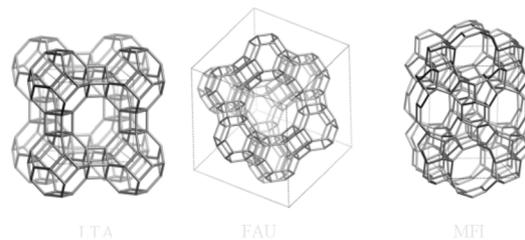


Figure 3-1 Structural formula and structural diagrams of various zeolite.

¹⁾ Baerlocher *et al.* (2007).

Bq/kg-dry 未満の放射性 Cs を含む自給飼料を摂取する泌乳牛が生産した乳の放射性 Cs 移行を低減させる給与技術を開発し、10 Bq/kg-fresh 未満の乳生産を目的に、第1試験では、泌乳牛における放射性 Cs の飼料から糞、尿および乳への移行に対するゼオライトの効果を検討した。また、第2試験では、微粒子化することにより通常の飼料用ゼオライトと比較して単位重量当たりの表面積（比表面積）を200倍以上大きくした微粒子ゼオライトが飼料から乳への放射性 Cs 移行に対する効果を検討した。第3試験では、不飽和度の高い油脂が、ウシ消化管のうち pH の高いルーメン内では分解されずに pH の低い下部消化管で分解される特性を利用し、パーム油でゼオライトを被覆することにより、ルーメン内を通過して下部消化管でイオン吸着能力を発現すると考えられるゼオライト（油脂被覆ゼオライト）および第1試験より少量のゼオライトについて、飼料から乳への放射性 Cs 移行に対する効果を検討した。

3.2 材料および方法

第3章では第1試験から第3試験の3つの飼養試験を実施したが、いずれも福島県農業総合センター畜産研究所（福島県福島市）において、福島県農業総合センター専門別検討会の承認（2012-EI-5-9-3）を得て、産業動物の飼養および保管に関する基準（昭和62年10月9日総理府告示第22号）に準拠して実施した。

3.2.1 ゼオライト投与試験（第1試験）

放射性 Cs の飼料から乳への経時的な移行と放射性 Cs の平衡状態を確認する試験および放射性 Cs の飼料から糞、尿および乳への移行に対するゼオライトの影響を確認する試験を2012年6月18日から8月7日の50日間実施した（生沼ら，2013）。

3.2.1.1 供試飼料

第1試験における供試飼料は、2.2.1.1. 供試飼料と同じ飼料を用いて放射性 Cs 濃度が飼料の暫定許容値（農林水産省，2012）の1/2の濃度となる250 Bq/kg-dry（50 Bq/kg（水分含有量80%換算））になるように設計した（Table 3-1）。これらの供試飼料は、日量35 kg 泌乳のための NEL、TDN ならびに CP 要求量を満たすように TMR に調製した（NRC，1988；NARO，2006）。

3.2.1.2 給与試験および試料採取

供試動物としてこれまで放射性 Cs を含まない飼料で飼養されていたホルスタイン種泌乳牛3頭（平均体重 652±60 kg，平均産次 3.0±1.0 産，平均分娩後日数 133±30 日）を用い、個別ストールにスタンションで係留して飼養した。供試飼料は給与量の10%程度を食べ残すように調整し、8:00と16:00に1日量の半分ずつ動物に給与した。残飼は朝の給与前に全て回収した。放射性 Cs を含まない水はウォーターカップで自由に摂取させた。また、固形塩

（ボビリックス P；日本全薬工業株式会社，福島）は自由に摂取させた。搾乳は8:30と16:30に行い、乳量を計測した。

試験区として、何も添加しない対照区（CONT1）、ゼオライトを1日当たり原物で200 g 投与した区（Zeo200g）あるいは400 g 投与した区（Zeo400g）の3区を設定し、1期が予備期14日、本研究期3日からなる3×3ラテン方格法により給与試験を実施した。ゼオライト投与量は、ゼオライト投与により尿の放射性 Cs 濃度の低下を確認した竹中（2012）およびゼオライトがルーメンジュースの放射性 Cs 吸着を確認した生沼ら（2012）の報告に基づいて設定した。実験期間は、第2章の2.3.1.2 結果に基づき設定した。なお、ゼオライトは生沼ら（2012）の報告において放射性 Cs の吸着能力が最も高いとされた粘土鉱物のクリノプチロライト（含水アルミノケイ酸ナトリウム・カルシウム）で表面積が40 m²/gである飼料用のゼオライト（フィードボンド；出光興産，東京；アルミノケイ酸塩ナトリウム）を用いた。このゼオライトを投与した区では、1日投与量のゼオライトを半分ずつ TMR に混合して2回に分けて投与した。なお、乳の放射性 Cs の移行と平衡状態を確認するために、投与直後（0日後）、1、3、5、7、9、11、13、15、16、17日後に乳量を計測した。また、朝夕の採取した乳を乳量に対して一定の割合で混合して、放射性 Cs 分析用の試料とした。

Table 3-1 Ingredients and chemical composition of total mixed rations used in experiment 1.

Ingredients (% dry)	
Concentrate mix pellet ¹⁾	34.5
Oat hay	29.2
Alfalfa hay	29.1
Corn silage ²⁾	6.4
Perennial ryegrass silage ²⁾	0.8
Chemical composition	
Dry matter (%)	73.0
Net energy lactation (Mcal/kg-dry)	1.48
Total digestible nutrients (% dry)	65.4
Crude protein (% dry)	16.0
NDFom ³⁾ (% dry)	51.6
ADFom ⁴⁾ (% dry)	29.2
Ether extract (% dry)	4.0
¹³⁴⁺¹³⁷ Cs ⁵⁾ (Bq/kg-dry)	202
¹³⁴⁺¹³⁷ Cs ⁵⁾ (Bq/kg in 80% moisture content)	40

¹⁾ Contained 36.5% corn grain, 20.2% soybean meal, 19.5% wheat bran, 18.0% beet pulp, 3.2% molasses, 1.0% dicalcium phosphate, 1.0% salt, and 0.6% calcium carbonate.

²⁾ Radiocesium activity concentrations of corn silage and perennial ryegrass silage were 15 Bq and 13,160 Bq/kg dry weight, respectively.

³⁾ Neutral detergent fiber not assayed with a heat stable amylase and expressed exclusive of residual ash.

⁴⁾ Acid detergent fiber expressed exclusive of residual ash.

⁵⁾ Radiocesium activity concentration was calculated by summing ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs.

本研究期間中には、給与量および残飼量を毎日秤量し、乾物摂取量を求めた。乳を搾乳時に採取し、朝夕の採材物を乳量に対して一定の割合で混合して、成分分析用の試料とした。糞および尿のすべてを分離採取した。糞はよく攪拌後、縮分して72時間の通風乾燥機で予備乾燥させたのち、見かけの乾物消化率を求めた。血液は本研究期の1、3、5日目の13:00に頸静脈より採血し、試料の一部を2,150×Gで15分間遠心分離後、血清を代謝産物測定試料とした。また放射性Cs濃度測定試料のため、採血バッグ(テルモ血液バッグPCD; テルモ株式会社, 東京)に200 mL採血し-20°Cで冷凍保存した。

3.2.1.3 試料の分析

乳の成分(脂肪, タンパク質, 無脂固形分, 乳糖, 尿素窒素)は、コンビフォス FT+500(フォスジャパン, 東京)で分析した。飼料原料、供試飼料、残飼および糞は60°C、72時間の通風乾燥機で予備乾燥させ、1 mmスクリーンをつけた粉碎機(SM2000 パワーカッティングミル; 株式会社レッチェ, 東京)で粉碎し、分析に供した。粉碎した試料は135°C2時間乾燥法でDM、600°C2時間灰化で粗灰分、粗脂肪はジエチルエーテル抽出法(AOAC, 2000)で算出した。試料のCPをケルダール法(AOAC, 2000)で、NDFomおよびADFomはデタージェント分析法(Van Soest *et al.*, 1991)でそれぞれ測定した。

3.2.1.4 試料の放射性セシウム濃度測定

放射性Cs濃度測定のために、乳1,000 g、血液500 gおよび尿2,000 gは200°Cのホットプレートで水分除去した試料を用いた。また、供試飼料、残飼および糞は60°Cの通風乾燥機で72時間、水分除去したものをを用いた。いずれの測定試料も100 mlのU8容器(ポリプロピレン製; 径55 mm×64 mm)を用いて測定に供した。放射性物質の測定は、高純度ゲルマニウム半導体検出器(GEM40-76; セイコー・イメージアンドジー株式会社, 東京)を用いたガンマ線スペクトロメトリーにより放射性Csを同定した。

ガンマ線の定量は、¹³⁴Csは604 keVを、¹³⁷Csは661 keVとし、IAEA-444(Shakhashiro and Sansone, 2010)とIAEA-372(Martin and Shakhashiro, 2010)を標準線源として用いた。効率調整は東北大学電子光学研究センター(宮城県仙台市)に依頼した。放射性Cs濃度は、十分な計数値が得られるように、飼料は10,800秒、乳は14,400秒、糞および尿は10,800秒、血液は36,000秒の測定を行った。放射性Cs濃度は¹³⁴Csと¹³⁷Csを合算したものとした。

3.2.1.5 放射性セシウムの移行に関する計算式

乳、糞または尿の放射性Cs濃度と乳量、糞量または尿量から算出したそれぞれの放射性Cs量と給与飼料の放射性Cs濃度と乾物摂取量から算出した摂取した放射性Cs量をもとに、下記の式により摂取された放射性Csの乳、糞または尿への分配率を算出した。

$$\text{分配率(\%)} = \frac{\text{乳、糞または尿の放射性Cs量(Bq/日)}}{\text{摂取した放射性Cs量(Bq/日)}} \quad (1)$$

糞の放射性Cs濃度および糞の排出量から算出した糞として排出された放射性Cs量と摂取した放射性Cs量から下記の式(Howard *et al.*, 2009b)を用いて放射性Csの見かけの吸収係数を算出した。

$$\text{見かけの吸収係数} = 1 - \frac{\text{糞として排出された放射性Cs量(Bq/日)}}{\text{摂取した放射性Cs量(Bq/日)}} \quad (2)$$

乳の放射性Cs濃度および給与飼料の放射性Cs濃度と乾物摂取量から算出した飼料中の放射性Cs量から移行係数および濃度比を算出した。飼料から乳への移行係数(Fm)は下記の式(Ward *et al.*, 1966; 佐伯ら, 1995)により算出した。

$$Fm = \frac{\text{乳の放射性Cs濃度(Bq/kg-fresh)}}{\text{摂取した放射性Cs量(Bq/日)}} \quad (3)$$

飼料と乳の濃度比(CR)は、下記の次の式(Howard *et al.*, 2009a)により算出した。

$$CR = \frac{\text{乳の放射性Cs濃度(Bq/kg-fresh)}}{\text{飼料の放射性Cs濃度(Bq/kg-dry)}} \quad (4)$$

3.2.1.6 統計解析

データは平均値±標準偏差で示した。ラテン方格法に基づき分散分析後、各処理間の平均値の差はTukeyの方法により検定した。2因子間の相関はピアソンの相関係数を用い、無相関の検定を行なった。統計解析は、エクセル統計2010(社会情報サービス, 東京)を用い検定した。危険率5%未満の場合に有意差があるものとみなした。また、危険率10%未満の場合は傾向があるものとした。

3.2.2 微粒子ゼオライト投与試験(第2試験)

微粒子化することにより通常の飼料用ゼオライトより単位重量当たりの表面積(比表面積)を200倍程度大きくした微粒子ゼオライトが放射性Csの飼料から乳への移行に対する影響を確認する試験を2012年8月7日から9月15日の39日間実施した。

3.2.2.1 供試飼料

第2試験における供試飼料は、2.2.1.1 供試飼料と同じ飼料を用いて放射性Cs濃度が飼料の暫定許容値(農林水産省, 2012)の1/2の濃度となる250 Bq/kg-dry(50 Bq/kg(水分含有量80%換算))になるように設計した(Table 3-2)。これらの供試飼料は、日量30 kg泌乳のためのNEL、TDNならびにCP要求量を満たすようにTMRに調製した(NRC, 1988; NARO, 2006)。

3.2.2.2 給与試験、試料採取、放射性セシウム濃度測定および統計解析

3.2.1 第1試験に引き続き、ホルスタイン種泌乳牛3頭(平均体重633±43kg, 平均産次3.0±1.0産, 平均分娩後日数182±30日)を用い、飼養方法、飼料給与方法および搾乳方法は、3.2.1 第1試験と同様の方法で実施した。

試験区として、何も添加しない対照区(CONT2)、3,000nm以下に粉砕した微粒子ゼオライト(ナノゼオライト; 株式会社ロゴストロン研究所, 山梨)を1日当たり原物で1.0g経口投与した区(NZeo1.0g)あるいはNZeo1.0g区と同様の微粒子ゼオライト1.0gを100mlの蒸留水に溶いて経口投与した区(NZeo100ml)の3区を設定した。微粒子ゼオライトは表面積が飼料用ゼオライトの200倍以上あるため、3.2.1 第1試験のゼオライト投与量の1/200の量とした。1期が予備期11日、本研究期3日からなる3×3ラテン方格法により給与試験を実施した。微粒子ゼオライトを投与した区では、1日投与量の微粒子ゼオライトを半分ずつ2回に分けて経口投与した。

試料採取、試料の分析、試料の放射性Cs濃度測定および統計解析は、3.2.1 第1試験と同様の方法で実施した。なお、糞および尿は可能な限り全量分離採取した。血液の採血は行わなかった。

3.2.3 油脂被覆ゼオライト投与試験(第3試験)

ルーメン内を通過して下部消化管でイオン吸着能力を発現すると考えられるパーム油で被覆処理したゼオライト(以下、油脂被覆ゼオライト)と第1試験の半量のゼオライトが放射性Csの飼料から乳への移行に対する影響を確認する試験を2012年11月17日から12月26日の39日間実施した。

3.2.3.1 供試飼料

第3試験における供試飼料は、2.2.1.1 供試飼料と同じものを用いて放射性Cs濃度が飼料の暫定許容値(農林水産省, 2012)の1/2の濃度となる250Bq/kg-dry(50Bq/kg(水分含有量80%換算))になるように供試飼料を設計した(Table 3-3)。この供試飼料は、日量30kg泌乳のためのNEL、TDNならびにCP要求量を満たすようにTMRに調製した(NRC, 1988; NARO, 2006)。

Table 3-2 Ingredients and chemical composition of total mixed rations used in experiment 2.

Ingredients (% dry)	
Concentrate mix pellet ¹⁾	30.6
Oat hay	30.6
Alfalfa hay	28.6
Corn silage ²⁾	9.4
Perennial ryegrass silage ²⁾	0.8
Chemical composition	
Dry matter (%)	76.3
Net energy lactation (Mcal/kg-dry)	1.45
Total digestible nutrients (% dry)	64.1
Crude protein (% dry)	15.3
NDFom ³⁾ (% dry)	53.6
ADFom ⁴⁾ (% dry)	30.3
Ether extract (% dry)	2.9
¹³⁴⁺¹³⁷ Cs ⁵⁾ (Bq/kg-dry)	95
¹³⁴⁺¹³⁷ Cs ⁵⁾ (Bq/kg in 80% moisture content)	19

¹⁾ Contained 36.5% corn grain, 20.2% soybean meal, 19.5% wheat bran, 18.0% beet pulp, 3.2% molasses, 1.0% dicalcium phosphate, 1.0% salt, and 0.6% calcium carbonate.

²⁾ Radiocesium activity concentrations of corn silage and perennial ryegrass silage were 15 Bq and 13,160 Bq/kg dry weight, respectively.

³⁾ Neutral detergent fiber not assayed with a heat stable amylase and expressed exclusive of residual ash.

⁴⁾ Acid detergent fiber expressed exclusive of residual ash.

⁵⁾ Radiocesium activity concentration was calculated by summing ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs.

Table 3-3 Ingredients and chemical composition of total mixed rations used in experiment 3.

Ingredients (% dry)	
Oat hay	34.8
Concentrate mix pellet ¹⁾	28.3
Alfalfa hay	26.2
Corn silage ²⁾	9.8
Perennial ryegrass silage ²⁾	0.9
Chemical composition	
Dry matter (%)	67.6
Net energy lactation (Mcal/kg-dry)	1.45
Total digestible nutrients (% dry)	63.9
Crude protein (% dry)	13.3
NDFom ³⁾ (% dry)	41.6
ADFom ⁴⁾ (% dry)	27.0
Ether extract (% dry)	2.9
¹³⁴⁺¹³⁷ Cs ⁵⁾ (Bq/kg-dry)	215
¹³⁴⁺¹³⁷ Cs ⁵⁾ (Bq/kg in 80% moisture content)	43

¹⁾ Contained 36.5% corn grain, 20.2% soybean meal, 19.5% wheat bran, 18.0% beet pulp, 3.2% molasses, 1.0% dicalcium phosphate, 1.0% salt, and 0.6% calcium carbonate.

²⁾ Radiocesium activity concentrations of corn silage and perennial ryegrass silage were 15 Bq and 13,160 Bq/kg dry weight, respectively.

³⁾ Neutral detergent fiber not assayed with a heat stable amylase and expressed exclusive of residual ash.

⁴⁾ Acid detergent fiber expressed exclusive of residual ash.

⁵⁾ Radiocesium activity concentration was calculated by summing ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs.

3.2.3.2 給与試験、試料採取、放射性セシウム濃度測定および統計解析

4.2.1 第4試験に引き続き、ホルスタイン種泌乳牛3頭(平均体重647±62kg, 平均産次2.0±1.0産, 平均分娩後日数289±34日)を用いた。

試験区として、何も添加しない対照区(CONT3)、油脂被覆ゼオライト(BPゼオライト 出光興産試製; 出光興産, 東京都)を原物で100g/日投与した区(BPZeo100g)あるいは3.2.1第1試験で用いたゼオライトを100g投与した区(Zeo100g)の3区を設定し、1期が予備期11日、本研究期3日からなる3×3ラテン方格法により給与試験を実施した。油脂被覆ゼオライトおよびゼオライトを投与した区では、1日投与量のゼオライトを半分ずつTMRに混合して2回に分けて投与した。

試料採取、試料の分析、試料の放射性Cs濃度測定および統計解析は、3.2.1第1試験と同様の方法で実施した。なお、糞および尿は可能な限り全量分離採取した。血液の採血は行わなかった。

3.3 結果

3.3.1 ゼオライト投与試験(第1試験)

3.3.1.1 放射性セシウムの移行

平均4,311Bq/日の放射性Csを含む飼料を摂取させると、放射性Csは給与1日目から乳に移行した。乳の放射性Cs濃度は、CONT1区において3日後で最高の23.5Bq/kg-freshとなり、それ以降、15日後まで20Bq/kg-fresh程度の平衡状態で推移した。一方、Zeo200g区では5日後で最大の18.9Bq/kg-fresh、Zeo400g区では7日後で最大の18.6Bq/kg-freshとなり、CONT1区と比較して20%低い濃度となり、最大値に達する日数は2-4日遅くなった(Figure 3-2)。

3.3.1.2 供試飼料の成分および化学成分

供試飼料の配合割合と化学成分をTable 3-1に示した。TMRの乾物率、TDN、CPおよびNDFom含量は、それぞれ73.0、65.4、16.0および51.6%であっ

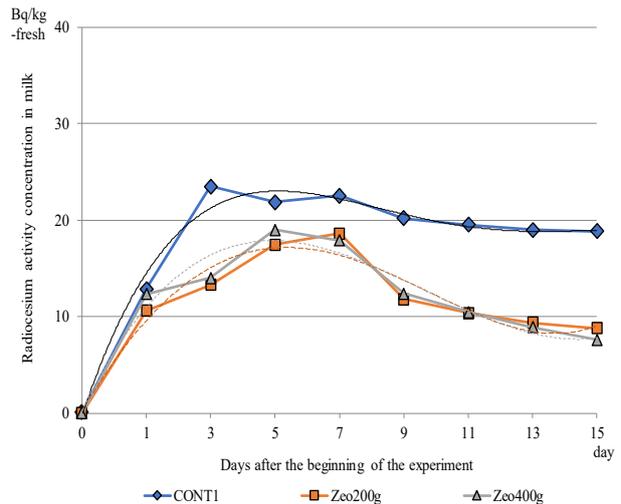


Figure 3-2 Transfer of radiocesium in milk after the beginning of the experiment.

た。TMRの乾物中の放射性Cs濃度は202Bq/kg-dry、水分含有量を80%に換算した放射性Cs濃度は40Bq/kgであった。

3.3.1.3 ゼオライト投与が泌乳牛の生産性に及ぼす影響

飼料の乾物摂取量、ゼオライト摂取量、放射性Cs摂取量、見かけの乾物消化率、乳量および乳成分をTable 3-4に示した。飼料の乾物摂取量は、CONT1区、Zeo200g区およびZeo400g区において、それぞれ21.5、20.4および22.0kg/日となり、各区間に差は見られなかった。1日当たりの放射性Cs摂取量は、平均4,311Bqとなり、各区間に差は見られなかった。見かけの乾物消化率は、平均0.60となり、各区間に差は見られなかった。乳量は、平均31.5kg/日となり、各区間に差は見られなかった。乳成分は、乳脂肪、乳タンパク質、無脂固形分、乳糖および乳中尿素窒素の各濃度において、各区間に差は見られなかった。

Table 3-4 Intake, dry matter digestibility, and milk production of the cows in experiment 1.

Item	Dietary treatment ¹⁾ (n = 9)								
	CONT1			Zeo200g			Zeo400g		
Intake	Dry matter intake (kg/day)	21.5	± 3.6	20.4	± 3.4	22.0	± 1.4		
	Zeolite intake (g/day)	0		200		400			
	¹³⁴⁺¹³⁷ Cs intake (Bq/day)	4,348	± 728	4,125	± 688	4,460	± 279		
Apparent absorption coefficient of dry matter	0.604	± 0.055	0.596	± 0.074	0.606	± 0.063			
Milk yield (kg/day)	30.9	± 2.9	31.8	± 2.9	32.0	± 1.8			
Milk composition	Fat (%)	3.82	± 0.32	3.71	± 0.30	3.85	± 0.13		
	Protein (%)	3.18	± 0.20	2.95	± 0.02	3.02	± 0.18		
	Solids-not-fat (%)	8.43	± 0.12	8.37	± 0.32	8.32	± 0.31		
	Lactose (%)	4.25	± 0.26	4.42	± 0.30	4.30	± 0.14		
	Urea nitrogen (mg/100ml)	8.91	± 0.80	10.37	± 2.74	9.87	± 2.97		

¹⁾Dietary treatment: CONT1 = free access to the total mixed rations without zeolite; Zeo200g = free access to the total mixed rations with 200g of Zeolite; Zeo400g = free access to the total mixed rations with 400g of zeolite.

²⁾Standard deviation.

3.3.1.4 ゼオライト投与が泌乳牛の放射性セシウム移行に及ぼす影響シウム移行に及ぼす影響

(1) 糞、尿、乳における放射性セシウムの収支

糞、尿、乳および血液の放射性 Cs 濃度、糞、尿、乳および血液の放射性 Cs 濃度、糞、尿および乳で排出された放射性 Cs 量、摂取した放射性 Cs に対する糞、尿および乳への分配率、見かけの放射性 Cs の吸収係数、飼料から乳への放射性 Cs の Fm、CR および尿と乳の放射性 Cs 排出量の比を Table 3-5 に示した。

糞の放射性 Cs 濃度および糞で排出された放射性 Cs 量は、各区間に差は見られなかった。放射性 Cs の糞への分配率は、CONT1 区、Zeo200g 区および Zeo400g 区でそれぞれ 98.8、91.0 および 64.6% となり各区間に差は見られなかったが、各区における放射性 Cs の糞の分配率はゼオライト摂取量との間に負の相関 ($r = -0.76, P < 0.01$) が見られた (Figure 3-3)。見かけの吸収係数は、各区間に差は見られなかった。

尿の放射性 Cs 濃度は、CONT1 区、Zeo200g 区および Zeo400g 区において、それぞれ 72.9、44.7 および 49.4 Bq/kg-fresh となり、CONT1 区と比較して Zeo200g 区および Zeo400g 区において減少した ($P < 0.05$)。尿で排出された放射性 Cs 量は、CONT1 区、Zeo200g 区および Zeo400g 区において、それぞれ 1,725、873 および 1,139 Bq/日となり、Zeo200g 区は他の 2 区と比較して減少した ($P < 0.05$)。尿への分

配率は、CONT1 区、Zeo200g 区および Zeo400g 区において、それぞれ 40.0、22.3 および 26.0% となり、CONT1 区と比較して Zeo200g 区および Zeo400g 区において減少した ($P < 0.05$)。各区における放射性 Cs の尿の分配率はゼオライト摂取量との間に負の相関 ($r = -0.53, P < 0.01$) が見られた (Figure 3-3)。乳の放射性 Cs 濃度は、CONT1 区、Zeo200g 区および Zeo400g 区において、それぞれ 14.7、6.5 および 6.7 Bq/kg-fresh となり、CONT1 区と比較して Zeo200g 区および Zeo400g 区において減少した ($P < 0.05$)。乳の放射性 Cs 濃度は、糞および尿の放射性 Cs 濃度との間に正の相関 ($r = 0.37, P < 0.05; r = 0.50, P < 0.01$) が見られた。乳で排出された放射性 Cs 量は、CONT1 区、Zeo200g 区および Zeo400g 区において、それぞれ 460、205 および 212 Bq/日となり、CONT1 区と比較して Zeo200g 区および Zeo400g 区において減少した ($P < 0.05$)。乳への分配率は、CONT1 区、Zeo200g 区および Zeo400g 区において、それぞれ 10.8、4.9 および 4.8% となり、CONT1 区と比較して Zeo200g 区および Zeo400g 区において減少する傾向が見られた ($P < 0.10$)。各区における放射性 Cs の乳の分配率はゼオライト摂取量との間に負の相関 ($r = -0.78, P < 0.01$) が見られた (Figure 3-3)。

(2) 吸収された放射性セシウムの乳への移行

Fm は、CONT1 区、Zeo200g 区および Zeo400g 区において、それぞれ 3.46×10^{-3} 、 1.56×10^{-3} および 1.50×10^{-3} となり、CONT1 区と比較して Zeo200g 区および Zeo400g 区において 55–56% 減少する傾向が見

Table 3-5 Radiocesium activity concentration, excretion of radiocesium, proportion of radiocesium to ingested radiocesium, apparent absorption coefficient of radiocesium, transfer coefficient of radiocesium from feed to milk, concentration ratio, and ratio of radiocesium in milk to radiocesium in urine of cows in experiment 1.

Item	Dietary treatment ¹⁾ (n = 9)								
	CONT1			Zeo200g			Zeo400g		
Radiocesium activity concentration ²⁾ (Bq/kg-fresh)									
Feces	67.6	±	2.0	³⁾ 63.3	±	13.3	46.6	±	6.9
Urine	72.9	^a ±	3.1	44.7	^b ±	17.7	49.4	^b ±	12.8
Milk	14.7	^a ±	4.0	6.5	^b ±	2.0	6.7	^b ±	0.8
Blood	L.T.D.(< 2.1) ⁴⁾			L.T.D.(< 1.8)			L.T.D.(< 2.0)		
Excretion of radiocesium (Bq/day)									
Feces	4,347	±	1,217	3,696	±	654	2,884	±	265
Urine	1,725	^a ±	291	873	^b ±	287	1,139	^a ±	403
Milk	460	^a ±	97	205	^b ±	83	212	^b ±	22
Proportion of radiocesium to ingested radiocesium (%)									
Feces	98.8	±	13.6	91.0	±	19.4	64.6	±	2.2
Urine	40.0	^a ±	5.5	22.3	^b ±	10.1	26.0	^b ±	11.0
Milk	10.8	^A ±	2.6	4.9	^B ±	1.2	4.8	^B ±	0.3
Apparent absorption coefficient of radiocesium									
	0.012	±	0.136	0.090	±	0.194	0.354	±	0.022
Transfer coefficient of radiocesium from feed to milk (Fm : day/kg)									
Fm × 10 ⁻³	3.46	^A ±	1.03	1.56	^B ±	0.23	1.50	^B ±	0.16
Concentration ratio (CR)									
CR × 10 ⁻²	7.28	^A ±	1.98	3.23	^B ±	0.98	3.30	^B ±	0.40
Ratio of radiocesium in milk to radiocesium in urine									
Milk / Urine	0.28	±	0.09	0.29	±	0.23	0.20	±	0.08

^{ab}: Means in a row with different superscript differ significantly ($P < 0.05$).

^{A,B}: Means in a row with different superscript differ significantly ($P < 0.10$).

¹⁾ Dietary treatment: CONT1 = free access to the total mixed rations without zeolite; Zeo200g = free access to the total mixed rations with 200g of Zeolite; Zeo400g = free access to the total mixed rations with 400g of zeolite.

²⁾ Radiocesium activity concentration was calculated by summing ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs.

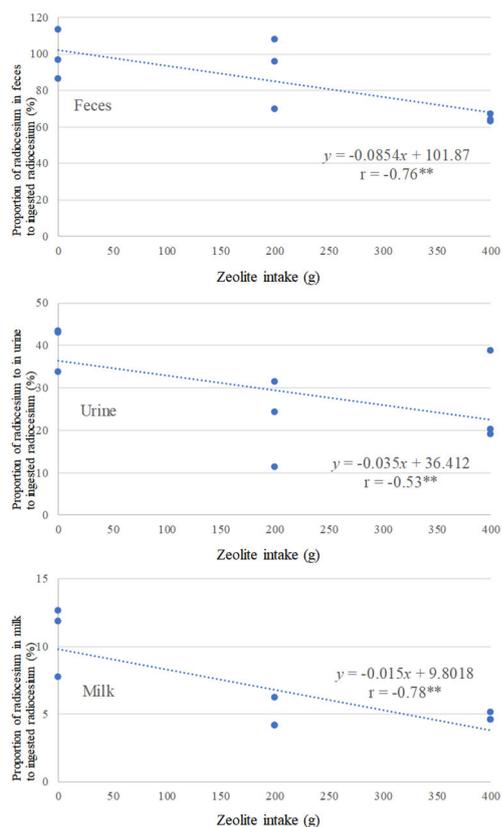


Figure 3-3 Relationship of proportion of radiocesium to ingested radiocesium in feces, urine, and milk.

られた ($P < 0.10$) (Table 3-5)。各区における Fm は、ゼオライト摂取量と負の相関 ($r = -0.77, P < 0.01$) が見られた。乳で排出された放射性 Cs 量と尿で排出された放射性 Cs 量の比はゼオライト摂取量の影響を受けず、平均 0.25 となった (Table 3-5)。すべての供試牛において、放射性 Cs が尿および乳で検出されたが、血液中の放射性 Cs 濃度は、Cooper の式 (Cooper 1970) によって計算された 1.8–2.1 Bq/kg の検出限界値を下回り、検出限界未満となった。CR は、CONT1 区、Zeo200g 区および Zeo400g 区におい

て、それぞれ 7.28×10^{-2} 、 3.23×10^{-2} および 3.30×10^{-2} となり、CONT1 区と比較して Zeo200g 区および Zeo400g 区において 43% 減少する傾向が見られた ($P < 0.10$) (Table 3-5)。

3.3.2 微粒子ゼオライト投与試験 (第2試験)

3.3.2.1 供試飼料の成分および化学成分

供試飼料の配合割合と化学成分を Table 3-2 に示した。TMR の乾物率、TDN、CP および NDFom 含量は、それぞれ 76.3、64.1、15.3 および 53.6% であった。TMR の放射性 Cs 濃度は 95 Bq/kg-dry、水分含有量を 80% に換算した放射性 Cs 濃度は 19 Bq/kg であった。

3.3.2.2 微粒子ゼオライト投与が泌乳牛の生産性に及ぼす影響

飼料の乾物摂取量、微粒子ゼオライト摂取量、放射性 Cs 摂取量、乳量および乳成分を Table 3-6 に示した。乾物摂取量は、CONT2 区、NZeo1.0g 区および NZeo100ml 区において、平均 17.2 kg/日となり、各区間に差は見られなかった。1 日当たりの放射性 Cs 摂取量は、平均 1,634 Bq となり、各区間に差は見られなかった。乳量は、平均 27.1 kg/日となり、各区間に差は見られなかった。乳成分は、脂肪、タンパク質、無脂固形分、乳糖および乳中尿素窒素の各濃度において、各区間に差は見られなかった。

3.3.2.3 微粒子ゼオライト投与が乳への放射性セシウム移行に及ぼす影響

乳の放射性 Cs 濃度、乳で排出された放射性 Cs 量、摂取した放射性 Cs に対する乳への放射性 Cs の分配率、Fm および CR を Table 3-7 に示した。

乳の放射性 Cs 濃度は、CONT2 区、NZeo1.0g 区および NZeo100ml 区において、それぞれ 6.4、5.0 および 6.0 Bq/kg-fresh となり、CONT2 区と比較して NZeo1.0g 区において減少した ($P < 0.05$)。

乳で排出された放射性 Cs 量は、CONT2 区、NZeo1.0g 区および NZeo100ml 区において、それぞれ 180、143 および 174 Bq/日となり、CONT2 区と比較して NZeo1.0g 区において減少する傾向が見られ

Table 3-6 Intake and milk production of the cows in experiment 2.

Item	Dietary treatment ¹⁾ (n = 9)							
	CONT2		NZeo1.0g		NZeo100ml			
Intake	Dry matter (kg/day)	17.2 ± 3.4	17.2 ± 0.9	17.3 ± 2.8				
	Finely divided zeolite intake (g/day)	0.0	1.0	1.0				
	¹³⁴⁺¹³⁷ Cs intake (Bq/day)	1,633 ± 325	1,630 ± 87	1,640 ± 266				
Milk yield (kg/day)	27.6 ± 3.7	27.0 ± 4.9	26.9 ± 5.0					
Milk composition	Fat (%)	3.96 ± 0.27	3.89 ± 0.26	4.00 ± 0.39				
	Protein (%)	3.15 ± 0.03	3.17 ± 0.15	3.12 ± 0.32				
	Solids-not-fat (%)	8.58 ± 0.13	8.54 ± 0.18	8.45 ± 0.21				
	Lactose (%)	4.43 ± 0.10	4.37 ± 0.14	4.32 ± 0.35				
	Urea nitrogen (mg/100ml)	8.70 ± 4.79	8.25 ± 3.63	9.35 ± 2.91				

¹⁾ Dietary treatment: CONT2 = free access to the total mixed rations without zeolite; NZeo1.0g = free access to the total mixed rations with oral administration of 1.0g of finely divided zeolite; NZeo100ml = free access to the total mixed rations with oral administration of 100 ml of water containing 1.0g of finely divided zeolite.

²⁾ Standard deviation.

Table 3-7 Radiocesium activity concentration in milk, excretion of radiocesium in milk, proportion of radiocesium to ingested radiocesium in milk and transfer coefficient of radiocesium from feed to milk, and concentration ratio of cows in experiment 2.

Item	Dietary treatment ¹⁾ (n = 9)					
	CONT2		NZeol.0g		NZeol100ml	
Radiocesium activity concentration ²⁾ (Bq/kg-fresh)						
Milk	6.4 ^a ±	2.0 ³⁾	5.0 ^b ±	1.7	6.0 ^a ±	0.3
Excretion of radiocesium (Bq/day)						
Milk	180 ^A ±	51	143 ^B ±	51	174 ^A ±	19
Proportion of radiocesium to ingested radiocesium (%)						
Milk	11.2 ^a ±	3.5	8.7 ^b ±	2.9	10.7 ^a ±	0.7
Transfer coefficient of radiocesium from feed to milk (Fm : day/kg)						
Fm × 10 ⁻³	4.04 ^a ±	1.59	3.09 ^b ±	1.04	3.75 ^a ±	0.71
Concentration ratio (CR)						
CR × 10 ⁻²	6.73 ^a ±	2.12	5.33 ^b ±	1.83	6.35 ^a ±	0.29

^{a,b}: Means in a row with different superscript differ significantly ($P < 0.05$).

^{A,B}: Means in a row with different superscript differ significantly ($P < 0.10$).

¹⁾Dietary treatment: CONT2 = free access to the total mixed rations without zeolite; NZeol.0g = free access to the total mixed rations with oral administration of 1.0g of finely divided zeolite; NZeol100ml = free access to the total mixed rations with oral administration of 100ml of water containing 1.0g of finely divided zeolite.

²⁾ Radiocesium activity concentration was calculated by summing ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs.

³⁾ Standard deviation.

た ($P < 0.10$)。乳への分配率は、CONT2 区、NZeol.0g 区および NZeol100ml 区において、それぞれ 11.2、8.7 および 10.7% となり、CONT2 区と比較して NZeol.0g 区において減少した ($P < 0.05$)。各区における放射性 Cs の乳への分配率は Fm および CR と高い相関が見られた ($r = 0.89, P < 0.01; r = 0.93, P < 0.01$)。また、乳の放射性 Cs 濃度および乳の放射性 Cs 排出量と高い相関が見られた ($r = 0.93, P < 0.01; r = 0.85, P < 0.01$)。Fm は、CONT2 区、NZeol.0g 区および NZeol100ml 区において、それぞれ 4.04×10^{-3} 、 3.09×10^{-3} および 3.75×10^{-3} となり、CONT2 区と比較して NZeol.0g 区において 22% 減少した ($P < 0.05$) (Table 3-7)。各区における Fm は乳への分配率および CR と高い相関が見られた ($r = 0.89, P < 0.01; r = 0.91, P < 0.01$)。また、乳の放射性 Cs 濃度と高い相関が見られた ($r = 0.91, P < 0.01$)。CR は、CONT2 区、NZeol.0g 区および NZeol100ml 区において、それぞれ 6.73×10^{-2} 、 5.33×10^{-2} および 6.35×10^{-2} となり、CONT2 区と比較して NZeol.0g 区において 28% 減少した ($P < 0.05$) (Table 3-7)。各区における CR は Fm および乳への分配率と高い相関が見られた ($r = 0.90, P < 0.01; r = 0.93, P < 0.01$)。また、乳の放射性 Cs 排出量と高い相関が見られた ($r = 0.82, P < 0.01$)。

3.3.3 油脂被覆ゼオライト投与試験 (第 3 試験)

3.3.3.1 供試飼料の成分および化学成分

供試飼料の配合割合と化学成分を Table 3-3 に示した。TMR の乾物率、TDN、CP および NDFom 含量は、それぞれ 67.6、63.9、13.3 および 41.6% であった。TMR の放射性 Cs 濃度は 215 Bq/kg-dry、水分含有量を 80% に換算した放射性 Cs 濃度は 43 Bq/kg であった。

3.3.3.2 油脂被覆ゼオライトまたはゼオライト投与が泌乳牛の生産性に及ぼす影響

飼料の乾物摂取量、油脂被覆ゼオライトまたはゼオライトの摂取量、放射性 Cs 摂取量、乳量および乳成分を Table 3-8 に示した。乾物摂取量は CONT3 区、BPZeo100g 区および Zeo100g 区において、それぞれ 18.8、18.2 および 18.8 kg/日となり、各区間に差は見られなかった。1 日当たりの放射性 Cs 摂取量は、平均 3,991 Bq となり、各区間に差は見られなかった。乳量は、平均 23.5kg となり、各区間に差は見られなかった。乳成分は、乳脂肪、乳タンパク質、無脂固形分、乳糖および乳中尿素窒素の各濃度において、各区間に差は見られなかった。

3.3.3.3 油脂被覆ゼオライトおよびゼオライト投与が泌乳牛の放射性セシウム移行に及ぼす影響

乳の放射性 Cs 濃度、乳で排出された放射性 Cs 量、摂取した放射性 Cs に対する乳へ放射性 Cs の分配率、Fm および CR を Table 3-9 に示した。乳の放射性 Cs 濃度は、CONT3 区、BPZeo100g 区および Zeo100g 区において、それぞれ 15.4、13.2 および 13.2 Bq/kg-fresh となり、各区間に差は見られなかった (Table 3-9)。

乳で排出された放射性 Cs は、CONT3 区、BPZeo100g 区および Zeo100g 区において、それぞれ 362、301 および 310 Bq/日となったが、各区間に差は見られなかった。放射性 Cs の乳への分配率は、CONT3 区、BPZeo100g 区および Zeo100g 区において、それぞれ 9.0、7.8 および 7.8% となったが、各区

Table 3-8 Intake and milk production of cows in experiment 3.

Item	Item	Dietary treatment ¹⁾ (n = 9)					
		CONT3		BPZeol100g		Zeol100g	
Intake	Dry matter (kg/day)	18.8 ± 1.6	1.6 ²⁾	18.2 ± 1.6		18.8 ± 2.7	
	Zeolite intake (g/day)	0		100		100	
	¹³⁴⁺¹³⁷ Cs intake (Bq/day)	4,030 ± 340		3,914 ± 347		4,030 ± 584	
Milk yield (kg/day)		23.7 ± 5.0		23.3 ± 5.3		23.6 ± 4.3	
Milk composition	Fat (%)	4.99 ± 1.07		4.84 ± 0.92		4.76 ± 0.98	
	Protein (%)	4.18 ± 0.50		4.17 ± 0.52		4.21 ± 0.62	
	Solids-not-fat (%)	9.39 ± 0.33		9.36 ± 0.47		9.41 ± 0.43	
	Lactose (%)	4.22 ± 0.42		4.19 ± 0.49		4.20 ± 0.38	
	Urea nitrogen (mg/100ml)	6.88 ± 2.54		7.21 ± 1.98		6.82 ± 1.64	

¹⁾ Dietary treatment: CONT3 = free access to the total mixed rations without zeolite; BPZeol100g = free access to the total mixed rations with 100g of zeolite coated with palm oil; Zeol100g = free access to the total mixed rations with 100g of zeolite.

²⁾ Standard deviation.

Table 3-9 Radiocesium activity concentration in milk, excretion of radiocesium in milk, proportion of radiocesium to ingested radiocesium in milk and transfer coefficient of radiocesium from feed to milk, and concentration ratio of cows in experiment 3.

Item	Item	Dietary treatment ¹⁾ (n = 9)					
		CONT3		BPZeol100g		Zeol100g	
Radiocesium activity concentration ²⁾ (Bq/kg)							
Milk		15.4 ± 1.0	1.0 ³⁾	13.2 ± 0.9		13.2 ± 1.1	
Excretion of radiocesium (Bq/day)							
Milk		362 ± 65		301 ± 49		310 ± 46	
Proportion of radiocesium to ingested radiocesium (%)							
Milk		9.0 ± 1.6		7.8 ± 0.8		7.8 ± 1.3	
Transfer coefficient of radiocesium from feed to milk (Fm : day/kg)							
Fm × 10 ⁻³		3.86 ± 0.59		3.39 ± 0.44		3.36 ± 0.83	
Concentration ratio (CR)							
CR × 10 ⁻²		7.19 ± 0.49		6.14 ± 0.40		6.16 ± 0.52	

¹⁾ Dietary treatment: CONT3 = free access to the total mixed rations without zeolite; BPZeol100g = free access to the total mixed rations with 100g of zeolite coated with palm oil; Zeol100g = free access to the total mixed rations with 100g of zeolite.

²⁾ Radiocesium activity concentration was calculated by summing ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs.

³⁾ Standard deviation.

間に差は見られなかった。各区における放射性Csの乳への分配率は乳量と相関が見られた ($r = 0.52, P < 0.05$)。

Fmは、CONT3区、BPZeol100g区およびZeol100g区において、それぞれ 3.86×10^{-3} 、 3.39×10^{-3} および 3.36×10^{-3} となったが、各区间に差は見られなかった (Table 3-9) が、各区におけるFmは乳量および放射性Cs摂取量と高い負の相関が見られた ($r = -0.59, P < 0.01$; $r = -0.85, P < 0.01$)。CRは、CONT3区、BPZeol100g区およびZeol100g区において、それぞれ 7.19×10^{-2} 、 6.14×10^{-2} および 6.16×10^{-2} となったが、各区间に差は見られなかった (Table 3-9) が、各区におけるCRはFmと高い相関が見られた ($r = 0.84, P < 0.01$)。

3.4 考察

3.4.1 乳への放射性セシウム移行に及ぼす影響

第1試験から第3試験のゼオライトを用いない区では、1,633–4,348 Bq/日の放射性Csを摂取すると、乳の放射性Csは6.4–15.4 Bq/kg-freshになり、Fm

は 3.46×10^{-3} – 4.04×10^{-3} の範囲となった (Table 3-5, Table 3-7, Table 3-9)。これらの値は、国際原子力機関 (IAEA, 2010) の示す乳のFmの最小値 6.6×10^{-4} 、最大値 6.8×10^{-2} の範囲内であり、平均値 4.6×10^{-3} に近い値となった。これまでに国内の事例で報告されている100 Bq/日未満の放射性Csを摂取したときの数値 (Aii *et al.*, 1990; 伊藤ら, 1994; 三橋, 1996) の範囲内であった。これらのことから、放射性Cs濃度が暫定許容値 (500 Bq/kg-dry) 未満の飼料を泌乳牛が摂取した場合、Fmに対する放射性Cs摂取量の影響は少ないものと推察された。

3.4.2 ゼオライト投与が放射性セシウム移行に及ぼす影響

3.4.2.1 ゼオライトの放射性セシウムの吸着

Csはカリウムと同じアルカリ金属に属し、実験動物での体内動態は、カリウムと化学的および生化学的に同様とされている (小林ら, 1998)。Csがゼオライトと共に水溶液中に存在するとゼオライトが自らの持つアルカリ金属イオンを放出し、カリウムよりイオン交換順位が高いCsと交換することで、同時

に存在するカリウムよりも効率的に Cs を吸着すると指摘している (Nikolai, 1995)。この特性を利用してゼオライト投与による飼料の放射性 Cs の体内吸収を抑制する効果は、トナカイにおいては Birgitta *et al.* (1990)、ヒツジにおいては Phillippo *et al.* (1988) が実証している。

第1試験では、放射性 Cs 濃度が 500 Bq/kg-dry 未満で 4,000 Bq/日の放射性 Cs を摂取した場合、放射性 Cs を含む TMR に 200 g/日または 400 g/日のゼオライトを混合して泌乳牛に自由採食させると、尿の放射性 Cs 濃度が低減し、あわせて、乳の放射性 Cs 濃度が減少する傾向が見られ、Fm と CR は低下する傾向が見られた。竹中 (2012) は、ゼオライトを 400 g/日摂取させた場合に尿の放射性 Cs 濃度が低減し、糞および乳の放射性 Cs 濃度に変化は見られなかったと報告している。このことから、200 g/日以上ゼオライトを投与した場合の放射性 Cs 吸収抑制の効率は低いと思われた。

第2試験では、放射性 Cs を含む TMR に 3,000 nm 以下に粉碎し、比表面積が 200 倍以上増加した微粒子ゼオライト 1.0 g/日を泌乳牛に経口投与すると、乳の放射性 Cs 濃度が低減し、Fm と CR は低下した。このことは、粒子径が小さいことにより水溶液中に分散することで、ルーメン内に沈殿して滞留することなく、早い通過速度で下部消化管へ流出して糞として排出したためと考えられた。しかし、摂取されたゼオライトの比表面積は飼料用ゼオライトの 200 倍以上あったと推定され、第1試験より乳への放射性 Cs 吸収抑制効果は低かった。このことは、微粒子ゼオライトに対する飼料摂取量の比は 1 : 22,600 となることから、微粒子ゼオライトがルーメン全体に拡散するためには投与量が少なく、均一に拡散されず放射性 Cs を飼料全体から効率的に吸着することができなかったと推察された。

第3試験では、放射性 Cs を含む TMR に 100 g/日のゼオライトまたは 100 g/日の油脂被覆ゼオライトを混合して泌乳牛に自由採食させた場合は、乳の放射性 Cs 濃度や排出量に差は見られなかった。このことは、100 g/日のゼオライト投与が放射性 Cs の吸収抑制に効果がある適正量より少なかったためと考えられた。また、BPZeol100g 区におけるゼオライトの効果について CONT3 区と差が無かったことは、下部消化管で油脂被覆が分解されゼオライトとして利用できなかった可能性があると考えられた。あるいは、油脂被覆が分解されゼオライトとして利用可能であったとしても、ルーメンと下部消化管での滞留時間が異なることから、効率的な放射性 Cs 吸着ができなかったと考えられた。石川ら (2018) は、過去に放射性 Cs を摂取していた黒毛和種繁殖雌牛に対して放射性 Cs を含まない飼料とゼオライトを投与したが、糞および尿の放射性 Cs の排出量は増えなかったことを報告している。このことから、泌

乳牛においては、下部消化管での放射性 Cs の分泌、再吸収をする可能性は低いと推察された。

これらのことから、乳の放射性 Cs 濃度や乳による排出量を効果的に減少させるためには、200 g/日以上ゼオライト、または、1.0 g/日以上微粒子ゼオライトの投与が必要となり、放射性 Cs 吸着剤となるゼオライトには適正な投与量や比表面積があることが推察された。

物質・材料データベース (NIMS, 2012) では、放射性 Cs の吸着に有効なゼオライトの分子構造は一定ではなく、産地や組成によって吸着能力に差があり、吸着目的とする放射性 Cs の濃度や酸性度によって吸着性能が変化することが示されている。本研究において、第1試験では、ゼオライトを 200 g/日または 400 g/日投与により、乳の放射性 Cs 濃度、Fm および CR が CONT1 区と比較して 55%以上減少したことは、使用したゼオライトに放射性 Cs 吸着能力と消化管内の酸性度が適合し、かつ、投与したゼオライト量に対して放射性 Cs 摂取量が少なかったことから、ゼオライトが放射性 Cs を効率良く吸着できたものと考えられた。また、第2試験では、微粒子ゼオライトを 1.0 g/日投与することにより、乳の放射性 Cs 濃度および Fm は CONT2 区と比較して 22%以上減少、CR については 28%以上減少した。粒子が細くなることにより比表面積は大きくなり、放射性 Cs を効率良く吸着したことが示唆された。また、放射性 Cs の吸着にはゼオライトの効率的な比表面積および投与量があることが推察された。さらに、第3試験では油脂被覆ゼオライト 100 g/日、または、ゼオライト 100 g/日投与により、乳の放射性 Cs 濃度が減少しなかったことは、摂取した放射性 Cs 量に対して投与したゼオライト量が少なかったためと考えられた。

第1試験—第3試験の結果から、ゼオライトを用いない場合、飼料の放射性 Cs 濃度あるいは放射性 Cs 摂取量が少なくなると乳の放射性 Cs 濃度は低下するが、Fm は変わらないことが示唆された。本研究で設定した飼料の放射性 Cs 濃度あるいは放射性 Cs 摂取量の範囲においては、ゼオライトを用いない場合、乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満にするためには、飼料の放射性 Cs 濃度は 100 Bq/kg-dry 未満、あるいは、放射性 Cs 摂取量は 1,600 Bq/日未満である必要があると推察された。第1試験では、ゼオライトの投与により Fm は低下することが示されたため、乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満にするためには、飼料の放射性 Cs 濃度は 200 Bq/kg-dry 未満、あるいは、放射性 Cs 摂取量は 3,600 Bq/日未満である必要があると推察された。ただし、放射性 Cs 摂取量が 3,600 Bq/日以上の場合、ゼオライトを投与しても乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満に抑制することは難しいことが示唆された。

3.4.2.2 ゼオライトの消化管での動き

小林ら (1998) は、ラット体内における Cs には、上部消化管で速やかに吸収された Cs が下部消化管において分泌および再吸収される「腸管-腸管サイクル」という代謝経路があると指摘している。さらに、放射性 Cs 吸着剤を用いた Cs の体内における吸収抑制のメカニズムは、この代謝経路で放射性 Cs 吸着剤が腸管壁からの Cs 再吸収を阻害することにより、糞中への放射性 Cs の排出を促進するものと指摘している。これらのことから、ゼオライトはウシ消化管内において放射性 Cs を吸着することで放射性 Cs の消化管から血液への吸収および腸管壁からの再吸収を抑制することにより、乳および尿への移行が抑制され、放射性 Cs を吸着したゼオライトが糞に多く排出するものと推察された。しかし、本研究においては、第1試験において、ゼオライトを 200 g/日または 400 g/日投与した場合、各処理区間の糞の放射性 Cs 濃度に差は見られず、放射性 Cs の糞への排出が増加する傾向は見られなかった。これは、投与されたゼオライトがルーメンまたは下部消化管内に留まり、糞中に排出されなかったと考えられ、滞留したゼオライトが糞と共に排出されるには時間を要することが推測された。また、糞の放射性 Cs 分析のための試料が糞の排出量と比較して少なかったことや、糞量が、尿量や乳量よりも 2-3 倍多かったことにより、放射性 Cs 測定のための試料における濃度のばらつきが大きくなり、適正な放射性 Cs が検出できなかった可能性が考えられた。

第1試験では、乳に排出された放射性 Cs と Fm はゼオライト投与により減少する傾向が見られたが、尿に排出された放射性 Cs 量と乳に排出された量の比は各処理間に差は見られず平均 0.25 であった。Arnaud *et al.* (1988) は、乳と尿の放射性 Cs 排出量の比は、ウシが 92,700 Bq/日の放射性 Cs を含む飼料を給与され、18.4 kg/日の乳生産した時に平均 0.25 であったと報告している。吸収された放射性 Cs の尿および乳への移行は、飼料の放射性 Cs 濃度に影響されず、消化管から吸収された放射性 Cs の一定割合が乳に移行すると考えられ、消化管から吸収された放射性 Cs の乳への移行を抑制することは難しいと考えられた。そして、消化管内でゼオライトなどの放射性 Cs 吸着剤が放射性 Cs を吸着し、放射性 Cs を吸収抑制させることは、乳の放射性 Cs 濃度を減少させる実用的かつ効果的な方法であることが推察された。

3.4.3 ゼオライト投与が乳の生産性に及ぼす影響

ゼオライトは、自らの持つ陽イオンと他の陽イオンを交換する機能（イオン交換機能）および微細孔径構造によるその孔径より大きな分子を通過させない機能（分子ふるい機能）を持つことで、アンモニウムイオンや有害物質を捕捉する特性を有する

(Mumpton, 1999)。その特性を利用して、ゼオライトを家畜の飼料に添加して投与することにより、消化機能や飼料効率の向上、発育の促進および排せつ物の脱臭効果があると報告されている (Mumpton, 1999)。乳牛においては、乳熱対策で乾乳牛に 700 g/日のゼオライトを飼料に添加することで分娩前 2 週間の乾物摂取量は減少するが、乳量、乳脂肪量および乳タンパク質量に影響は見られないと報告されている (Thilising-Hansen *et al.*, 2002)。また、欧州食品安全機関 (EFSA, 2007) は、乳熱のリスク低減のために 500 g/日以上 of ゼオライトを投与したときに乾物摂取量は減るが、250 g/日のゼオライト投与は、乾物摂取量、血液のミネラル濃度、乳生産性および乳成分に影響を与えないと指摘している。一方、ベントナイトやゼオライトなどの粘土鉱物は、家畜に投与した際に生体のミネラルを吸着し、ミネラル損失の原因となることが示唆されている (Giese, 1989)。このことから、500 g/日未満のゼオライトの飼料への添加は、乳牛の乾物摂取量、乳生産性および乳成分に及ぼす影響は小さいものと推察された。本研究におけるゼオライト投与量は 1 日当たり 1.0 g-400 g であったことから、乾物摂取量、乳生産性および乳成分に及ぼした影響は見られず、見かけの乾物消化率への影響も見られなかったと考えられた。

Katsoulos *et al.* (2005) は、濃厚飼料乾物中に 1.25% -2.5% のゼオライトを添加した飼料の泌乳牛への 1 年近い投与は血液成分に影響しないと指摘している。また、佐瀬と矢部 (2002) は、泌乳牛に対して 200 g/日のゼオライトを 2 ヶ月間投与しても、乳生産性、乳成分および血液成分に影響を及ぼさないと指摘している。これらのことから、ゼオライトを 1 年程度の泌乳期間に投与しても乳牛の健康維持や乳生産性に及ぼす影響は小さいものと推察された。しかし、福島第一原発事故で放出された放射性核種のうち ¹³⁷Cs は半減期が 30 年と長いこと、および放射性 Cs に汚染された農地およびその周辺地が広範囲であるために除染作業が長期に及ぶことが想定されている。したがって、放射性 Cs に汚染された地域において、自給飼料による乳牛の飼養体系では、放射性 Cs の吸着を目的とするゼオライトの投与期間は、乳牛の生涯生産期間と同等になることが考えられ、今後は乳牛のライフサイクルに合わせたゼオライトの長期投与の影響についての検討が必要となる。

第4章 プルシアンブルー含有固形塩による泌乳牛における乳への放射性セシウム移行抑制

4.1 緒言

1986 年のチェルノブイリ原子力発電所事故における欧州の広範囲に及ぶ放射性 Cs の汚染に対して、自然環境中からの除去や移行抑制する技術として、

を実施したが、いずれも福島県農業総合センター畜産研究所において、福島県農業総合センター専門別検討会の承認(2012-E1-5-9-3)を得て、産業動物の飼養および保管に関する基準(昭和62年10月9日総理府告示第22号)に準拠して実施した。

4.2.1 プルシアンブルー含有固形塩投与試験(第4試験)

PB 固形塩の放射性 Cs ($^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$) 吸収抑制効果を確認する試験を2012年9月15日から11月17日の63日間実施した。

4.2.1.1 供試飼料

第4試験における供試飼料は、2.2.1.1 供試飼料と同じ飼料を用いて放射性 Cs 濃度が飼料の暫定許容値(農林水産省,2012)の1/2の濃度である250 Bq/kg-dry (50 Bq/kg (水分含有量80%換算))になるように設計した(Table 4-1)。これらの供試飼料は、日量30 kg 泌乳のためのNEL、TDNならびにCP要求量を満たすようにTMRに調製した(NRC,1988;NARO,2006)。

Table 4-1 Ingredients and chemical composition of total mixed rations used in experiment 4.

Ingredients (% dry)	
Oat hay	35.6
Concentrate mix pellet ¹⁾	26.9
Alfalfa hay	26.3
Corn silage	9.8
Perennial ryegrass silage ²⁾	1.4
Chemical composition	
Dry matter (%)	69.6
Net energy lactation (Mcal/kg-dry)	1.46
Total digestible nutrients, (% dry)	64.3
Crude protein (% dry)	13.2
NDFom ³⁾ (% dry)	50.7
ADFom ⁴⁾ (% dry)	27.9
Ether extract (% dry)	2.9
$^{134+137}\text{Cs}^5)$ (Bq/kg-dry)	175
$^{134+137}\text{Cs}^5)$, Bq/kg in 80% moisture content	35

¹⁾ Contained 36.5% corn grain, 20.2% soybean meal, 19.5% wheat bran, 18.0% beet pulp, 3.2% molasses, 1.0% dicalcium phosphate, 1.0% salt, and 0.6% calcium carbonate.

²⁾ Radiocesium activity concentrations of corn silage and perennial ryegrass silage were 15 Bq and 13,160 Bq/kg dry weight, respectively.

³⁾ Neutral detergent fiber not assayed with a heat stable amylase and expressed exclusive of residual ash.

⁴⁾ Acid detergent fiber expressed exclusive of residual ash.

⁵⁾ Radiocesium activity concentration was calculated by summing ^{134}Cs and ^{137}Cs .

4.2.1.2 給与試験および試料採取

供試動物として、3.2.2 第2試験に用いた2頭に加え、これまで放射性 Cs を含まない飼料で飼養されていたホルスタイン種泌乳牛2頭の合計4頭(平均体重629±46 kg, 平均産次2.5±1.3産, 平均分娩後

日数229±28日)を用い、個別ストールにスタンションで係留して飼養した。供試飼料は給与量の10%程度を食べ残すように調整し、8:00と16:00に1日量の半分ずつ動物に給与した。残飼は朝の給与前に全て回収した。放射性 Cs を含まない水はウォーターカップで自由に摂取させた。搾乳は8:30と16:30に行い、乳量を計測した。

試験区は何も添加しない対照区(CONT4)、6%のPBを配合したPB固形塩(中央研究所試製5 kg規格 lot.120908; 日本全薬工業株式会社, 郡山市)を自由摂取させる6%SB区、PB固形塩粉末を経口投与する6%OA区、PBが1.6%配合された輸入固形塩(Salt Lick Stone with 2.5% Giese salt, 1.6%PB配合10 kg規格; Honeywell Specialty Chemicals Seelze GmbH, Germany)を自由摂取させる1.6%SB区の4区を設定し、1期が予備期16日、本研究期5日からなる4×3ユーデン方格法(Clarke, 1963)により給与試験を実施した。実験期間は、第2章の2.3.1.2の結果に基づき設定した。なお、CONT4区はPBを含まない固形塩(鉍塩セレンクス5 kg規格 lot.120618A; 日本全薬工業株式会社, 郡山市)を自由摂取させた。6%OA区は、PB固形塩粉末25 gを8:00と16:00の2回、1回当たり500 mlを40°Cの温湯で溶解し経口投与した。なお、各試験区に用いた固形塩の成分はTable 4-2に示した。

試験期間中には、給与量および残飼量を毎日秤量し、乾物摂取量を求めた。また、固形塩は毎日秤量し固形塩摂取量とPB摂取量を求めた。乳を搾乳時に採取し、朝夕の採材物を乳量に対して一定の割合で混合して、成分分析用の試料とした。糞および尿のすべてを分離採取した。糞はよく攪拌後、縮分して72時間の通風乾燥機で予備乾燥させたのち、見かけの乾物消化率を求めた。血液は本研究期の1、3、5日目の13:00に頸静脈より採血し、試料の一部を2,150×Gで15分間遠心分離後、血清を代謝産物測定試料とした。また、放射性 Cs 濃度測定試料のため、採血バッグ(テルモ血液バッグPCD; テルモ株式会社, 東京)に200 mL採血し-20°Cで冷凍保存した。

4.2.1.3 試料の分析

乳の成分、飼料原料、供試飼料、残飼および糞の乾物、粗脂肪、粗灰分、試料のCP、ADFom、NDFomの測定は、3.2.1.3 試料の分析と同様に行った。

4.2.1.4 試料の放射性セシウム濃度測定

放射性 Cs の測定および放射性 Cs 濃度の算出は、3.2.1.4 試料の放射性 Cs 濃度測定と同様に行った。

4.2.1.5 放射性セシウムの移行に関する計算式

飼料から糞、尿および乳への放射性 Cs の分配率(%)、見かけの吸収係数、FmおよびCRは、3.2.1.5 放射性 Cs の移行に関する計算式と同様に行った。

4.2.1.6 血液検査

血液細胞成分は、白血球数、赤血球数、ヘモグロ

Table 4-2 Ingredients of the salt blocks used in experiment 4 and 5.

Salt block	Ingredients	Quantity in kg
Salt block (KOEN® SELENICS) ¹⁾ (Experiment 4)	Sodium chloride	971,000 mg
	Yellow iron oxide	1,742 mg
	Ferric oxide	196 mg
	Manganese carbonate	1,046 mg
	Zinc sulfate	1,235 mg
	Copper sulfate	377 mg
	Cobalt sulfate	66 mg
	Calcium iodate	77 mg
	Sodium selenite	33 mg
	Others	24,228 mg
Salt block or powder with prussian blue ²⁾ (Experiment 4)	Sodium chloride	877,000 mg
	Prussian blue	60,000 mg
	Manganese carbonate	1,046 mg
	Zinc sulfate	1,235 mg
	Copper sulfate	377 mg
	Cobalt sulfate	66 mg
	Sodium selenite	33 mg
Giese® salt ³⁾ (Experiment 4)	Sodium chloride	984,000 mg
	Prussian blue	16,000 mg
Salt block (KOEN® SELENICS 60TZ) ⁴⁾ (Experiment 5)	Sodium chloride	971,000 mg
	Yellow iron oxide	1,742 mg
	Ferric oxide	196 mg
	Manganese carbonate	1,046 mg
	Zinc sulfate	1,235 mg
	Copper sulfate	377 mg
	Cobalt sulfate	66 mg
	Calcium iodate	77 mg
	Sodium selenite	132 mg
	Others	24,129 mg
Salt block or powder with prussian blue ⁵⁾ (Experiment 5)	Sodium chloride	347,300 mg
	Prussian blue	60,000 mg
	Manganese carbonate	1,163 mg
	Zinc sulfate	145 mg
	Cobalt sulfate	76 mg
	Sodium selenite	132 mg
	Others	591,184 mg

¹⁾KOEN® SELENICS, 5kg standard, lot.120618A; Nippon Zenyaku Kogyo Co., LTD, Japan.

²⁾Trial made, 5kg standard, lot.120908; Nippon Zenyaku Kogyo Co., LTD, Japan.

³⁾Salt Lick Stone with 2.5% Giese Salt 1.6% prussian blue, 10kg standard; Honeywell Specialty Chemicals Seelze GmbH, Germany.

⁴⁾KOEN® SELENICS TZ, 5kg standard, lot.130708A; Nippon Zenyaku Kogyo Co., LTD, Japan.

⁵⁾Trial made, 5kg standard, lot.120908; Nippon Zenyaku Kogyo Co., LTD, Japan.

ビン量、ヘマトクリット値および血小板数の血液細胞成分について、自動血球計算装置 (MEK-6358; 日本光電 (株), 東京) により行った。測定項目は白血球数、赤血球数、ヘモグロビン量、ヘマトクリット値および血小板数とした。

血液代謝物は、生化学自動分析装置 (BECKMAN COULTER AU480; ベックマン・コールター (株), 東京) により行った。測定項目は、血液代謝物である総タンパク量、アルブミン、総ビリルビン、尿素窒素、クレアチニン、アスパラギン酸アミノトランスフェラーゼ、アラニンアミノトランスフェラーゼ、アルカリフォスファターゼおよびγ-グルタミルトランスペプチターゼとした。

電解質は、電解質分析装置 (EX-Z; (株) 常光, 東京) により行った。測定項目はナトリウム、カリウムおよび塩素とした。なお、血液細胞成分、血液代謝物および電解質の測定は、日本全薬工業株式会社中央研究所に依頼した。

4.2.1.7 統計解析

データは平均値±標準偏差で示した。ユーデン法に基づき分散分析後、各処理間の平均値の差は

Tukey の方法により検定した。2 因子間の相関はピアソンの相関係数を用い、無相関の検定を行なった。血液成分については、Bartlett 検定で各群のデータのばらつきの検定を行った後、一元配置による分散分析を行った。統計解析は、エクセル統計 2010 (社会情報サービス, 東京) を用い検定した。危険率 5% 未満の場合に有意差があるものとみなした。また、危険率 10% 未満の場合は傾向があるものとした。

4.2.2 改良プルシアンブルー含有固形塩投与試験 (第 5 試験)

固形塩の物性と嗜好性を改良した PB 固形塩の放射性 Cs 吸収抑制効果を確認する試験を 2013 年 10 月 5 日から 12 月 17 日の 62 日間実施した。なお、第 5 試験の前に、PB 固形塩の嗜好性を向上させるために、硫酸銅や酸化マグネシウムなどの嗜好性の低い成分含有量を減らし、プレス方式からケミカル方式で固形塩を硬化させる製造方法に変更した (Lehmkühler *et al.*, 2014)。

4.2.2.1 供試飼料

第 5 試験は、福島県農業総合センター畜産研究所の圃場において、2011 年 6 月 30 日に収穫調製した

放射性 Cs が直接茎葉にフォールアウトしていない 5,580 Bq/kg-dry のオーチャードグラス (*Dactylis glomerata* L.) サイレージと 2012 年 8 月 20 日にサイレージ調製した放射性 Cs が未検出のトウモロコシサイレージを飼料に用いた。また、放射性 Cs を含まないアルファルファ乾草および配合飼料を飼料会社より購入して試験に供した。これらの飼料を用いて、放射性 Cs 濃度が飼料の暫定許容値 (農林水産省, 2012) の 2 倍の 1,000 Bq/kg-dry (200 Bq/kg (水分含有量 80%換算)) になるように設計した (Table 4-3)。これらの供試飼料は、日量 30 kg 泌乳のための NEL、TDN ならびに CP 要求量を満たすように TMR に調製した (NRC, 1988; NARO, 2006)。

Table 4-3 Ingredients and chemical composition of total mixed ration used in experiment 5.

Ingredients (% dry)	
Concentrate mix pellet ¹⁾	53.6
Corn silage	18.2
Orchard grass silage ²⁾	17.2
Alfalfa hay	11.0
Chemical composition	
Dry matter (%)	60.0
Net energy lactation (Mcal/kg-dry)	1.69
Total digestible nutrients (% dry)	73.7
Crude protein (% dry)	15.9
NDFom ³⁾ (% dry)	42.2
ADFom ⁴⁾ (% dry)	21.8
Ether extract (% dry)	4.1
¹³⁴⁺¹³⁷ Cs ⁵⁾ (Bq/kg-dry)	927
¹³⁴⁺¹³⁷ Cs ⁵⁾ , Bq/kg in 80% moisture content	185

¹⁾ Contained 36.5% corn grain, 20.2% soybean meal, 19.5% wheat bran, 18.0% beet pulp, 3.2% molasses, 1.0% dicalcium phosphate, 1.0% salt, and 0.6% calcium carbonate.

²⁾ Radiocesium activity concentrations of corn silage and perennial ryegrass silage were 15 Bq and 13,160 Bq/kg dry weight, respectively.

³⁾ Neutral detergent fiber not assayed with a heat stable amylase and expressed exclusive of residual ash.

⁴⁾ Acid detergent fiber expressed exclusive of residual ash.

⁵⁾ Radiocesium activity concentration was calculated by summing ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs.

4.2.2.2 給与試験および試料採取

供試動物としてこれまで放射性 Cs を含まない飼料で飼養されていたホルスタイン種泌乳牛 3 頭 (平均体重 538±49 kg, 平均産次 1.7±1.2 産, 平均分娩後日数 79±11 日) を用い、4.2.1.2 第 4 試験と同様の方法で飼養管理した。

試験区は何も添加しない対照区 (CONT5)、砥食性を改良して 6% の PB を配合した固形塩 (中央研究所試製 5 kg 規格 lot.130930; 日本全薬工業株式会社, 郡山市) を自由摂取させる 6%SB2 区および砥食性を改良した PB 固形塩粉末を経口投与する 6%OA2 区の 3 区を設定し、1 期が予備期 16 日、本研究期 5 日からなる 3×3 ラテン方格法により給与試験を実施した。なお、CONT5 区は PB を含まない固形塩 (鉍塩セレンク TZ 5 kg 規格 lot.130708A; 日本全薬工業

株式会社, 郡山市) を自由摂取させた。なお、各試験区に用いた固形塩の成分は Table 4-2 に示した。

試験期間中には、給与量および残飼量を毎日秤量し、乾物摂取量を求めた。また、固形塩は毎日秤量し固形塩摂取量と PB 摂取量を求めた。乳を搾乳時に採取し、朝夕の採材物を乳量に対して一定の割合で混合して、成分分析用の試料とした。血液は本研究期の 1、3、5 日目の 13:00 に頸静脈より採血し、試料の一部を 2,150×G で 15 分間遠心分離後、血清を代謝産物測定試料とした。

4.2.2.3 試料の分析

乳の成分、飼料原料、供試飼料、残飼および糞の乾物、粗脂肪、粗灰分、試料の CP、ADFom、NDFom の測定は、3.2.1.3 試料の分析と同様に行った。

4.2.2.4 試料の放射性セシウム濃度測定方法

乳は 2,000 ml、糞および尿の放射性 Cs 濃度測定には 700 ml のマリネリ容器を用いた。また、供試飼料および残飼は 100 ml の U8 容器を用いて測定した。乳、糞、尿、供試試料および残飼は原物を測定に供した。放射性物質の測定は、いずれもセイコー・イージーアンドジー株式会社 (東京) により、¹³⁴Cs と ¹³⁷Cs の混合標準線源 (MX035; 日本アイソトープ協会, 東京) を用いて校正された高純度ゲルマニウム半導体検出器 (GEM20-70; セイコー・イージーアンドジー株式会社, 東京) を用い、ガンマ線スペクトロメトリーにより放射性 Cs を同定した。飼料は 1,500 秒、乳は 1,200 秒、糞および尿は 1,500 秒間測定を行い、放射性 Cs 濃度を算出した。

4.2.2.5 放射性セシウムの移行に関する計算式

飼料から糞、尿および乳への放射性 Cs の分配率 (%)、見かけの吸収係数、Fm および CR は、3.2.1.5 放射性 Cs の移行に関する計算式と同様に行った。

4.2.2.6 血液検査

血液代謝物および電解質の測定は、4.2.1.6 血液検査と同様の方法で行った。

4.2.2.7 統計解析

データは平均値±標準偏差で示した。ラテン方格法に基づき、統計解析は 4.2.1.7 統計解析と同様の方法で行った。

4.3 結果

4.3.1 プルシアンブルー含有固形塩投与試験 (第 4 試験)

供試飼料の配合割合と化学成分を Table 4-1 に示した。第 4 試験で用いた TMR の乾物率、TDN、CP および NDFom 含量は、それぞれ 69.6%、64.3%、13.2% および 50.7% であった。TMR の放射性 Cs 濃度は 175 Bq/kg-dry、水分含有量を 80% に換算した放射性 Cs 濃度は 35 Bq/kg であった。

4.3.1.1 プルシアンブルー投与が泌乳牛の生産性に及ぼす影響

乾物摂取量、PB 摂取量、放射性 Cs 摂取量、見か

けの乾物消化率、乳量および乳成分を Table 4-4 に示した。乾物摂取量は各区間に差は見られず、平均 19.6 kg/日であった。固形塩の摂取量は CONT4 区、6%SB 区、6%OA 区および 1.6%SB 区において、それぞれ 21.7、4.8、50.0、4.8 g/日となり、6%SB 区および 1.6%SB 区において減少する傾向が見られた ($P < 0.10$)。PB 摂取量は、6%SB 区、6%OA 区および 1.6%SB 区において、それぞれ 0.3、3.0 および 0.1 g/日となり、6%OA 区と比較して 6%SB 区および 1.6%SB 区において少なかった ($P < 0.05$)。放射性 Cs 摂取量は、各区間に差は見られず、平均で 3,425 Bq/日となった。見かけの乾物消化率は、各区間に差は見られず、平均で 0.62 となった。乳量は各区間に差は見られず、平均 22.2 kg/日となった。乳成分は、乳脂肪、乳タンパク、無脂固形分、乳糖および乳中尿素窒素の各成分は、各区間に差は見られなかった。

4.3.1.2 プルシアンブルー投与と吸収された放射性セシウムの糞、尿および乳への移行

糞、尿、乳および血液における放射性 Cs 濃度、糞、尿および乳における放射性 Cs の排出量、摂取した放射性 Cs に対する分配率、見かけの吸収係数、Fm、CR および乳と尿の放射性 Cs 排出量の比を Table 4-5 に示した。

糞の放射性 Cs 濃度は、CONT4 区、6%SB 区、6%OA 区および 1.6%SB 区において、それぞれ 33.4、40.5、53.4 および 33.4 Bq/kg-fresh となり、6%SB 区および 6%OA 区は他の 2 区と比較して増加した ($P < 0.05$)。糞の放射性 Cs 量は、CONT4 区、6%SB 区、6%OA 区および 1.6%SB 区において、それぞれ 1,920、2,460、3,140 および 1,900 Bq/日となり、6%OA 区および 6%SB 区は他の 2 区と比較して増加する傾向が見られた ($P < 0.10$)。放射性 Cs の糞への分配率は、

CONT4 区、6%SB 区、6%OA 区および 1.6%SB 区において、それぞれ 54.6、68.7、93.2 および 55.7% となり、6%SB 区と 6%OA 区は他の 2 区と比較して増加した ($P < 0.05$)。糞への分配率は、CONT4 区と比較して 6%OA 区および 6%SB 区において増加した ($P < 0.05$)。一方、放射性 Cs の見かけの吸収係数は、CONT4 区と比較して 6%OA 区および 6%SB 区において減少した ($P < 0.05$)。放射性 Cs の糞の分配率は PB 摂取量との間に正の相関 ($r = 0.67, P < 0.05$) が見られた (Figure 4-2)。

尿の放射性 Cs 濃度は、各区間に差は見られなかったが、乳の放射性 Cs 濃度と正の相関 ($r = 0.62, P < 0.01$) が見られた。尿の放射性 Cs 量は PB 摂取量の増加にともない減少する傾向が見られた ($r = -0.51, P < 0.10$)。尿への分配率は、CONT4 区と比較して差は見られず、PB 摂取量の増加に伴い減少する傾向 ($r = -0.49, P < 0.10$) が見られた (Figure 4-2)。

乳の放射性 Cs 濃度は、すべての区において 50 Bq/kg-fresh を下回り、CONT4 区、6%SB 区、6%OA 区および 1.6%SB 区において、それぞれ 16.4、10.9、8.6 および 11.4 Bq/kg-fresh となり、CONT4 区と比較して 6%OA 区において減少する傾向が見られた ($P < 0.10$)。また、乳の放射性 Cs 濃度と PB 摂取量との間に負の相関 ($r = -0.69, P < 0.05$) が見られた。乳の放射性 Cs 量は PB 摂取量とそれぞれ負の相関 ($r = -0.67, P < 0.05$) が見られた。放射性 Cs の乳の分配率は PB 摂取量との間に負の相関 ($r = -0.68, P < 0.05$) が見られた (Figure 4-2)。乳への分配率は、糞への分配率の増加に伴い減少する傾向 ($r = -0.55, P < 0.10$) が見られた。

Table 4-4 Intake, apparent absorption coefficient of dry matter, and milk production of cows in experiment 4.

Item	Dietary treatment ¹⁾ (n=12)									
	CONT4		6% SB		6% OA		1.6% SB			
Intake										
Dry matter intake (kg/day)	19.6	± 1.4	²⁾	20.2	± 0.8	19.3	± 2.6	19.1	± 1.7	
Salt block intake (g/day)	21.7	^A ±	20.5	4.8	^A ± 4.6	50.0	^B ± 0.0	4.8	^A ± 0.0	
Prussian blue intake (g/day)	0	^a		0.3	^a ± 0.3	3.0	^b ± 0.0	0.1	^a ± 0.0	
¹³⁴⁺¹³⁷ Cs intake (Bq/day)	3,460	± 760		3,540	± 460	3,360	± 480	3,340	± 600	
Apparent absorption coefficient of dry matter	0.631	± 0.028		0.619	± 0.025	0.596	± 0.002	0.628	± 0.018	
Milk yield (kg/day)	21.9	± 3.2		22.9	± 1.8	21.2	± 5.0	22.7	± 5.0	
Milk composition										
Fat (%)	4.62	± 0.74		4.25	± 0.53	4.88	± 0.64	4.52	± 0.90	
Protein (%)	3.93	± 0.41		3.58	± 0.12	4.02	± 0.68	3.77	± 0.62	
Solids-not-fat (%)	9.19	± 0.33		8.87	± 0.38	9.20	± 0.56	9.18	± 0.51	
Lactose (%)	4.26	± 0.41		4.29	± 0.51	4.18	± 0.31	4.42	± 0.14	
Urea nitrogen (mg/100ml)	5.46	± 2.41		6.77	± 3.72	8.06	± 2.28	7.80	± 4.35	

a,b: Means in a row with different superscript differ significantly ($P < 0.05$).

A,B: Means in a row with different superscript differ significantly ($P < 0.10$).

1) Dietary treatment: CONT4 = free access to a salt block including no Prussian blue; 6% SB = free access to a salt block including 6% of Prussian blue; 6% OA = oral administration of 50 g of a powder of the salt block including 6% of Prussian blue; 1.6% SB = free access to another salt block including 1.6% of Prussian blue.

2) Standard deviation.

Table 4-5 Radiocesium activity concentration, excretion of radiocesium, proportion of radiocesium to ingested radiocesium, apparent absorption coefficient of radiocesium, transfer coefficient of radiocesium from feed to milk, concentration ratio, and ratio of radiocesium in milk to radiocesium in urine of cows in experiment 4.

Item	Dietary treatment ¹⁾ (n=12)									
	CONT4		6% SB		6% OA		1.6% SB			
Radiocesium activity concentration ²⁾ (Bq/kg-fresh)										
Feces	33.4 ^a	± 11.1 ³⁾	40.5 ^b	± 13.5	53.4 ^b	± 18.8	33.4 ^a	± 7.0		
Urine	73.2	± 2.9	66.5	± 3.9	44.9	± 18.2	53.7	± 2.8		
Milk	16.4 ^B	± 3.1	10.9 ^B	± 2.2	8.6 ^A	± 1.9	11.4 ^B	± 3.5		
Blood	L.T.D.(<2.0) ⁴⁾		L.T.D.(<1.8)		L.T.D.(<2.0)		L.T.D.(<2.0)			
Excretion of radiocesium (Bq/day)										
Feces	1,920 ^A	± 640	2,460 ^B	± 640	3,140 ^B	± 750	1,900 ^A	± 730		
Urine	1,340	± 210	1,150	± 151	890	± 410	930	± 130		
Milk	360	± 90	250	± 70	180	± 20	250	± 70		
Proportion of radiocesium to ingested radiocesium (%)										
Feces	54.6 ^a	± 7.0	68.7 ^{ab}	± 10.3	93.2 ^b	± 17.0	55.7 ^a	± 11.3		
Urine	39.1	± 2.9	32.7	± 4.8	26.0	± 9.6	28.1	± 1.5		
Milk	10.4	± 0.9	7.1	± 1.8	5.5	± 1.3	7.4	± 0.7		
Apparent absorption coefficient of radiocesium										
	0.454 ^b	± 0.070	0.313 ^{ab}	± 0.103	0.068 ^a	± 0.170	0.443 ^b	± 0.113		
Transfer coefficient of radiocesium from feed to milk (Fm : day/kg)										
Fm × 10 ⁻³	4.77 ^B	± 0.30	3.10 ^B	± 0.68	2.61 ^A	± 0.65	3.41 ^B	± 0.91		
Concentration ratio										
CR × 10 ⁻²	9.34 ^b	± 0.53	6.27 ^b	± 1.28	4.93 ^a	± 0.51	6.42 ^b	± 1.27		
Ratio of radiocesium in milk to radiocesium in urine										
Milk / Urine	0.27	± 0.03	0.23	± 0.09	0.25	± 0.16	0.27	± 0.04		

a,b: Means in a row with different superscript differ significantly ($P < 0.05$).

A,B: Means in a row with different superscript differ significantly ($P < 0.10$).

¹⁾ Dietary treatment: CONT4 = free access to a salt block including no Prussian blue; 6% SB = free access to a salt block including 6% of Prussian blue; 6% OA = oral administration of 50 g of a powder of the salt block including 6% of Prussian blue; 1.6% SB = free access to another salt block including 1.6% of Prussian blue.

²⁾ Radiocesium activity concentration was calculated by summing ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs.

³⁾ Standard deviation.

⁴⁾ Less than detectable ($<$ detection limit).

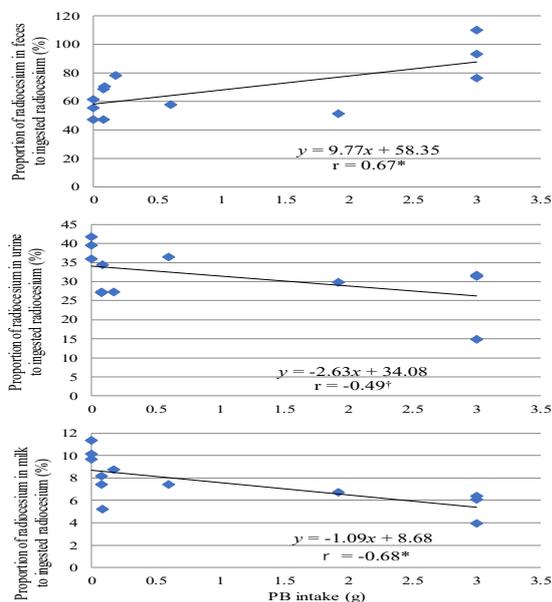


Figure 4-2 Correlation between PB intake and proportion of radiocesium to ingested radiocesium in feces, urine, and milk.

*: Means significant difference ($P < 0.05$).

†: Means significant difference ($P < 0.10$).

4.3.1.3 吸収された放射性セシウムの乳における移行係数と濃度比

Fm は、CONT4 区、6%SB 区、6%OA 区および 1.6%SB 区において、それぞれ 4.77×10^{-3} 、 3.10×10^{-3} 、 2.61×10^{-3} および 3.41×10^{-3} となり、CONT4 区と比較して 6%OA 区において 45%減少する傾向が見られた ($P < 0.10$) (Table 4-5)。すべての処理区における Fm は、PB 摂取量と負の相関 ($r = -0.64$, $P < 0.05$) が見られた。

CR は、CONT4 区、6%SB 区、6%OA 区および 1.6%SB 区において、それぞれ 9.34×10^{-2} 、 6.27×10^{-2} 、 4.93×10^{-2} および 6.42×10^{-2} となり、CONT4 区と比較して 6%OA 区において 42%減少する傾向が見られた ($P < 0.05$)。CR は PB 摂取量と負の相関 ($r = -0.71$, $P < 0.01$) が見られた。尿および乳の放射性 Cs 排出量の比は PB 摂取量の影響を受けず、平均 0.25 となった (Table 4-5)。すべての動物において、放射性 Cs が尿および乳で検出されたが、血液中の放射性 Cs 濃度は、Cooper の式 (Cooper, 1970) によって計算された 1.8–2.0 Bq/kg の検出限界値を下回り、検出下限未満となった。

4.3.1.4 血液中の細胞成分と代謝産物

第 4 試験の飼養期間を通じて、健康状態に異常は認められなかった。また、血液細胞成分および血液代謝物において各区間に差は見られず (Table 4-6)、すべての値は基準値以内であった (元井, 1998; NRC, 2001; JLTA, 2005)。

Table 4-6 Cellular component and metabolite in blood of cows in experiment 4.

Item		Dietary treatment ¹⁾ (n=12)							
		CONT4		6% SB		6% OA		1.6% SB	
Cellular component									
White blood cell	×10 ² /μL	95.4 ± 18.8 ²⁾	77.2 ± 8.6	84.3 ± 24.3	84.1 ± 18.4				
Red blood cell	×10 ⁴ /μL	624.4 ± 85.3	609.6 ± 90.4	603.0 ± 56.4	617.1 ± 52.3				
Platelets	×10 ⁴ /μL	46.5 ± 6.1	41.5 ± 9.5	51.7 ± 11.1	46.7 ± 5.8				
Hemoglobin	g/dL	9.7 ± 0.9	9.7 ± 1.4	9.9 ± 1.2	9.9 ± 0.4				
Hematocrit	%	31.0 ± 3.1	30.9 ± 4.0	31.2 ± 3.2	30.7 ± 2.9				
Metabolites									
Total protein	g/dL	7.53 ± 0.32	7.87 ± 0.72	8.51 ± 0.86	7.84 ± 0.85				
Albumin	g/dL	3.62 ± 0.16	3.61 ± 0.15	3.61 ± 0.36	3.67 ± 0.22				
Total bilirubin	mg/dL	0.12 ± 0.04	0.11 ± 0.03	0.12 ± 0.04	0.11 ± 0.03				
Urea nitrogen	mg/dL	8.21 ± 1.05	9.69 ± 2.59	9.94 ± 1.81	9.48 ± 1.55				
Creatinine	mg/dL	0.73 ± 0.06	0.76 ± 0.09	0.69 ± 0.03	0.70 ± 0.06				
Aspartate aminotransferase	IU/L	68.67 ± 15.93	60.78 ± 8.39	70.89 ± 13.97	69.11 ± 8.98				
Alanine aminotransferase	IU/L	28.11 ± 2.62	26.56 ± 4.30	27.67 ± 4.30	27.44 ± 1.33				
Alkaline phosphatase	IU/L	197.00 ± 21.40	160.33 ± 60.89	155.00 ± 48.25	144.11 ± 50.15				
γ-glutamyl transferase	IU/L	31.22 ± 7.12	26.89 ± 2.98	33.11 ± 5.44	32.00 ± 5.59				
Sodium	mmol/L	140.04 ± 1.10	141.53 ± 1.20	140.57 ± 1.46	140.73 ± 1.02				
Potassium	mmol/L	3.77 ± 0.37	3.35 ± 0.34	3.54 ± 0.32	3.69 ± 0.37				
Chlorine	mmol/L	100.76 ± 0.77	101.68 ± 1.08	101.02 ± 1.05	101.23 ± 1.20				

¹⁾ Dietary treatment: CONT4 = free access to a salt block including no Prussian blue; 6% SB = free access to a salt block including 6% of Prussian blue; 6% OA = oral administration of 50 g of a powder of the salt block including 6% of Prussian blue; 1.6% SB = free access to another salt block including 1.6% of Prussian blue.

²⁾ Standard deviation.

4.3.2 改良プルシアンブルー含有固形塩投与試験 (第5試験)

供試飼料の配合割合と化学成分を Table 4-3 に示した。第5試験で用いた TMR の乾物率、TDN、CP および NDFom 含量は、それぞれ 60.0%、73.7%、15.9% および 42.2% であった。TMR の放射性 Cs 濃度は 927 Bq/kg-dry、水分含有量を 80% に換算した放射性 Cs 濃度は 185 Bq/kg であった。

4.3.2.1 プルシアンブルー投与が泌乳牛の生産性に及ぼす影響

乾物摂取量、固形塩摂取量、PB 摂取量、放射性 Cs 摂取量、乳量および乳成分を Table 4-7 に示した。乾物の飼料摂取量は各区間に差は見られず、平均 16.4 kg/日となった。固形塩の摂取量は CONT5 区が 73.0 g/日、PB 固形塩の摂取量は 6%SB2 区において 315.2 g/日、6%OA2 区において 50.0 g/日となり、第4試験の 6%SB 区と比較して 6%SB2 区では 60 倍以上の

固形塩および PB の摂取量となり、固形塩の凝固方法を低圧プレス方式からケミカル方式に変更し、固形塩の成分を改善することにより砥食性が向上した。PB 摂取量は、6%SB2 区において 18.9 g/日、6%OA2 区において 3.0 g/日となり、6%OA2 区と比較して 6%SB2 区において多くなった ($P < 0.05$)。放射性 Cs 摂取量は各区間に差は見られず、平均で 15,196 Bq/日であった。乳量は各区間に差は見られず、平均で 27.7 kg/日となった。乳脂肪、乳タンパク、無脂固形分、乳糖および乳中尿素窒素の各乳成分は、各区間に差は見られなかった。

4.3.2.2 プルシアンブルー投与と吸収された放射性セシウムの乳への移行

乳における放射性 Cs 濃度、放射性 Cs の排出量、摂取した放射性 Cs に対する分配率、Fm および CR を Table 4-8 に示した。

乳の放射性 Cs 濃度は、CONT5 区、6%SB2 区およ

Table 4-7 Intake and milk production of cows in experiment 5.

Item		Dietary treatment ¹⁾ (n=9)					
		CONT5		6%SB2		6%OA2	
Intake	Dry matter intake (kg/day)	16.4 ± 2.1 ²⁾	16.4 ± 1.5	16.3 ± 3.2			
	Salt block intake (g/day)	73.0 ± 15.0	315.2 ± 225.5	50.0 ± 0.0			
	Prussian blue intake (g/day)	0	18.9 ^b ± 13.5	3.0 ^a ± 0.0			
	¹³⁴⁺¹³⁷ Cs intake (Bq/day)	15,220 ± 1,940	15,300 ± 1,380	15,070 ± 2,960			
Milk yield (kg/day)		27.6 ± 2.7	28.2 ± 2.5	27.4 ± 4.2			
Milk composition	Fat (%)	3.74 ± 0.07	3.78 ± 0.12	3.57 ± 0.24			
	Protein (%)	2.96 ± 0.23	3.09 ± 0.32	3.00 ± 0.20			
	Solids-not-fat (%)	8.32 ± 0.33	8.57 ± 0.29	8.50 ± 0.17			
	Lactose (%)	4.36 ± 0.11	4.48 ± 0.07	4.50 ± 0.03			
	Urea nitrogen (mg/100ml)	12.38 ± 1.76	11.59 ± 3.13	12.06 ± 3.91			

^{a,b}: Means in a row with different superscript differ significantly ($P < 0.05$)

¹⁾ Dietary treatment: CONT5 = free access to a salt block including no Prussian blue; 6% SB2 = free access to a salt block including 6% of Prussian blue; 6% OA2 = oral administration of 50 g of a powder of the salt block including 6% of Prussian blue.

²⁾ Standard deviation.

Table 4-8 Radiocesium activity concentration in milk, excretion of radiocesium in milk, proportion of radiocesium to ingested radiocesium in milk and transfer coefficient of radiocesium from feed to milk, and concentration ratio of cows in experiment 5.

Item	Dietary treatment ¹⁾ (n=9)							
	CONT5		6% SB2		6% OA2			
Radiocesium activity concentration ²⁾ (Bq/kg-fresh)								
Milk	24.3 ^c ±	9.3 ³⁾	4.2 ^a ±	2.4	15.1 ^b ±	10.3		
Excretion of radiocesium (Bq/day)								
Milk	669 ^c ±	246	120 ^a ±	69	442 ^b ±	366		
Proportion of radiocesium to ingested radiocesium (%)								
Milk	4.4 ^c ±	1.7	0.8 ^a ±	0.4	2.7 ^b ±	1.8		
Transfer coefficient of radiocesium from feed to milk (Fm : day/kg)								
Fm × 10 ⁻³	1.68 ^b ±	0.75	0.28 ^a ±	0.15	0.98 ^b ±	0.48		
Concentration ratio								
CR × 10 ⁻²	2.83 ^b ±	1.61	0.50 ^a ±	0.38	1.87 ^b ±	1.69		

^{a,b,c}: Means in a row with different superscript differ significantly ($P < 0.05$)

¹⁾ Dietary treatment: CONT5 = free access to a salt block including no Prussian blue; 6% SB2 = free access to a salt block including 6% of Prussian blue; 6% OA2 = oral administration of 50 g of a powder of the salt block including 6% of Prussian blue.

²⁾ Radiocesium activity concentration was calculated by summing ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs.

³⁾ Standard deviation.

び 6%OA2 区において、それぞれ 24.3、4.2 および 15.1 Bq/kg-fresh となり、CONT5 区と比較して 6% PB2 区および 6%OA2 区において減少した ($P < 0.05$)。乳の放射性 Cs 濃度は、PB 摂取量の増加に伴い減少する傾向 ($r = -0.63, P < 0.10$) が見られた。1 日当たりの放射性 Cs 摂取量は、各区間に差は見られなかった。

乳の放射性 Cs 量は、PB 摂取量が最大となる 6% SB2 区において最小となり ($P < 0.05$)、PB 摂取量の増加に伴い減少する傾向 ($r = -0.61, P < 0.10$) が見られた。

乳への分配率は、PB 摂取量の増加に伴い減少する傾向 ($r = -0.63, P < 0.10$) が見られ、同様に、Fm は、PB 摂取量の増加に伴い減少する傾向 ($r = -0.63, P < 0.10$) が見られた。Fm は、CONT5 区、6%SB2 区および 6%OA2 区において、それぞれ 1.68×10^{-3} 、 0.28×10^{-3} および 0.98×10^{-3} となり、CONT5 区と比較して、6%PB2 区において 83%、6%OA2 区において

41%減少した ($P < 0.05$)。CR は、CONT5 区、6% SB2 区および 6%OA2 区において、それぞれ 2.83×10^{-2} 、 0.50×10^{-2} および 1.87×10^{-2} となり、CONT5 区と比較して、6%PB2 区において 82%、6%OA2 区において 34%減少した ($P < 0.05$)。第 5 試験における放射性 Cs 摂取量は第 4 試験と比較して高かったが、Fm および CR は第 4 試験と比較して第 5 試験において低い値となった ($P < 0.01$)。第 4 試験と第 5 試験の結果をまとめて分析すると、PB 摂取量と Fm に負の高い相関 ($r = -0.55, P < 0.01$) が見られた。また、PB 摂取量と CR に負の相関 ($r = -0.54, P < 0.05$) が見られた。

4.3.2.3 血液中の代謝産物

第 5 試験の飼養期間を通じて、健康状態に異常は認められなかった。また、血液代謝産物および電解質の測定において各区間に差は見られず (Table 4-9)、すべての値は基準値以内であった (元井, 1998; NRC, 2001; JLTA, 2005)。

Table 4-9 Blood metabolites of cows in experiment 5.

Item		Dietary treatment ¹⁾ (n=9)					
		CONT5		6% SB2		6% OA2	
Total protein	g/dL	7.62 ±	0.56 ²⁾	7.42 ±	0.98	7.84 ±	0.57
Albumin	g/dL	4.97 ±	2.19	3.78 ±	0.19	5.30 ±	2.37
Total bilirubin	mg/dL	0.14 ±	0.05	0.14 ±	0.05	0.13 ±	0.06
Urea nitrogen	mg/dL	17.00 ±	2.10	15.91 ±	5.68	16.70 ±	4.72
Creatinine	mg/dL	0.89 ±	0.10	0.83 ±	0.06	0.88 ±	0.10
Aspartate aminotransferase	IU/L	76.67 ±	2.89	67.56 ±	4.83	76.00 ±	1.73
Alanine aminotransferase	IU/L	30.78 ±	3.20	28.11 ±	2.46	29.67 ±	0.88
Alkaline phosphatase	IU/L	158.56 ±	71.00	107.67 ±	28.34	126.44 ±	37.05
γ-glutamyl transferase	IU/L	26.44 ±	5.30	23.22 ±	1.84	25.78 ±	4.55
Sodium	mmol/L	140.17 ±	1.32	138.81 ±	2.51	139.07 ±	2.52
Potassium	mmol/L	3.72 ±	0.51	3.75 ±	0.09	3.69 ±	0.09
Chlorine	mmol/L	101.03 ±	1.08	99.80 ±	1.13	99.64 ±	3.51

¹⁾ Dietary treatment: CONT5 = free access to a salt block including no Prussian blue; 6% SB2 = free access to a salt block including 6% of Prussian blue; 6% OA2 = oral administration of 50 g of a powder of the salt block including 6% of Prussian blue.

²⁾ Standard deviation.

4.4 考察

4.4.1 摂取された放射性セシウムの排出経路

本研究では、泌乳牛が摂取した放射性 Cs の 50% 以上を糞に排出し (Table 4-5)、摂取した放射性 Cs に対する糞への分配率の増加に伴い、乳への分配率は減少する傾向を示した ($r = -0.55, P < 0.10$)。これまでの研究 (Johnson *et al.*, 1968; Arnaud *et al.*, 1988; Unsworth *et al.*, 1989) では、摂取した放射性 Cs の 50% 以上が糞に排出されたことが報告されており、ゼオライトを投与した第 3 章でも同様なことが認められた。Unsworth *et al.* (1989) は、泌乳牛においてベントナイトと共にフォールアウトによって放射性 Cs が直接沈着した牧草サイレージを給与した場合、摂取した放射性 Cs 量に対して糞に排出される放射性 Cs 量の割合が 75–112% の範囲であることを報告している。泌乳牛によって摂取された放射性 Cs の糞による排出は、放射性 Cs の最も主要な排出経路であり、糞への排出の促進は、乳への放射性 Cs の移行を抑制するための効果的な手法と考えられた。

4.4.2 放射性セシウムの吸収と排出

小林ら (1998) は、ヒト体内における Cs には、上部消化管で速やかに吸収された Cs が下部消化管において分泌および再吸収される「腸肝循環」(Enterohepatic circulation) という代謝経路があると指摘している。さらに、PB を用いた Cs の体内における吸収抑制のメカニズムは、この代謝経路で腸管壁からの Cs 再吸収を阻害することにより、糞中への放射性 Cs の排出を促進するものと指摘している。

PB 投与による消化管からの放射性 Cs 吸収の抑制に対する効果は、ヒツジにおいて Phillippo *et al.* (1988)、乳牛においては Arnaud *et al.* (1988)、Giese (1989)、Unsworth *et al.* (1989)、Voigt *et al.* (1989)、トナカイにおいては Birgitta *et al.* (1990) や Hove (1993) により報告されている。Arnaud *et al.* (1988) は、3,000 Bq/kg-dry の放射性 Cs を含む飼料を給与した場合、PB 投与が糞の放射性 Cs の排出を促進し、乳牛の体内器官への吸収を抑制したことを報告した。しかし、これらの研究で使用された飼料中の放射性 Cs 濃度は、500 Bq/kg-dry を上回っていた。国内では乳における放射性 Cs の基準値である 50 Bq/kg-fresh 未満の乳を確保するために、飼料中の放射性 Cs の暫定許容値は 500 Bq/kg-dry (農林水産省, 2012) となっている。第 4 試験の結果より、糞中の放射性 Cs の排出量は、PB 摂取量の増加と共に増加した ($r = 0.67, P < 0.05$)。この結果から、PB 投与は、飼料中の放射性 Cs 濃度が 500 Bq/kg-dry 未満であっても、糞への放射性 Cs 排出を促進することが示唆された。

PB は Cs を選択的に結合すると報告されている (Giese, 1988; Voigt, 1993) ことから、PB 摂取量の増加による放射性 Cs の見かけの吸収係数の減少は、ウシ消化管内で PB が放射性 Cs を吸着した結果であると考えられた。糞で排出される放射性 Cs は、飼

料由来および一旦消化管から吸収されて体内の組織に分布した後に消化管に再分泌される内因性の放射性 Cs の両方であること (Mayes *et al.*, 1996) が知られているが、Mayes *et al.* (1996) は、放射性 Cs の真の吸収係数が反芻動物の放射性 Cs の見かけの吸収係数よりも高いことを示している。PB が飼料由来の放射性 Cs の排出を促進するかを検証するためには、糞中の内因性放射性 Cs の排出も考慮しなければならない。本研究では、糞中の内因性放射性 Cs の排出量は測定していないが、尿中の放射性 Cs の排出量は PB に供給された供試牛では数値的に低かった。石川ら (2018) や伊藤 (2012) は過去に放射性 Cs を摂取していたウシに対して粘土鉱物や PB を投与したが、糞や尿への放射性 Cs の排出量は増えなかったと報告している。このことから、PB 投与により内因性の放射性 Cs の排出量が増加する可能性は低いと推察された。

第 5 試験では、給与飼料の放射性 Cs 濃度が 500 Bq/kg-dry を上回っていたが、乳への放射性 Cs 移行は PB を投与することによって減少した。第 5 試験では、全糞量を採取して糞の放射性 Cs 濃度の測定は実施しなかったが、PB を投与することにより乳への放射性 Cs の移行抑制が見られたのは、第 4 試験や既知の報告 (Arnaud *et al.*, 1988; Unsworth *et al.*, 1989; Fesenko *et al.*, 2007) と同様に、糞への放射性 Cs の増加によるものであると考えられた。これらのことから、PB の投与は、飼料中の放射性 Cs 濃度が 500 Bq/kg-dry 以上または 500 Bq/kg-dry 未満であることにかかわらず、飼料由来の放射性 Cs の排出を促進できると考えられた。

4.4.3 家畜栄養素のミネラルへの影響

ベントナイトやゼオライトなどの粘土鉱物は、摂取された放射性 Cs を消化管内で吸着することにより、糞中への排出を促進することが報告されている (Arnaud *et al.*, 1988; Unsworth *et al.*, 1989; Voigt *et al.*, 1989)。しかし、これらの粘土鉱物の投与は、放射性 Cs を選択的に吸着することはなく、カリウムやナトリウムなどの金属イオンをも同時に吸着してしまう。粘土鉱物による消化管中のカルシウム、マグネシウム、リンの吸着は、粘土鉱物を摂取した家畜のミネラルバランスに影響を与えることが示されている (Thilsing-Hansen *et al.*, 2002; Trckova *et al.*, 2004)。Trckova *et al.* (2004) は、ゼオライトの投与により、乳牛の血清中のリンおよびマグネシウム濃度の減少が引き起こされることを報告している。PB は、一般的にはヘキサシアノ鉄 (II) 酸鉄 (III) やフェロシアン化鉄 (III) と呼ばれており、 $\text{Fe(III)}_4[\text{Fe(II)(CN)}_6]_3 \cdot (14-16)\text{H}_2\text{O}$ で示される不溶性のフェロシアン化物である (Figure 4-1)。Giese (1988) は、PB (ヘキサシアノ鉄酸鉄のうちヘキサシアノ鉄酸アンモニウム鉄 (Ammonium ferric hexacyanoferrate: AFCE) のアルカリ金属イオンの補足性能はイオン半径に関係し、

Cs イオン (0.167 pm) <ルビジウム (Rb) イオン (0.144 pm) <カリウム (K) イオン (0.133 pm) <ナトリウム (Na) イオン (0.097 pm) と半径の大きい順に捕捉されやすいと報告している (Figure 4-1)。また、Watari *et al.*, (1968) は、0.1M 塩酸溶液中のアルカリ金属イオンの分配係数 (kd) はナトリウムイオンが 1 に対して Cs イオンが 10,000 であり、Cs イオンが他のアルカリ金属と比べて放射性 Cs を選択的に吸着する働きがあることを報告している。第 4 試験および第 5 試験 (Table 4-5 および 4-9) では、血清中のナトリウムおよびカリウム濃度は PB 投与によって影響を受けず、濃度は乳牛の標準的な数値の範囲であった (元井, 1988; NRC, 2001; JLTA, 2005)。また、第 4 試験の血液中の細胞成分や、第 4 および第 5 試験の血液中代謝産物の分析値は、乳牛の標準的な範囲内 (元井, 1988; NRC, 2001; JLTA, 2005) にあり、有意な差は見られず、PB 摂取の影響はほとんど無いことが示唆された。Parab and Sudersanan (2010) は、放射性廃棄物溶液中において PB はカリウムイオンに対する結合力が小さく、放射性 Cs を特異的に吸着する性質があることを報告している。これらのことから、放射性 Cs を含むルーメン溶液中でも PB はナトリウムイオンやカリウムイオンの吸着への影響は少なく、血液中の化学成分に変化がなかったと考えられた。

Unsworth *et al.* (1989) は、1,747 Bq/kg-dry の放射性 Cs を含む飼料と共に PB を 1 日当たり 3 g を 20 日間投与した場合に、牛の血清カルシウム、リン酸塩、ナトリウム、銅、マグネシウム、カリウムのレベルおよびグルタチオンペルオキシダーゼ活性が影響を受けなかったことを報告している。また、Vreman *et al.* (1992) は、放射性 Cs を含む飼料と共に 1 日当たり 5 g の PB を 4 週間投与したときに、乳牛の乳および臓器中のナトリウムおよびカリウム濃度が減少しなかったことを報告している。さらに、Giese (1989) は、泌乳牛と子牛を用いた試験のいずれにおいても、PB は健康状態と乳生産性に対して影響を与えない物質であると報告している。このことから、PB 投与は飼料中の放射性 Cs 濃度が 500 Bq/kg-dry 未満であったとしても、乳牛の消化管からの家畜の栄養素としてのナトリウムおよびカリウムの吸収に影響を及ぼさずに糞の放射性 Cs の排出を促進したと考えられた。

4.4.4 乳への放射性セシウム移行抑制に対するプルシアンブルーと粘土鉱物との違い

本研究では、第 5 試験において PB を投与していない供試牛の乳の放射性 Cs 濃度は第 4 試験より高かったが、両試験ともに乳の放射性 Cs 濃度は食品衛生法で定める国内の基準値である 50 Bq/kg-fresh (厚生労働省, 2012) より低くなった。乳の放射性 Cs 濃度は、第 4 試験において 3.0 g/日の PB を投与したときに 16.4 Bq/kg-fresh から 8.6 Bq/kg-fresh に減少す

る傾向を示し ($P < 0.10$; Table 4-5)、また、第 5 試験において 18.9 g/日の PB を供給したときに 24.3 Bq/kg-fresh から 4.2 Bq/kg-fresh に減少した ($P < 0.05$; Table 4-8)。乳の放射性 Cs 濃度の減少は粘土鉱物の投与によって示されている (Unsworth *et al.*, 1989) が、粘土鉱物は、PB と比較して乳の放射性 Cs 濃度を減少させるために 10–100 倍の用量を必要とした。ゼオライトを投与した第 3 章では、200 g/日のゼオライトを投与することにより、乳の放射性 Cs 濃度は 14.7 から 6.5 Bq/kg-fresh に減少することを確認した。Unsworth *et al.* (1989) は、300 g/日のゼオライトを投与することにより、乳の放射性 Cs 濃度は 28.0 Bq/kg-fresh から 18.2 Bq/kg-fresh に減少したことを報告している。一方、Arnaud *et al.* (1988) は、3.0 g/日の PB をトウモロコシサイレージに添加して投与することにより ^{137}Cs の糞への排出が促進され、乳への排出が抑制されたと報告している。第 4 試験では、PB を含む固形塩の嗜好性が低く、PB 摂取量が 1.0 g/日未満であった (Table 4-4)。しかし、第 5 試験では、PB 固形塩の成分組成の一部変更とその製造方法の改良により固形塩の嗜好性が高まったことにより、6%PB を含む固形塩からの PB 摂取量は 18.9 g/日となった (Table 4-7)。これらの結果から、給与飼料の放射性 Cs 濃度が国内の暫定許容値 500 Bq/kg-dry (農林水産省, 2012) を下回っている場合でも、PB は粘土鉱物よりも少ない用量で乳の放射性 Cs 濃度を抑制させる効果があることが示唆された。また、PB を固形塩に混合することにより、容易に泌乳牛に摂取させることが可能であることが示唆された。

4.4.5 消化管から吸収された放射性セシウムの排出

第 4 試験では、消化管から吸収された後に排出された放射性 Cs のうち、尿の放射性 Cs 排出量と乳の放射性 Cs 排出量の比は、平均 0.24 であった。第 3 章では、乳牛において 203 Bq/kg-dry の放射性 Cs を含む飼料を給与し 31.9 kg/日の乳を生産したとき、尿の放射性 Cs 排出量に対する乳の放射性 Cs 量の比は平均で 0.25 であることが確認された。また、Arnaud *et al.* (1988) は、乳牛が 1 日当たり 92,700 Bq の放射性 Cs を含む飼料を給与し 18.4 kg/日に乳を生産したとき、尿の放射性 Cs 排出量と乳の放射性 Cs 排出量の比は平均で 0.25 であることを報告している。このことから、消化管より血液を経て吸収された放射性 Cs の乳と尿への移行の比率は、飼料の種類、PB や粘土鉱物の有無に影響を受けず、一定の割合が乳に移行する可能性があると考えられた。また、消化管から乳への移行した放射性 Cs は、泌乳すること以外での排出を促進させることが困難であることが示唆され、消化管からの放射性 Cs の吸収を抑制することは、乳の放射性 Cs 濃度を減らすために実用的かつ効果的な方法であると考えられた。

4.4.6 飼料から乳への放射性セシウム移行

国際原子力機関 (IAEA, 2010) は、これまでに報告された乳牛の乳における Fm の最小値、最大値および平均値を、それぞれ 6.0×10^{-4} 、 6.8×10^{-2} および 4.6×10^{-3} と公表している。本研究の第 4 試験では、PB を投与しない供試牛において、放射性 Cs 濃度が 175 Bq/kg-dry (35 Bq/kg (水分含有量 80%換算)) の TMR を自由採食させ、3,456 Bq/日の放射性 Cs を摂取すると乳から 16.4 Bq/kg-fresh の放射性 Cs が検出され、Fm は 4.77×10^{-3} となった (Table 4-5)。また、第 5 試験では、放射性 Cs 濃度が 927 Bq/kg-dry (185 Bq/kg (水分含有量 80%換算)) の TMR を自由採食させ、15,220 Bq/日の放射性 Cs を摂取すると乳から 24.3 Bq/kg-fresh の放射性 Cs が検出され、Fm は 1.68×10^{-3} となった (Table 4-8)。第 4 試験および第 5 試験において PB を投与しない供試牛における Fm は、Fm 値の最小-最大範囲内であった (IAEA, 2010)。また、国内の事例で報告されている 100 Bq/日未満の放射性 Cs を摂取したときの数値 (伊藤ら, 1994; 三橋, 1996; Aii *et al.*, 1990) の範囲内であった。

また、IAEA (2010) の示す乳牛の CR は、最小値、最大値および平均値でそれぞれ 3.6×10^{-3} 、 6.9×10^{-1} および 1.1×10^{-1} であった。Howard *et al.* (2009a) は、16.1 kg/日の乾物飼料を給与したときの CR が 13×10^{-2} であったと報告している。第 4 試験および第 5 試験における供試牛の CR は、IAEA (2010) の CR 値の範囲内であった。第 4 試験の Fm は、CONT4 区 (Table 4-5) に比べて 6%OA 区で低く、第 5 試験の Fm は、CONT5 区よりも 6%SB2 区で有意に低かった (Table 4-8)。第 4 試験と第 5 試験の両方で Fm と CR の間に高い相関 ($P < 0.01$) があり、Fm と CR は、両試験で PB 投与によって有意に減少した (Table 4-5 および 4-8)。PB の添加は Fm だけでなく CR も抑制することが示唆された。

4.4.7 放射性セシウムを含む飼料と移行係数の関係

本研究により得られた Fm は、両試験において、PB 投与によって有意に減少した (Table 4-5 および 4-8)。これらの結果は、既知の研究における PB 投与により乳の放射性 Cs 濃度が低減するとした結果と同様であった (Leitgeb and Ratheiser, 1990; Unsworth *et al.*, 1989; Voigt *et al.*, 1989)。しかし、本研究における Fm は、第 4 試験よりも第 5 試験において放射性 Cs を多く摂取したにもかかわらず、第 5 試験 (Table 4-5 および 4-8) よりも第 4 試験において大きかった。Stewart *et al.* (1965)、Johnson *et al.* (1968) および三橋 (1996) は、乾草と穀物の給与量の違いにより、乳への放射性 Cs の移行が異なることを指摘している。IAEA (2010) は、Fm の最小値と最大値には大きな違いを示しているが、これは、飼料中の放射性 Cs 濃度が低くても乳の放射性 Cs 濃度が高くなるときがあり、また、飼料中の放射性 Cs 濃度が高くても

乳の放射性 Cs 濃度が低くなることを意味していると考えられた。放射性 Cs がフォールアウトした牧草地における放射性 Cs 汚染が場所によって大きく変動する (Tsuiki and Maeda, 2012a, 2012b) ことを考えると、乳の放射性 Cs 濃度が 50 Bq/kg-fresh を超過するリスクを最小限に抑えるためには、PB などの放射性 Cs 吸着剤を泌乳牛に投与することが必要になると考えられた。

4.4.8 飼料の放射性セシウムの汚染経路と移行係数の関係

第 4 試験におけるペレニアルライグラスの放射性 Cs 吸収経路は、フォールアウトによる直接沈着とその葉面吸収および経根吸収であり、第 5 試験におけるオーチャードグラスは主に経根吸収であったと考えられ、Fm の差が吸収経路によって影響を受ける可能性があると考えられた。しかし、この結果は Beresford *et al.* (2000) や Howard *et al.* (2009b) の報告とは異なっていた。Fm は、フォールアウトによって直接葉面に付着した飼料よりも経根吸収された飼料で高かったことが報告されている (Beresford *et al.*, 2000; Howard *et al.*, 2009b)。Beresford *et al.* (2000) は、ヒツジがフォールアウトによって直接沈着した牧草と比較して経根吸収した牧草を給与したときに、摂取した ^{137}Cs の血漿への移行が高いと報告している。これらの結果に基づくと、第 4 試験と第 5 試験の Fm の違いを飼料放射性 Cs の吸収経路の違いに起因させるのは適切ではないと考えられた。

Howard *et al.* (2009b) は、牧草地の植生の違い、汚染経路の違い、汚染土壌の存在といった環境中の多くの放射性 Cs 供給源を用いて、消化管から循環系への放射性 Cs の移行が放射性 Cs 供給源に依存することを実証した。Mayes *et al.* (1996) は、放射性 Cs の真の吸収係数はその形態によって変化するが、放射性 Cs の真の吸収係数は、イオンの形態でヒツジに与えられたときに最も高かったと報告している。このことから、飼料中に存在する放射性 Cs の状態は、飼料の放射性 Cs の吸収経路よりも、飼料から乳への放射性 Cs の移行に影響を与えると推察された。本研究の結果は、Fm は飼料の種類に依存し、高い放射性 Cs 摂取量よりも低い放射性 Cs 摂取量でも Fm は高くなる可能性があることを示唆している。しかし、第 4 試験と第 5 試験間の Fm の違いについては要因の特定はできなかったことから、乳の放射性 Cs 濃度が日本の基準値を確実に下回るようにするために、飼料から乳への放射性 Cs の移行に影響を与える要因について、さらなる研究が必要であると考えられた。乳の放射性 Cs 混入防止のために、PB の効果的投与について研究開発をさらに進める必要がある。

第5章 放射性セシウム吸着剤の乳への放射性セシウムの移行抑制

5.1 緒言

2012年以降これまでに福島県が実施する農林水産物のモニタリング検査において飼料作物の放射性Csが検出されない割合は70%程度、150 Bq/kg-dry以下の濃度で検出される割合は30%程度となっている(福島県, 2019)。

このような中、土壌から牧草への放射性Cs移行抑制対策は、草地や飼料畑の表土剥ぎ、プラウ耕やロータリー耕による放射性Csのすき込みのほか、カリ質肥料の増肥が飼料生産を行う上で実施されている。しかし、土壌から牧草への放射性Cs移行を完全に抑制はできておらず、さらに、牧草への放射性Cs移行抑制のためのカリ増肥は、牧草のカリウム濃度が5%以上になることが報告されている(福島県, 2014)。牧草のカリウム濃度の上昇は、ホルスタイン種泌乳牛の分娩前後の飼養管理において、給与飼料のミネラルバランスの調整を困難な状況にしている。放射性Csが拡散した地域においては、カリウム濃度が低く放射性Csを含まない粗飼料生産技術の開発が強く求められている。

一方、乳牛飼養管理では、乳生産において、第3章の結果に基づき放射性Cs吸着剤としてゼオライトやベントナイトなどの粘土鉱物を泌乳牛に投与して飼料から乳への放射性Csの移行抑制対策が図られている。クーラーステーションにおける乳の放射性Cs濃度は、現在まで検出下限値未満を継続しているが、継続的かつ簡易に乳の放射性Csを10 Bq/kg-fresh未満にする技術開発が求められている。

このような中、第4章では175 Bq/kg-dryの放射性Cs濃度の飼料を用い、放射性Csを選択的に吸着する働きがあるPBを固形塩に添加してPBとして3.0-18.9 g/日を投与すると、乾物摂取量、乳生産性、乳成分、見かけの乾物消化率および血液一般性状に影響を与えることなく、放射性Csの乳への移行抑制と糞への排出促進に有効であることを確認した。このPBは、少ない投与量で乳への放射性Cs移行を抑制し、その効率および効果は高いと考えられた。PBは、新たな飼料添加物として、乳の放射性Csの移行抑制対策に用いることができると考えられた。

これまで乳生産における放射性Cs移行抑制に対して多くの報告がなされているが、乳の放射性Cs濃度を10 Bq/kg-fresh未満に抑制するための研究は少ない。また、放射性Cs吸着剤の種類の違いによる移行抑制効果の比較にあわせて、飼料から乳への放射性Cs移行抑制について、飼料側の要因と泌乳牛の飼養管理側の要因を比較した報告は少ない。

このことから、放射性Csが拡散した地域において、意図せず暫定許容値を上回る放射性Csを含む飼料が泌乳牛に摂取された場合を想定し、持続可能な放射性Cs吸収抑制対策および放射性Csを含まな

い乳生産を可能とする飼養管理技術を明らかにするため、第3章の第1試験、第2試験、第3試験および第4章の第4試験、第5試験の結果を解析し、放射性Cs吸着剤であるゼオライトおよびPBの投与による飼料から乳への放射性Cs濃度に影響を及ぼす要因を比較検討した。

5.2 材料および方法

2012年6月18日から2013年12月6日までの253日間に実施された第3章の第1、第2、第3試験および第4章の第4、第5試験から得られた泌乳牛のべ48頭(平均体重620±51 kg, 平均産次2.4±0.6産, 平均分娩後日数182±82日)の結果を用いた。糞および尿の放射性Cs濃度は、第1試験および第4試験は全量採取したものから得られた結果と、第2試験、第3試験および第5試験では可能な限り採取できたものから得られた結果を使用した。これらの結果は、放射性Csを含む飼料のみを給与した泌乳牛(A群: 15頭)、放射性Csを含む飼料と共に第1試験においてゼオライト、第2試験において微粒子ゼオライト、第3試験においてゼオライトおよび油脂被覆ゼオライトを投与した泌乳牛(B群: 18頭)、および第4試験においてPB固形塩、第5試験において改良PB固形塩を給与した泌乳牛(C群: 15頭)とした(Table 5-1)。

データは平均値±標準誤差で示した。なお、放射性Cs摂取量に対する乳への分配率、FmおよびCRの一部のデータは、IAEA(2010)にならい平均値±幾何標準偏差を用いた。2因子間の相関はピアソンの

Table 5-1 Experimental period, treatments, and number of cows.

Experiment	Treatments	Number of tested cows
Experiment 1 (50 days)	CONT1	3
	Zeolite ¹⁾	6
Experiment 2 (39 days)	CONT2	3
	Zeolite ²⁾	6
Experiment 3 (39 days)	CONT3	3
	Zeolite ³⁾	6
Experiment 4 (63 days)	CONT4	3
	Prussian blue ⁴⁾	9
Experiment 5 (62 days)	CONT5	3
	Prussian blue ⁵⁾	6
Experiment 1 - 5 (253 days)	Control (Group A)	15
	Zeolite (Group B)	18
	Prussian blue (Group C)	15

¹⁾ Adsorbents were fed zeolite 200 g/day or 400 g/day.

²⁾ Adsorbent was oral administered finely divided zeolite 1 g/day.

³⁾ Adsorbents were fed zeolite 100 g/day or palm oil coated zeolite 100 g/day.

⁴⁾ Adsorbent were fed salt block including 6% of PB, oral administration of 50 g/day of a powder of the ground salt block including 6% of PB, and salt block including 1.6% of PB.

⁵⁾ Adsorbent were fed salt block including 6% of PB, oral administration of 50 g/day of a powder of the ground salt block including 6% of PB.

相関係数を用い、無相関の検定を行なった。また、回帰式の相似性の検定のために共分散分析を行った。統計解析は、エクセル統計 2010 (社会情報サービス、東京) を用い検定した。危険率 5%未満の場合に有意差があるものとみなした。また、危険率 10%未満の場合は傾向があるものとした。

5.3 結果

第 1 試験から第 5 試験で各個体に給与した飼料の放射性 Cs 濃度は 95–1,047 Bq/kg-fresh の範囲、放射性 Cs 摂取量は 1,393–18,149 Bq/日の範囲、乳の放射性 Cs は 11.9–32.0 Bq/kg-fresh の範囲であった。

各試験の平均の乾物摂取量、飼料の放射性 Cs 濃度および摂取量、乳の放射性 Cs 濃度、乳量および乳成分の平均値は、Table 5-2 に示した。飼料の放射性 Cs 濃度は、95 Bq/kg-fresh (第 2 試験) から 927 Bq/kg-

fresh (第 5 試験) の範囲であった。1 日当たりの放射性 Cs 摂取量は、1,634 Bq/日 (第 2 試験) から 15,195 Bq/日 (第 5 試験) の範囲であった。乳の放射性 Cs 濃度は、5.8 Bq/kg-fresh (第 2 試験) から 14.6 Bq/kg-fresh (第 5 試験) の範囲であった (Table 5-2)。

乾物摂取量および乳量は、NARO (2006) の示す標準的な値の範囲であった。乳脂肪、乳タンパク質、無脂固形分および乳中尿素態窒素の乳成分は、出荷できる乳として正常の範囲であった。

5.3.1 放射性セシウム吸着剤を用いない場合の乳への放射性セシウム移行

第 1 試験から第 5 試験までの放射性 Cs を含む飼料のみを給与した A 群における飼料の放射性 Cs 濃度および摂取量、乳の放射性 Cs 濃度および量、乳への分配率、Fm および CR は Table 5-3 に示した。

飼料の放射性 Cs 濃度は、95 Bq/kg-dry (第 2 試験)

Table 5-2 Intake and milk production of cows in experiment 1 to 5.

Item		Experiment 1	Experiment 2	Experiment 3	Experiment 4	Experiment 5	SEM
		(n = 9)	(n = 9)	(n = 9)	(n = 12)	(n = 9)	
Intake	Dry matter intake (kg/day)	21.3	17.2	18.6	19.6	16.4	0.3
	Radiocesium activity concentration (Bq/kg-dry)	202	95	215	175	927	10
	Radiocesium intake (Bq/day)	4,311	1,634	3,991	3,419	15,195	131
Milk	Radiocesium activity concentration (Bq/kg-fresh)	9.3	5.8	14.0	11.8	14.6	0.8
Milk yield (kg/day)		31.6	27.2	23.5	22.2	27.7	0.5
Milk composition	Fat (%)	3.79	3.95	4.86	4.57	3.71	0.08
	Protein (%)	3.05	3.15	4.19	3.83	3.02	0.05
	Solids-not-fat (%)	8.37	8.52	9.39	9.11	8.46	0.04
	Lactose (%)	4.32	4.38	4.20	4.29	4.45	0.04
	Urea nitrogen (mg/100ml)	9.72	8.76	6.97	7.02	12.01	0.39

^{a,b}: Means in a row with different superscript differ significantly ($P < 0.05$).

SEM: Standard error of mean.

Table 5-3 Radiocesium intake, radiocesium activity concentration, excretion of radiocesium, proportion of radiocesium to ingested radiocesium, transfer coefficient of radiocesium from feed to milk of cows, and concentration ratio in experiment 1 to 5.

Item	Experiment 1	Experiment 2	Experiment 3	Experiment 4	Experiment 5	SEM
	CONT1 (n = 3)	CONT2 (n = 3)	CONT3 (n = 3)	CONT4 (n = 3)	CONT5 (n = 3)	
Radiocesium activity concentration (Bq/kg-dry)						
Diet	202	95	215	175	927	22
Intake						
¹³⁴⁺¹³⁷ Cs intake (Bq/day)	4,348	1,633	4,030	3,460	15,220	260
Radiocesium activity concentration (Bq/kg-fresh)						
Milk	14.7	6.4	15.4	16.4	24.3	1.3
Excretion of radiocesium (Bq/day)						
Milk	460	180	362	360	669	34
Proportion of radiocesium to ingested radiocesium (%)						
Milk	10.8	11.2	9.0	10.4	4.4	0.6
Transfer coefficient of radiocesium from feed to milk (Fm : day/kg)						
Fm × 10 ⁻³	3.46	4.04	3.86	4.77	1.68	0.25
Concentration ratio (CR)						
CR × 10 ⁻²	7.28	6.73	7.19	9.34	2.83	0.39

^{a,b}: Means in a row with different superscript differ significantly ($P < 0.05$).

^{A,B}: Means in a row with different superscript differ significantly ($P < 0.10$).

SEM: Standard error of mean.

から 927 Bq/kg-dry (第5 試験) の範囲であった。放射性 Cs 摂取量は、1,633 Bq/日 (第2 試験) から 15,220 Bq/日 (第5 試験) の範囲であった。

乳の放射性 Cs 濃度は、6.4 Bq/kg-fresh (第2 試験) から 24.3 Bq/kg-fresh (第5 試験) の範囲であった。放射性 Cs の乳への分配率は、11.2% (第2 試験) から 4.4% (第5 試験) の範囲であった。Fm は、 1.68×10^{-3} (第5 試験) から 4.77×10^{-3} (第4 試験) の範囲であった。同様に、CR は、 2.83×10^{-2} (第5 試験) から 9.34×10^{-2} (第4 試験) の範囲であった。

5.3.1.1 放射性セシウムに関する相関

放射性 Cs を含む飼料のみを給与した A 群において、糞の放射性 Cs 濃度は、尿の放射性 Cs 濃度 ($r=0.80$) および乳の放射性 Cs 量 ($r=0.68$) と高い正の相関 ($P<0.01$) が見られ、Fm ($r=-0.77$)、CR ($r=-0.80$)、分配率 ($r=-0.80$) および粗飼料由来の NDFom 摂取量 ($r=-0.67$) と高い負の相関が見られた ($P<0.01$) (Table 5-4)。また、乳の放射性 Cs 濃度 ($r=0.61$) と正の相関、体重 ($r=-0.56$)、ADFom 摂取量 ($r=-0.63$) および NDFom 濃度 ($r=-0.61$) と負の相関が見られた ($P<0.05$) (Table 5-4)。

尿の放射性 Cs 濃度は、乳の放射性 Cs 濃度 ($r=0.80$) および乳の放射性 Cs 量 ($r=0.79$) と高い正の相関 ($P<0.01$) が見られ、体重 ($r=-0.71$)、粗飼料由来の NDFom 摂取量 ($r=-0.72$) および ADFom 摂取量 ($r=-0.72$) と高い負の相関が見られた ($P<0.01$) (Table 5-4)。また、Fm、CR、分配率、NDFom 摂取量および NDFom 濃度と負の相関が見られた ($P<0.05$) (Table 5-4)。

乳の放射性 Cs 濃度は、乳の放射性 Cs 量と高い相関が見られた ($r=0.94$, $P<0.01$) (Table 5-4)。放射

性 Cs 摂取量と乳の放射性 Cs 濃度との間に下記の回帰式が得られた (Figure 5-1)。

$$y = 0.0011x + 8.4166 \quad R^2 = 0.49, P < 0.01 \quad (5)$$

y: 乳の放射性 Cs 濃度, Bq/kg-fresh

x: 放射性 Cs 摂取量, Bq/日

式(5)から乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満にするためには、放射性 Cs 摂取量が 1,400 Bq/日以下であることが算出された。乳の放射性 Cs 量は、飼料の放射性 Cs 濃度および放射性 Cs 摂取量と高い正の相関が見られ、相関係数はそれぞれ 0.67、0.77 となった ($P<0.01$) (Table 5-4)。

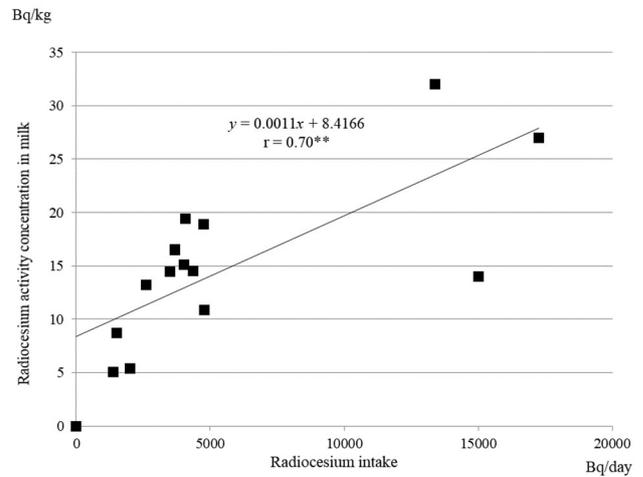


Figure 5-1 Relationship between radiocesium activity concentration in milk and radiocesium intake in the control of experiment 1-5.

Table 5-4 Correlation test of items related to radiocesium in control (Group A: n = 15).

Above the diagonal: correlation coefficients (r) / Below the diagonal: **p<0.01, *p<0.05		①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧	⑨	⑩	⑪	⑫	⑬	⑭	⑮	⑯	⑰	
Radiocesium activity concentration in diet	Bq/kg-dry	①	1	0.99	0.99	0.79	0.60	0.67	-0.76	-0.79	-0.80	-0.59	-0.30	-0.07	-0.51	-0.67	-0.65	-0.63	0.18
Radiocesium intake	Bq/day	②	**	1	0.98	0.85	0.70	0.77	-0.76	-0.76	-0.79	-0.58	-0.23	0.00	-0.46	-0.63	-0.60	-0.64	0.20
Radiocesium activity concentration in feces	Bq/kg-fresh	③	**	**	1	0.80	0.61	0.68	-0.77	-0.80	-0.80	-0.56	-0.28	-0.02	-0.49	-0.67	-0.63	-0.61	0.19
Radiocesium activity concentration in urine	Bq/kg-fresh	④	**	**	**	1	0.80	0.79	-0.56	-0.60	-0.62	-0.71	-0.44	-0.23	-0.60	-0.72	-0.72	-0.60	0.05
Radiocesium activity concentration in milk	Bq/kg-fresh	⑤	*	**	*	**	1	0.94	-0.25	-0.17	-0.37	-0.38	-0.10	-0.07	-0.34	-0.44	-0.42	-0.59	-0.13
Radiocesium in milk	Bq/day	⑥	**	**	**	**	**	1	-0.42	-0.31	-0.36	-0.37	0.01	0.16	-0.22	-0.39	-0.32	-0.51	0.21
Fm×10 ⁻³	day/kg	⑦	**	**	**	*		1	0.93	0.86	0.46	-0.03	-0.30	0.18	0.36	0.26	0.45	-0.53	
CR ×10 ⁻²		⑧	**	**	**	*		**	1	0.83	0.62	0.30	-0.01	0.44	0.59	0.52	0.47	-0.43	
Proportion of radiocesium to ingested radiocesium in milk	%	⑨	**	**	**	*		**	**	1	0.54	0.13	0.02	0.39	0.50	0.46	0.63	-0.05	
Body weight	kg	⑩	*	*	*	**			*	*	1	0.63	0.43	0.63	0.69	0.75	0.36	-0.03	
Dry matter intake	kg	⑪									*	1	0.86	0.88	0.82	0.90	0.24	0.36	
CP intake	kg	⑫									**	**	1	0.82	0.65	0.76	0.32	0.68	
NDFom intake	kg	⑬									*	**	**	**	1	0.96	0.95	0.68	0.38
Forage NDFom intake	kg	⑭	**	*	**	**			*		**	**	**	**	**	1	0.95	0.70	0.20
ADFom intake	kg	⑮	**	*	*	**			*		**	**	**	**	**	**	1	0.56	0.30
NDFom	%	⑯	*	*	*	*	*		*				**	**	*	*	1	0.19	
Milk yield	kg	⑰							*			**							1

Fm は、飼料の放射性 Cs 濃度、放射性 Cs 摂取量と高い負の相関 ($r = -0.76, P < 0.01$)、乳量と負の相関が見られた ($r = -0.53, P < 0.05$)。CR は、飼料の放射性 Cs 濃度 ($r = -0.79, P < 0.01$) および放射性 Cs 摂取量 ($r = -0.76, P < 0.01$) と高い負の相関が見られた (Table 5-4)。また、体重、粗飼料由来の NDFom 摂取量および ADFom 摂取量と正の相関が見られ ($P < 0.05$)、相関係数はそれぞれ 0.62、0.59 および 0.52 となった (Table 5-4)。

5.3.2 放射性セシウム吸着剤投与時の乳への放射性セシウムの移行

5.3.2.1 ゼオライト投与時の放射性セシウムに関する相関

放射性 Cs を含む飼料と共にゼオライトを投与した B 群において、糞の放射性 Cs 濃度は、乳の分配率と高い負の相関 ($r = -0.59, P < 0.01$)、飼料の放射性 Cs 濃度 ($r = 0.88$) および飼料の放射性 Cs 量 ($r = 0.79$) と正の相関 ($P < 0.05$) が見られた (Table 5-5)。

尿の放射性 Cs 濃度は、乳の放射性 Cs 濃度 ($r = 0.86$) および乳の放射性 Cs 量 ($r = 0.72$) と高い正の相関 ($P < 0.01$) が見られ、NDFom 摂取量 ($r = -0.57$)、粗飼料由来の NDFom 量 ($r = -0.56$) および体重 ($r = -0.54$) と負の相関 ($P < 0.05$) が見られた (Table 5-5)。

乳の放射性 Cs 濃度は、飼料の放射性 Cs 濃度 ($r = 0.65$) および乳の放射性 Cs 量 ($r = 0.87$) と高い正の相関 ($P < 0.01$) が見られ、放射性 Cs 摂取量 ($r = 0.49, P < 0.05$) と正の相関、NDFom 摂取量 ($r = -0.55$)、粗飼料由来の NDFom 量 ($r = -0.56$) および乳量 ($r = -0.51$) と負の相関 ($P < 0.05$) が見られた (Table

5-5)。放射性 Cs 摂取量と乳の放射性 Cs 濃度との間に下記の回帰式が得られた (Figure 5-2)。

$$y = 0.0014x + 3.8188 \quad R^2 = 0.24, P < 0.05 \quad (6)$$

y: 乳の放射性 Cs 濃度, Bq/kg-fresh

x: 放射性 Cs 摂取量, Bq/日

式(6)から乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満にするためには、放射性 Cs 摂取量が 4,400 Bq/日以下であることが算出された。

Fm は、乾物摂取量 ($r = -0.69$)、CP 摂取量 ($r = -0.78$)、NDFom 摂取量 ($r = -0.71$)、粗飼料由来の NDFom 摂取量 ($r = -0.60$)、ADFom 摂取量 ($r = -0.71$)、NDFom 濃度 ($r = -0.72$)、乳量 ($r = -0.65$) およびゼオライト摂取量 ($r = -0.73$) と高い負の相関が見られた ($P < 0.01$)。

CR は、Fm ($r = 0.94$) および乳への分配率 ($r = 0.85$) と高い正の相関が見られ、乳タンパク質率 ($r = -0.62$)、NDFom 濃度 ($r = -0.67$) およびゼオライト摂取量 ($r = -0.70$) と高い負の相関が見られた ($P < 0.01$)。また、NDFom 摂取量、ADFom 摂取量および乳量と負の相関が見られた ($P < 0.05$)。

A 群および B 群では、それぞれ放射性 Cs 摂取量 (x) と乳の放射性 Cs 濃度 (y) に式(5)および式(6)の回帰式が得られたが (Figure 5-2)、A 群と B 群のそれぞれの回帰直線には共分散分析における相似性は見られなかった ($P < 0.01$)。

5.3.2.2 プルシアンブルー投与時の放射性セシウムに関する相関

放射性 Cs を含む飼料と共に PB を投与した C 群において、糞の放射性 Cs 濃度は、Fm ($r = -0.89$)、

Table 5-5 Correlation test of items related to radiocesium in zeolite (Group B: n = 18).

Above the diagonal : correlation coefficients(r)/ Below the diagonal : **p<0.01,*p<0.05	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧	⑨	⑩	⑪	⑫	⑬	⑭	⑮	⑯	⑰	⑱
Radiocesium activity concentration in diet Bq/kg-dry ①	1	0.94	0.88	0.56	0.65	0.68	-0.37	-0.28	-0.63	0.05	0.44	0.20	-0.05	-0.19	0.16	0.84	0.00	0.63
Radiocesium intake Bq/day ②	**	1	0.79	0.43	0.49	0.65	-0.55	-0.39	-0.68	0.14	0.72	0.50	0.27	0.14	0.49	0.89	0.24	0.75
Radiocesium activity concentration in feces Bq/kg-fresh ③	**	**	1	0.42	0.48	0.54	-0.39	-0.35	-0.59	-0.16	0.30	0.13	-0.09	-0.23	0.07	0.77	0.08	0.50
Radiocesium activity concentration in urine Bq/kg-fresh ④	*			1	0.86	0.72	0.32	0.42	0.02	0.17	-0.03	-0.41	-0.57	-0.56	-0.33	0.08	-0.54	-0.13
Radiocesium activity concentration in milk Bq/kg-fresh ⑤	**	*	*	**	1	0.87	0.41	0.53	0.10	0.16	0.00	-0.37	-0.55	-0.56	-0.30	0.16	-0.51	-0.05
Radiocesium in milk Bq/day ⑥	**	**	*	**	**	1	0.15	0.36	0.06	0.07	0.36	-0.01	-0.19	-0.20	0.08	0.30	-0.08	0.12
Fm×10 ⁻³ day/kg ⑦		*					1	0.94	0.85	0.01	-0.69	-0.78	-0.71	-0.60	-0.71	-0.72	-0.65	-0.73
CR×10 ⁻² ⑧					*		**	1	0.85	0.19	-0.43	-0.62	-0.57	-0.43	-0.50	-0.67	-0.59	-0.70
Proportion of radiocesium to ingested radiocesium in milk % ⑨	**	**	**				**	**	1	-0.06	-0.51	-0.53	-0.39	-0.23	-0.43	-0.84	-0.26	-0.77
Body weight kg ⑩										1	0.30	0.16	0.15	0.21	0.25	-0.03	-0.26	-0.04
Dry matter intake kg ⑪		**					**	*			1	0.91	0.81	0.77	0.94	0.63	0.60	0.66
CP intake kg ⑫		*					**	**	*		**	1	0.97	0.91	0.98	0.59	0.75	0.70
NDFom intake kg ⑬				*	*		**	*			**	**	1	0.98	0.95	0.40	0.77	0.56
Forage NDFom intake kg ⑭				*	*		**	*			**	**	**	1	0.93	0.22	0.72	0.40
ADFom intake kg ⑮		*					**	*			**	**	**	**	1	0.49	0.72	0.61
NDFom % ⑯	**	**	**				**	**	**		**	**	**	*	1	0.39	0.88	
Milk yield kg ⑰				*	*		**	*			**	**	**	**	**	1	0.47	
Zeolite intake g/day ⑱	**	**	*				**	**	**		**	**	*	**	**	*	1	

B 群+C 群の式(8)の傾きは A 群の式(7)と比較して小さくなり、A 群の回帰式と相似性は見られなかった ($P < 0.01$) (Figure 5-3)。この式から乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満にするためには、放射性 Cs 摂取量が 3,900 Bq/日以下であると算出された。

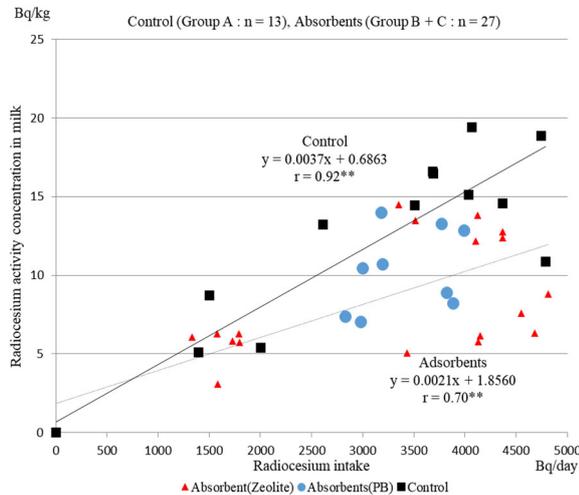


Figure 5-3 Relationship between radiocesium activity concentration in milk and radiocesium intake in control (Group A), Zeolite (Group B), and Prussian blue (Group C).

5.3.3 乳の放射性セシウム濃度と移行係数、濃度比および分配率

Table 5-7 に A 群、B 群および C 群で得られた乳の放射性 Cs 濃度、Fm、CR および放射性 Cs 摂取量に対する乳への放射性 Cs の分配率を示した。

乳の放射性 Cs 濃度は、A 群で平均 15.4 Bq/kg-fresh となり、最小値は 5.1 Bq/kg-fresh、最大値は 32.0 Bq/kg-fresh となった。B 群で平均 8.4 Bq/kg-fresh、C 群で平均 10.0 Bq/kg-fresh となり、それぞれ A 群と差が見られた ($P < 0.05$)。A 群と比較して B 群では 45%、C 群では 35%減少した ($P < 0.05$)。

Table 5-7 Comparison between radiocesium activity concentration in milk, transfer coefficients, concentration ratio of radiocesium, and proportion of radiocesium in milk to ingested radiocesium from the feed to cow's milk fed radiocesium contained total mixed rations with or without adsorbents.

Treatment	Radiocesium activity concentration in milk ¹⁾ (Bq/kg-fresh)				Transfer coefficient (Fm×10 ⁻³) (day/kg)				Concentration ratio (CR×10 ⁻²)				Proportion of radiocesium to ingested radiocesium in milk ¹⁾ (%)			
	Mean	SEM ²⁾	Minimum	Maximum	Mean	GSD ³⁾	Minimum	Maximum	Mean	GSD ³⁾	Minimum	Maximum	Mean	GSD ³⁾	Minimum	Maximum
Control (Group A : n = 15)	15.4 ^c	1.9	5.1	32.0	3.56 ^b	1.62	0.96	5.79	6.67 ^b	1.72	1.34	9.95	9.2 ^c	1.6	2.6	15.2
Zeolite (Group B : n = 18)	8.4 ^a	0.9	3.1	14.5	2.77 ^{ab}	1.53	1.34	4.55	5.08 ^b	1.42	2.49	6.75	7.4 ^b	1.4	4.2	11.5
Prussian blue (Group C : n = 15)	10.0 ^b	1.5	1.7	27.0	2.07 ^a	2.94	0.13	4.39	4.00 ^a	3.35	0.17	7.59	4.7 ^a	2.7	0.3	8.8

^{a,b} Means in a bar with different superscript differ significantly ($P < 0.05$).

¹⁾ Radiocesium was calculated by summing ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs.

²⁾ Standard error of mean.

³⁾ Geometric standard deviation.

Fm は、A 群において平均 3.56×10^{-3} となり、最小値は 0.96×10^{-3} 、最大値は 5.79×10^{-3} 、であった。B 群では平均 2.77×10^{-3} 、C 群では平均 2.07×10^{-3} となり、A 群と比較して C 群で 65%減少した ($P < 0.05$)。A 群から C 群全体の Fm は平均 2.80×10^{-3} となり、変動係数は 49%となった。

CR は、A 群において平均 6.67×10^{-2} となり、最小値は 1.34×10^{-2} 、最大値は 9.95×10^{-2} であった。B 群では平均 5.08×10^{-2} 、C 群では平均 4.00×10^{-2} となり、A 群と比較して C 群で 40%減少した ($P < 0.05$)。A 群から C 群全体の Fm は平均 5.24×10^{-2} となり、変動係数は 47%となった。

分配率は、A 群において平均 9.2% となり、最小値は 2.7%、最大値は 15.2% であった。B 群では平均 7.4%、C 群では平均 4.7% となり、A 群と比較して B 群で 19%、C 群で 49%減少した ($P < 0.05$)。A 群から C 群全体の分配率は平均 7.11% となり、変動係数は 46%となった。

A 群の Fm および CR から、乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満にするためには、放射性 Cs 摂取量は 2,800 Bq/日未満であり、飼料の放射性 Cs 濃度は 150 Bq/kg-dry 未満であることが算出された。また、B 群では、乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満にするためには、放射性 Cs 摂取量が 3,600 Bq/日未満であり、飼料の放射性 Cs 濃度は 200 Bq/kg-dry 未満であること、さらに、C 群では、乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満とするためには、放射性 Cs 摂取量が 4,800 Bq/日未満であり、飼料の放射性 Cs 濃度が 250 Bq/kg-dry 未満であることが算出された。

5.4 考察

5.4.1 放射性セシウム吸着剤を用いない場合の放射性セシウムの糞、尿および乳への移行

本研究では、放射性 Cs を含む飼料だけを給与させる A 群において、糞、尿および乳の放射性 Cs 濃

度は、飼料の放射性 Cs 濃度および摂取量のそれぞれと相関が見られ、糞の相関係数が最も高かった。これまでの研究 (Johnson *et al.*, 1968; Arnaud *et al.*, 1988; Unsworth *et al.*, 1989) や第3章の結果においても、摂取した放射性 Cs の50%以上が糞中に排出されたことが示されている。これらのことから、糞は摂取した放射性 Cs の主要な排出経路であり、放射性 Cs の乳への移行に大きく関与していると考えられた。

一方、乳および尿による放射性 Cs の排出は、いったん血液または組織に吸収された放射性 Cs が体外に排出されるものであり、糞における排出と放射性 Cs の挙動は異なると考えられた。Leggett *et al.* (2003) は、ヒトの体内の放射性 Cs 排出については、腎臓を経て尿として排出する過程および体内の組織に分布した後に再分泌し、糞として排出する2つの体内挙動をモデル化している。Sasaki *et al.* (2012) は、放射性 Cs を含む飼料を摂取した黒毛和種の雌若牛の骨格筋と臓器のうち、腎臓の放射性 Cs 濃度が最も高いことを報告している。Mokudai *et al.* (2016) の報告によると、野生ニホンジカの体内の放射性 Cs 濃度は、筋肉よりも、尿を作って老廃物などを体外排出する器官である腎臓で高い値を示し、尿として体外に排出することを繰り返すことで腎臓に放射性 Cs が蓄積すると示唆している。Fukuda *et al.* (2013) は、福島第一原発事故後周辺にいたのら牛の体組織において乳腺は腎臓や膀胱より放射性 Cs 濃度が低いことを報告している。これらのことから、尿や乳における放射性 Cs の排出は、糞における放射性 Cs の排出とは異なり、また、尿における排出は乳における排出とも異なり、排出までに経る循環系における体内器官の数、経路の長さ、滞留時間、蓄積量がそれぞれ影響しているものと推察された。尿や乳における放射性 Cs の体外への排出は、主要な排出経路とはならないものと考えられた。

5.4.2 放射性セシウム吸着剤投与時の放射性セシウムの糞、尿および乳への移行

本研究では、放射性 Cs 濃度が 250 Bq/kg-dry 以下の飼料をゼオライトと共に給与した B 群において、飼料の放射性 Cs 濃度および放射性 Cs 摂取量は、糞、尿および乳の放射性 Cs 濃度とそれぞれ相関が見られた。一方、放射性 Cs 濃度が 1,000 Bq/kg-dry 以下の飼料を PB と共に給与した C 群においては、飼料の放射性 Cs 濃度および摂取量は、糞および尿の放射性 Cs 濃度と相関が見られたが、乳の放射性 Cs 濃度との相関は見られなかった。このことは、第4章において PB は乳の放射性 Cs 濃度を抑制した結果を含め、PB はゼオライトと比較して、放射性 Cs 吸着剤として放射性 Cs 濃度や量に対する許容範囲が広く、効率よく放射性 Cs を吸着し、乳の放射性 Cs 濃度を抑制することが示唆された。

C 群では糞の放射性 Cs 濃度と Fm および CR に高

い負の相関が見られたが、B 群においては相関が見られなかった。第3章では、排出された糞の放射性 Cs 濃度にゼオライト投与の有無による差は見られず、放射性 Cs を吸着したゼオライトの体内滞留が示唆された。一方、第4章では、PB 投与により糞の放射性 Cs 濃度が高まることが確認された。このことから、ゼオライトと PB は、放射性 Cs 吸着剤としての特性や形状の違いにより、放射性 Cs を糞として排出する効率に違いがあると考えられた。

B 群および C 群における尿の放射性 Cs 濃度は、A 群と異なり、Fm、CR および分配率と負の相関は見られなかった。このことは、放射性 Cs 吸着剤がルーメンまたは下部消化管内において、飼料から消化管内の水溶液中に遊離した放射性 Cs を吸着して消化管内に滞留または糞としての体外排出を促進し、血液または体内への吸収を抑制したことにより、尿としての排出が抑制されたものと推察された。

B 群における Fm、CR および分配率は、CP 量と高い負の相関が見られたが、体重との相関は見られなかった。一方、C 群における Fm、CR および分配率は、体重と高い正の相関が見られたが、CP 量との相関は見られなかった。B 群の Fm は、NDFom 摂取量、粗飼料由来の NDFom 摂取量および ADFom 摂取量と負の相関およびその傾向が見られた。一方、C 群における Fm は、NDFom や ADFom 摂取量に対して正の相関であり、B 群と相関の関係性が逆であった。これらのことは、ゼオライトと PB はその粒子の大きさ、放射性 Cs 吸着速度、消化管内での分散性や通過速度の違いによる消化管内での動態がそれぞれ異なることが影響していたと推察された。ゼオライトは、消化管内に滞留しやすと考えられるが、繊維質摂取量が多くなることにより、ルーメンの収縮運動が活発になり、ルーメン内のゼオライトが滞留しにくくなり、糞へのゼオライト排出量が多くなった結果、Fm が小さくなったと推察された。一方、PB は、繊維質摂取量が多くなることにより、放射性 Cs を含む消化管内容物の滞留時間が増加し、放射性 Cs の糞としての排出速度が遅くなり、Fm が大きくなったと推察された。Fm を減少させるためには、放射性 Cs の消化管内の通過時間を短くすることが示唆された。

飼料から乳への放射性 Cs 濃度への移行は、乾物摂取量の違い (Beresford *et al.*, 2007)、濃厚飼料と粗飼料の摂取量の違い (Ward *et al.*, 1967)、粗繊維の摂取量の違い (Stewart *et al.*, 1965; Hecht, 1992)、飼養月齢の違い (Voigt, 1993) によって影響されることが報告されている。これらは、放射性 Cs 吸着剤が投与された場合に NDFom や ADFom が体内への放射性 Cs 吸収抑制に関与したと考えられ、繊維質による排糞量の増加、放射性 Cs 吸着剤の運搬、放射性 Cs を含む消化管内容物の滞留時間の違いが影響していると推察された。

これらのことから、乳の放射性 Cs 濃度は、飼料の放射性 Cs 濃度や放射性 Cs 摂取量、ゼオライトおよび PB の放射性 Cs 吸着剤の投与量、飼料における繊維質の摂取量や濃度に影響されることが示唆された。ゼオライトおよび PB を放射性 Cs 吸着剤として投与する場合は、泌乳牛の体重を考慮すると共に、繊維質の摂取量や濃度、消化管内の通過時間を考慮した栄養設計を行うことにより、飼料から乳への放射性 Cs の移行を効率良く抑制できる可能性が示唆された。今後、飼料から乳への放射性 Cs の移行抑制対策として、NDFom や ADFom 濃度を主とした給与飼料中の炭水化物量および濃度を考慮していく必要があると考えられた。

5.4.3 放射性セシウムの飼料から乳への移行

本研究では、62 日-191 日間放射性 Cs を含む飼料を 1,633 Bq/日-15,220 Bq/日継続的に摂取させることにより、放射性 Cs 吸着剤を投与しない A 群の Fm は 3.56×10^{-3} 、CR は 6.67×10^{-2} となった。このことから、乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満にするためには、放射性 Cs 摂取量が 2,800 Bq/日未満であり、飼料の放射性 Cs 濃度が 150 Bq/kg-dry 未満である必要があると考えられた。

一方、ゼオライトを投与した B 群の Fm は 2.77×10^{-3} 、CR は 5.08×10^{-2} 、PB を投与した C 群の Fm は 2.07×10^{-3} 、CR は 4.00×10^{-2} となった。飼料の放射性 Cs 濃度が 200 Bq/kg-dry 未満、放射性 Cs 摂取量が 3,600 Bq/日未満であれば、ゼオライトを 200 g/日以上投与することにより乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満に抑制できることが推察された。また、PB を 3.0g/日以上投与した場合、飼料の放射性 Cs 濃度が 250 Bq/kg-dry、放射性 Cs 摂取量が 4,800 Bq/日未満であれば、乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満に抑制できることが推察された。

本研究で得られた Fm および CR は、国際原子力機関 (IAEA, 2010) が示す数値と近く、最小値と最大値の範囲内であったが、本研究のすべての結果から得られた Fm および CR は変動係数が 50%程度あり、PB を投与した場合の変動係数が最も大きいことが示された。このことは、摂取された粗飼料の放射性 Cs 吸収経路の違い、すなわち、放射性 Cs が牧草の表面にだけ付着したのか、それが葉面吸収され再分布したものか、さらには土壤中の放射性 Cs が経根吸収されたものかの違いにより、消化管からの吸収に影響を及ぼし、Fm の変動を大きくしたと考えられた。あわせて、収穫時期、サイレージ調製方法、牧草の種類および飼料繊維の摂取量や濃度の違いにより、消化管内での放射性 Cs の吸収に影響があったと推察された。粗飼料は、草種、収穫時期、切断長によりその消化率にはかなりの幅があることが示されており (NRC, 1988)、この飼料の消化率や消化速度の変動幅が乳への放射性 Cs 移行の変動幅と関連していることが推察された。

これらのことから、10 Bq/kg-fresh 未満の乳生産を継続的に行っていくためには、給与する粗飼料が泌乳期間を通じて一定の品質であることは一般的にないことから、放射性 Cs 吸着剤の継続的な投与が必要になると推察された。今後、給与飼料の違いによる Fm の変動幅を小さくする効果的な放射性 Cs 吸着剤の投与方法について検討していく必要があると考えられた。

第 6 章 放射性セシウムを含む飼料から含まない飼料に切替えた場合の乳の放射性セシウム濃度の推移

6.1 緒言

泌乳牛における乳の放射性 Cs の減衰に関する報告はなされているが、福島第一原発事故において拡散された放射性 Cs により汚染された粗飼料における放射性 Cs の減衰の実態に関しては十分な報告はなされていない。

放射性 Cs 濃度が 10 Bq/kg-fresh 未満の乳生産を継続的に行うためには、意図せず放射性 Cs を含む飼料を摂取して乳から放射性 Cs が検出された場合、泌乳牛に対して放射性 Cs を含まない飼料に切替えて摂取させ、どのくらいの日数を要して乳の放射性 Cs が減衰していくかを把握して提示する必要がある。

このことから、これまで放射性 Cs を含む飼料を摂取していた泌乳牛に対して、放射性 Cs を含まない飼料に切替え摂取させた場合における乳の放射性 Cs 濃度の推移を調査した。あわせて、乳の放射性 Cs の生物学的半減期および放射性 Cs を含む飼料から放射性 Cs を含まない飼料に切替えた際の、乳の放射性 Cs 濃度が 10 Bq/kg-fresh 未満になるまでに要する日数について検討した。

6.2 材料および方法

第 6 章は、福島県農業総合センター畜産研究所 (福島県福島市) において、福島県農業総合センター専門別検討会の承認 (2012-E1-5-9-3) を得て、産業動物の飼養および保管に関する基準 (昭和 62 年 10 月 9 日総理府告示第 22 号) に準拠して実施した。

6.2.1 乳の放射性セシウム減衰確認試験

2012 年 6 月 18 日から 2012 年 12 月 26 日までの間に、102-191 日間、継続的に放射性 Cs を含む飼料を摂取していた泌乳牛 3 頭に対して、放射性 Cs を含まない飼料に切替えた場合の乳の放射性 Cs 濃度の推移について確認する試験を 2012 年 12 月 26 日から 2013 年 1 月 12 日までの 17 日間実施した。

6.2.1.1 供試飼料

供試飼料は、福島県農業総合センター畜産研究所の圃場において 2012 年 8 月 20 日に収穫調製した放射性 Cs を含まないトウモロコシサイレージ、飼料

会社から購入した放射性 Cs を含まないオーツ乾草、アルファルファ乾草および配合飼料とし、これらの飼料を用いて供試飼料を設計した (Table 6-1)。この供試飼料は、日量 25 kg 泌乳のための NEL、TDN ならびに CP 要求量を満たすように TMR に調製した (NRC, 1988; NARO, 2006)。

Table 6-1 Ingredients and chemical composition of total mixed rations in confirmation of decay of radiocesium in milk.

Ingredients (% dry)	
Oat hay	35.1
Concentrate mix pellet ¹⁾	28.5
Alfalfa hay	26.5
Corn silage	9.9
Chemical composition	
Dry matter (%)	69.5
Net energy lactation (Mcal/kg-dry)	1.45
Total digestible nutrients (% dry)	63.9
Crude protein (% dry)	13.5
NDFom ²⁾ (% dry)	43.4
ADFom ³⁾ (% dry)	28.3
Ether extract (% dry)	2.9
¹³⁴⁺¹³⁷ Cs ⁴⁾ (Bq/kg-dry)	N.D. ⁵⁾

¹⁾ Contained 36.5% corn grain, 20.2% soybean meal, 19.5% wheat bran, 18.0% beet pulp, 3.2% molasses, 1.0% dicalcium phosphate, 1.0% salt, and 0.6% calcium carbonate.

²⁾ Neutral detergent fiber not assayed with a heat stable amylase and expressed exclusive of residual ash.

³⁾ Acid detergent fiber expressed exclusive of residual ash.

⁴⁾ Radiocesium was not detected in all diets.

⁵⁾ Not detectable.

6.2.1.2 給与試験、試料採取、放射性セシウム濃度測定および統計処理

これまで 3.2.1 第 1 試験から 4.2.1 第 4 試験において 2012 年 6 月 18 日から 12 月 26 日までの 191 日間放射性 Cs を含む供試飼料を継続的に摂取した泌乳牛 2 頭および、3.2.3 第 3 試験と 4.2.1 第 4 試験において 2012 年 9 月 15 日から 12 月 26 日までの 102 日間、暫定許容値未満の放射性 Cs を含む供試飼料を継続的に摂取した泌乳牛 1 頭の計 3 頭 (平均体重 631±23 kg, 平均産次 2.0±1.0 産, 平均分娩後日数 328±34 日) を用いた。なお、本試験開始直前 (3.2.3 第 3 試験終了時の 3 日間) の乳量は平均で 22.9±4.9 kg/日、乳の放射性 Cs 濃度は平均で 14.4±2.0 Bq/kg-fresh、放射性 Cs 摂取量は平均で 4,059±344 Bq/日であった。2012 年 12 月 26 日以降に放射性 Cs を含まない飼料に切替え 2013 年 1 月 12 日まで 16 日間、2.2.1 移行確認試験と同様の方法で飼養した。飼料の切替え直後 (0 日後)、2、4、6、8、10、13、15 日後に乳量を計測した。なお、朝夕の採取した乳を乳量に対して一定の割合で混合して、放射性 Cs 分析用

の試料とした。乳の放射性 Cs 濃度の測定は 2.2.1.4 試料の放射性 Cs 濃度測定のとおり行った。

統計処理は、2 因子間の相関はピアソンの相関係数を用いた。また、乳の放射性 Cs 濃度の減少割合 (y) の対数を目的変数 ($\log y$) とし、試験日数 (T) を説明変数に重回帰分析を行い下記の回帰式(9)を算出した。その回帰式を変形して下記の曲線回帰式(10)を算出し、乳の放射性 Cs 濃度が飼料の切替え時の 1/2 まで低下する期間を示す生物学的半減期を推定した。統計解析は、エクセル統計 2010 (社会情報サービス, 東京) を用い検定した。

$$\text{Log}y = a - bT \quad (9)$$

$$y = (10^a) e^{-(b|/\log 10)e} \quad (10)$$

y : 放射性 Cs を含まない飼料を給与直前の乳の放射性 Cs 濃度を 100 とした場合の経過日数ごとの放射性 Cs 濃度割合, %

T : 放射性 Cs を含まない飼料に切替え後の日数, 日

a : 定数項の偏回帰係数, b : T の偏回帰係数

6.3 結果

6.3.1 供試飼料の成分および化学成分

供試飼料の配合割合と化学成分を Table 6-1 に示した。TMR の乾物率、TDN、CP および NDFom 含量は、それぞれ 69.5、63.9、13.5 および 43.4% であった。TMR に放射性 Cs は検出されなかった。

6.3.2 放射性セシウムを含まない飼料給与による乳の放射性セシウムの減衰

試験開始直前 (3.2.3 第 3 試験終了時の 3 日間) において、放射性 Cs を含む飼料を継続的に摂取した泌乳牛 3 頭の乳量、乳の放射性 Cs 濃度、放射性 Cs 摂取量に差は見られなかった。

放射性 Cs を含まない飼料に切替えて給与すると、切替え 4 日後に乳の放射性 Cs 濃度の減少が見られ 10 Bq/kg-fresh 以下となり、6 日後には 4.6 Bq/kg-fresh と切替え前より 68% 減少した ($P < 0.01$) (Figure 6-1)。8 日後には検出限界値 (1.6–1.7 Bq/kg-fresh) 未満となり、以降 15 日後はすべての供試牛で検出下限値未満となった。乳の放射性 Cs の減少速度に個体差は見られなかった。切替え後 8 日までには、放射性 Cs を含まない飼料に切替え後の日数と乳の放射性 Cs 濃度との間に下記の回帰式が得られた (Figure 6-1)。

$$y = -1.97x + 16.36 \quad R^2 = 0.94, P < 0.01 \quad (11)$$

y : 乳の放射性 Cs 濃度, Bq/kg-fresh

x : 放射性 Cs を含まない飼料に切替え後の日数, 日

また、放射性 Cs を含まない飼料の切替え後の日

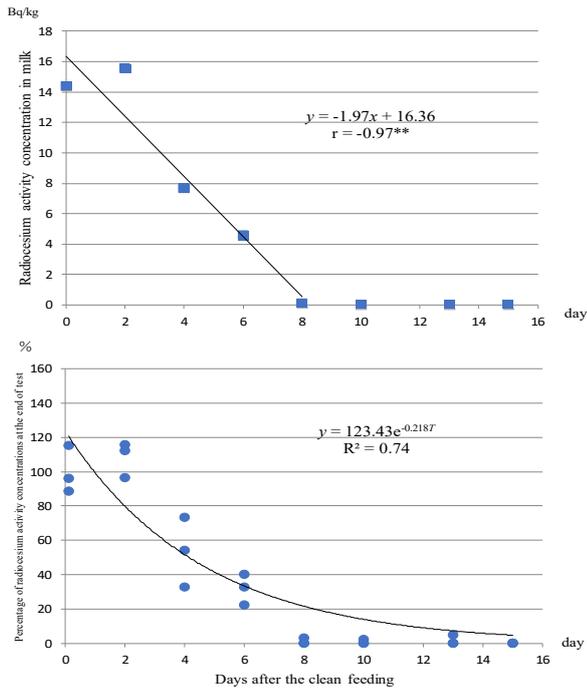


Figure 6-1 Decay of radiocesium activity concentration (above) and percentage of radiocesium activity concentrations at the end of the test in cow's milk (below).

数と放射性 Cs を含まない飼料を給与直前の乳の放射性 Cs 濃度を 100 とした場合の経過日数ごとの放射性 Cs 濃度割合との間に下記の生物学的半減期を推定する関係式が得られた (Figure 6-1)。

$$y = 123.43e^{-0.2187T} \quad R^2 = 0.74, P < 0.01 \quad (12)$$

y: 放射性 Cs を含まない飼料を給与直前の乳の放射性 Cs 濃度を 100 とした場合の経過日数ごとの放射性 Cs 濃度割合, %

T: 放射性 Cs を含まない飼料に切替え後の日数, 日

式(12)から、乳の放射性 Cs の生物学的半減期は 4.2 日と算出された。

6.4 考察

6.4.1 乳の放射性セシウムの減衰

放射性 Cs を含む飼料を摂取して乳の放射性 Cs 濃度が 14.4 Bq/kg-fresh であった泌乳牛に対して、放射性 Cs を含まない飼料に切替えて給与すると 15 日後には乳の放射性 Cs が検出できなくなり (Figure 6-1)、給与後の日数と飼料切替え時の乳の放射性 Cs 濃度を 100 とした場合の経過日数ごとの放射性 Cs 濃度割合に生物学的半減期を推定する関係式が得られた (Figure 6-1)。

三橋 (1996) は、約 50 Bq/日の飼料を摂取し、乳の放射性 Cs 濃度が 0.2 Bq/kg-fresh の場合、乳の放射性 Cs 濃度の生物学的半減期を 4.9 日と報告しており、

Takahashi *et al.* (2012) は、15,012 Bq/日の飼料を摂取し、乳の放射性 Cs 濃度が 36 Bq/kg-fresh の場合、生物学的半減期を 6 日、14 日後には放射性 Cs を含まない飼料を給与しているレベルまで低下することを報告している。また、竹中 (2012) は、26,700 Bq/日の飼料を摂取し、乳の放射性 Cs 濃度が 49 Bq/kg-fresh の場合、生物学的半減期を 5.2 日、7 日目には 13 Bq/kg-fresh に大きく減少し、33 日後には 4 Bq/kg-fresh になることを報告している。

これらのことから、乳の放射性 Cs の生物学的半減期に大きな違いはないものと推察された。また、放射性 Cs 摂取量は、乳の放射性 Cs の生物学的半減期に対して影響はあまり及ぼさないが、乳の放射性 Cs が検出できなくなるまでの時間に対して影響することが推察された。さらに、放射性 Cs を含まない飼料に切替え直前の乳の放射性 Cs 濃度が、乳の放射性 Cs 濃度の減少に要する日数に影響することが示唆された。

本試験で得られた乳の放射性 Cs の生物学的半減期を推定する関係式は、竹中 (2012) の報告する生物学的半減期を推定する式と同様の傾向を示しており、今後の例数を確保することにより精度が向上するものと考えられた。本試験の関係式より、放射性 Cs を含む飼料が摂取された後に放射性 Cs を含まない飼料に切替えた場合、乳の放射性 Cs 濃度が 50 Bq/kg-fresh であった場合、乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満にするためには、8 日以上の日数が必要となることが試算された。

これらのことから、乳の放射性 Cs 濃度が 14 Bq/kg-fresh である場合は、放射性 Cs を含まない飼料を給与しても乳の放射性 Cs が検出されなくなるまでには 15 日程度の日数が必要になることが示唆された。ただし、乳の放射性 Cs 濃度が 14 Bq/kg-fresh を上回る場合は、放射性 Cs 摂取量が影響し、乳の放射性 Cs が 10 Bq/kg-fresh 未満、または、未検出になるまでに要する時間は長くなることに留意する必要がある。乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満にするためには、8 日以上放射性 Cs を含まない飼料の給与を行う必要があると推察された。

第 7 章 総合考察

第 7 章では、これまでの結果をもとに、飼料の放射性 Cs と乳の放射性 Cs との関係、糞への放射性 Cs 排出の重要性、ゼオライトと PB の乳への放射性 Cs 移行抑制効果の比較と課題、Fm の変動要因および 10 Bq/kg-fresh 未満の乳生産を行うための飼養管理方法について考察した。

7.1 飼料の放射性セシウム濃度と乳の放射性セシウム濃度との関係

本研究では、放射性 Cs を含む飼料を摂取した泌

乳牛において、200 g/日のゼオライトおよび3.0 g/日以上PBを投与することにより、放射性Cs吸着剤を用いない場合と比較して飼料から乳への放射性Csの移行は抑制され、FmおよびCRは減少し、乳の放射性Cs濃度は、ゼオライト投与により6.5 Bq/kg-fresh、PB投与により8.6–4.2 Bq/kg-freshとなった。

給与飼料の放射性Cs濃度が500 Bq/kg-dry未満であれば、ゼオライトやPBを投与することで乳の放射性Cs濃度は、食品の基準値（厚生労働省、2012）である50 Bq/kg-fresh未満になることが確認され、さらに乳業者の求める乳の放射性Cs濃度である10 Bq/kg-fresh未満に抑制されることが示唆された。本試験での放射性Cs吸着剤を用いない場合のFmは、最大 4.77×10^{-3} （第4試験）、最小 1.68×10^{-3} （第5試験）であり、Fmの変動係数および最大値と最小値の変動幅は大きく、CRも同様の傾向であった。飼料の放射性Cs濃度が500 Bq/kg-dry未満であっても、放射性Cs摂取量が増えることにより、乳の放射性Cs濃度が10 Bq/kg-freshを超過することが推察された。

このことから、飼料の放射性Csの濃度の確認にあわせて、放射性Csを含む飼料の給与量を調整することにより、放射性Cs摂取量の制限を継続して実施していく必要があると考えられた。

7.2 糞への放射性セシウム排出の重要性

本研究では、PBを投与することにより、放射性Csの糞への排出割合が90%以上となった。また、尿と乳の放射性Cs排出量の比は放射性Cs吸着剤の有無や飼養条件にかかわらず一定であった。この結果は、Arnaud *et al.* (1988)、Giese (1989)、Unsworth *et al.*

(1989)、Voigt *et al.* (1989) が示した結果と同様であり、泌乳牛によって摂取された放射性Csの糞への排出は、放射性Csの最も主要な排出経路であり、糞への排出の促進は、乳への放射性Csの移行を抑制するための効果的な手法と考えられた。

一方、ゼオライトを投与しても、放射性Csの糞への排出が増加する傾向は見られなかったものの、尿と乳の放射性Cs排出量の比は放射性Cs吸着剤の有無や飼養条件にかかわらず一定であった。この結果は、竹中 (2012) の結果と同様であり、摂取されたゼオライトがルーメンまたは下部消化管内に留まり、糞に排出されなかったと考えられた。滞留したゼオライトが糞と共に排出されるには時間を要し、その解明には長期的な調査が必要となることが推測された。また、体内に吸収された放射性Csの乳と尿への排出割合を変化させることは、現段階では難しいことが示唆された。これらのことから、摂取した放射性Csの乳への移行を抑制するためには、放射性Csを如何に糞へ排出させるかが重要となり、放射性Cs吸着剤の利用は、放射性Csを含む粗飼料の生産が継続している地域においては、放射性Cs濃

度が10 Bq/kg-fresh未満の乳生産に有効であると推察された。

7.3 ゼオライトとプルシアンブルーの乳への放射性セシウム移行抑制効果の比較

7.3.1 ゼオライトとプルシアンブルーの比較

本研究では、乳の放射性Cs濃度は、200 g/日のゼオライト投与によりFmは 2.77×10^{-3} 、PBの投与で 2.07×10^{-3} 、CRはゼオライトの投与で 5.08×10^{-2} 、PBの投与で 4.00×10^{-2} となった。これらのことは、今回使用したゼオライトは、乳の放射性Cs濃度を10 Bq/kg-fresh未満にするためには、飼料の放射性Cs濃度は200 Bq/kg-dry、放射性Cs摂取量は3,600 Bq/日が上限で、これを上回ると乳の放射性Cs濃度を10 Bq/kg-dry未満に抑制することは難しいと推察された。一方、今回使用したPBでは、乳の放射性Cs濃度を10 Bq/kg-fresh未満にするためには、飼料の放射性Cs濃度は250 Bq/kg-dry、放射性Cs摂取量は4,800 Bq/日が上限になると推察された。これらのことは、PBは、乳の放射性Cs濃度を10 Bq/kg-fresh未満に抑制する際に、給与飼料の放射性Cs濃度の上限および放射性Cs摂取量の上限は、ゼオライトよりも20%以上高いと考えられた。また、PBは、ゼオライトと比較して少ない用量で、飼料から乳への放射性Csの移行を抑制しており、放射性Csの吸着効果が高い吸着剤であることが推察された。

ゼオライトを微粒子化して1.0 g/日投与すると、Fmは 3.09×10^{-3} とゼオライトを投与しない場合と比較して減少することが確認された。少量の摂取量であっても、ゼオライトの比表面積を大きくすることによりPB同様に効率的に放射性Csを吸着することが示唆された。少量のゼオライトを経口投与する方法ではなく、PBの投与同様に固形塩に配合するなどして継続的に摂取させる方法を解明していく必要があると考えられた。また、ゼオライト（アルミノケイ酸塩）は、イオン交換能によりCsイオンを吸着するが、その際交換されるイオンは、ナトリウムまたはカルシウムであると推察されるが、NIMS (2012) が示すとおり、ゼオライトの分子構造は一定ではなく、産地の違い、粒子の大きさの違い、合成物と天然物での組成の違いにより、泌乳牛の飼養管理に影響を及ぼすカリウムを交換する可能性があることから、放射性Cs吸着剤として利用する場合のゼオライトの組成についても今後解明していく必要があると考えられた。

7.3.2 プルシアンブルー利用の課題

ゼオライトがウシの飼料として流通していることに対して、PBは、飼料や飼料添加物あるいは動物用医薬品としての認可がなされておらず、現段階で家畜に投与することはできない。飼料から乳への放射性Cs移行抑制のために、PBの効果的投与について研究開発をさらに進める必要があると考えられた。

本研究では、PB を固形塩に混合して投与する場合は、PB と固形塩の嗜好性により適正な量の PB が摂取できないことが確認された。4.3.1 第 4 試験の PB 固形塩および Giese 塩による PB 摂取量はいずれも想定していた摂取量である 3.0 g/日と比較して少量であった。嗜好性、砥食性および物性を改良するために固形塩の固化方法を低圧プレス方式からケミカル方式にしてマグネシウムやリン酸の添加量を改良することで、PB 固形塩摂取量は 320 g/日となり、想定していた 50 g/日の 6 倍以上の固形塩摂取量および PB 摂取量となった。固形塩摂取量の増加は、PB の持つアミノ基 (-NH₂) によるアンモニア臭の抑制や嗜好性を低下させる可能性のあるマグネシウムが適量になったことが要因であると推測された。しかし、長期的な投与を想定した場合、嗜好性が高すぎることは、塩化ナトリウムや PB の摂取量が過大になることが推察された。Hove (1993) は、PB が持つ固結防止剤としての性質により、PB 濃度が 5%–10% を超えると固形塩の安定性を維持することが難しいことを指摘している。このことから、固形塩の物性と嗜好性を兼備した至適な砥食性を持つ固形塩の処方再検討がさらに必要になると考えられた。

泌乳牛での利用にあたっては、日本国内法の土壤汚染対策法や水質汚濁防止法において、PB はシアン化合物イオン (CN⁻) を含むためシアンとして扱われるため、適切な取扱いが必要となる。Arnaud *et al.* (1988) は、PB が体内でトレースできるように放射性炭素 ¹⁴C を加えた PB を用いたトレース試験において、遊離シアンは一切検出しないことを報告している。PB は、放射性 Cs 吸着剤としての有用性から、1986 年のチェルノブイリ原子力発電所事故後、欧州において家畜の飼料添加物として承認されており、乳や食肉中の放射性 Cs 濃度低減のために有効に活用されている (IAEA, 1997)。今後、国内での PB 利用を進めるにあたり、乳や肉などの可食部位および糞中の PB やシアン化合物の検出方法の検討に併せ、糞および尿と共に排出される PB の自然環境下での PB に吸着した放射性 Cs の拡散について検討していく必要があると示唆された。放射性 Cs を摂取した場合の乳への移行抑制のために、PB の飼料添加物または動物用医薬品としての研究開発をさらに進める必要があると考えられた。

7.4 飼料から乳への放射性セシウムの移行係数の変動要因

Fm や CR に影響を及ぼす飼料側の要因を考えた場合、放射性 Cs 吸着剤を用いない場合は、飼料の放射性 Cs 濃度および放射性 Cs 摂取量と正の相関が見られ、CR は、粗飼料由来の NDFom 摂取量および ADFom 摂取量と正の相関が見られた。一方、ゼオライトを用いた場合の Fm は、摂取した CP 量、NDFom 量や濃度、粗飼料由来の NDFom 量および ADFom 量

の相関関係が負の相関であったが、PB を用いた場合は、それらが正の相関となり関係性が逆であった。これらのことは、既知の報告において報告されている粗繊維摂取量 (Stewart *et al.*, 1965; Johnson *et al.*, 1968; 三橋, 1996)、牧草の種類、穀物給与量の違い (Stewart *et al.*, 1965; Ward *et al.*, 1967; Hecht, 1992; Voigt, 1993; Beresford *et al.*, 2007) が放射性 Cs 吸着剤を投与した場合の放射性 Cs の飼料から乳への移行に対する複合的な要因として影響していることが示唆された。放射性 Cs の消化管内の通過時間に影響する繊維質と、ゼオライトや PB の消化管内での動態の違いが影響したと推察された。Fm を減少させるためには、放射性 Cs の消化管内の通過時間を短くすることが重要であると考えられることから、放射性 Cs の乳への移行抑制のために、吸着剤と共に飼料繊維を主とする炭水化物や草種の違いを比較検討し、効率的に糞へ放射性 Cs を排出促進する方法について明らかにし、放射性 Cs 吸着剤の種類別による適切な給与飼料の成分について解明していく必要があると考えられた。

第 4 試験と第 5 試験に用いた放射性 Cs を含む飼料の草種とサイレージの収穫時期や調製方法は異なっているものであった。Fm と CR が最大値となったペレニアルライグラスの放射性 Cs 吸収経路は、フールアウトによる直接沈着による汚染に留まらず、葉面吸収による再分配および経根吸収であり、最小値となった第 5 試験におけるオーチャードグラスは主に経根吸収であったと考えられた。さらにペレニアルライグラスは 2010 年秋の新播草地であり、2011 年 3 月の段階で根張りは浅いものの十分な生育量を確保していた。一方、オーチャードグラスは経年草地であり、3 月の段階で十分な草冠を形成していたが、萌芽は見られていなかった。このことから、Fm の変動要因は、草種、牧草地の使用年数、生育ステージや吸収経路の違いにある可能性も考えられた。この結果は Beresford *et al.* (2000) や Howard *et al.* (2009b) の報告とは異なっていたが、本試験は草種や生育ステージによる NDFom 含量および ADFom 含量の違いを比較するための設計ではなかったことから、Fm および CR の変動要因の特定はできなかった。

今後、飼料から乳への放射性 Cs 移行抑制を行っていくうえで、経根吸収が主の牧草地から生産された飼料の利用が中心となるため、飼料生産を行うためには、牧草の放射性 Cs 吸収抑制対策の継続が示唆された。また、放射性 Cs 低吸収草種の導入についても検討が必要であると考えられた。さらに、放射性 Cs 濃度が 10 Bq/kg-fresh 未満の乳の生産のため、Fm および CR に影響を与える飼料側の要因と土壤から牧草への放射性 Cs 吸収抑制について研究が必要であると考えられた。

一方、Fm や CR に影響を及ぼす家畜側の要因を考

えた場合、本研究では、Fm は放射性 Cs 吸着剤投与の有無によらず乳量と負の相関が見られた。また、CR は放射性 Cs 吸着剤を用いない場合および PB を投与する場合には、体重と正の相関が見られたが、ゼオライトを投与した場合は、体重との相関は見られなかった。乾物摂取量との相関は、放射性 Cs 吸着剤投与の有無および種類ですべて異なり、Fm および CR に影響する家畜側の要因は、飼料側の要因と比較して少ない結果となった。

乳量と Fm および CR の関係は、乳量が増えることにより、摂取した一定量の放射性 Cs が希釈されたためと推察されるが、乾物摂取量と Fm および CR の関係は、放射性 Cs 吸着剤投与の有無またはその種類により異なった原因は本研究では特定することはできなかった。

このことから、家畜飼養における乳への放射性 Cs 移行抑制のために、飼養日齢や乳量に応じて給与する飼料や放射性 Cs 吸着剤を調整していく必要があることが推察された。また、給与飼料の栄養設計により、放射性 Cs 吸収抑制の効果が最大限になるような給与飼料割合を検討していく必要があると考えられた。放射性 Cs を含む粗飼料生産が続く地域において 10 Bq/kg-fresh 未満の乳生産のためには、適正量の放射性 Cs 吸着剤を確実に泌乳牛に摂取させる飼養管理を行うことであると考えられた。

7.5 乳の放射性セシウム濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満にするための飼養方法

IAEA (2010) は、Fm の最小値と最大値には大きな幅を示している。つまり、飼料の放射性 Cs 濃度が低くても乳の放射性 Cs 濃度が高くなる時があり、また、飼料の放射性 Cs 濃度が高くても乳の放射性 Cs 濃度が低くなること示唆している。放射性 Cs 濃度が 250 Bq/kg-dry の飼料を 20 kg/日摂取し、5,000 Bq/日の放射性 Cs を摂取した場合に乳の放射性 Cs 濃度を試算すると、IAEA (2010) によって示された最小の Fm 値 6.0×10^{-4} では乳の放射性 Cs 濃度は 3 Bq/kg-fresh となり、最大の Fm 値 6.8×10^{-2} では 340 Bq/kg-fresh となる。飼料の放射性 Cs 濃度が 500 Bq/kg-dry 未満であっても Fm が高い場合は、乳の放射性 Cs 濃度は 50 Bq/kg-fresh を超過する可能性があることを示唆している。

本研究では放射性 Cs 吸着剤を用いない場合に 1,633–15,220 Bq/日の放射性 Cs を摂取すると、Fm は最大で 5.76×10^{-3} 、平均で 3.56×10^{-3} となった (Table 5-7)。このことは、最大の Fm を用いて乳の放射性 Cs 濃度を試算すると、乳の基準値である 50 Bq/kg-fresh (厚生労働省, 2012) の乳を生産するためには、8,680 Bq/日の放射性 Cs 摂取量が上限となり、飼料の放射性 Cs 濃度が 500 Bq/kg-dry 以下であれば、飼料として 17.3 kg-dry/日の摂取が可能であることが示された。また、平均の Fm を用いて試算すると、14,000

Bq/日の放射性 Cs 摂取が上限となり、飼料として 28 kg-dry/日の摂取が可能であることが示された。

このことは、給与飼料の放射性 Cs 濃度が 500 Bq/kg-dry 以下であれば、飼料の摂取量を調整することにより、乳の放射性 Cs 濃度を 50 Bq/kg-fresh 未満に維持できると推察された。しかし、放射性 Cs 吸着剤を用いない場合は、乳の放射性 Cs 濃度は平均 15.4 Bq/kg-fresh (Table 5-7) となり、乳業者の求める 10 Bq/kg-fresh 未満の乳生産は難しくなる。本研究で得られた Fm および CR から、飼料の放射性 Cs 濃度が 150 Bq/kg-dry 未満、放射性 Cs 摂取量が 2,800 Bq/日未満であれば、放射性 Cs 吸着剤を投与することなく、乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満に抑制できると考えられた。

第3章では、ゼオライト摂取量を 200–400 g/日投与した場合に、乳の放射性 Cs 濃度および Fm は抑制され、乳の放射性 Cs 濃度は 6.5 Bq/kg-fresh となった。しかし、100 g/日投与した場合の放射性 Cs 移行抑制の効果は見られなかった。このことから、500 Bq/kg-dry 未満の放射性 Cs を含む飼料が給与された場合のゼオライト投与量は 200 g/日が適量であると考えられ、10 Bq/kg-fresh 未満の乳生産が可能であることが推察された。本研究で得られた Fm および CR から、飼料の放射性 Cs 濃度は 200 Bq/kg-dry 未満、放射性 Cs 摂取量が 3,600 Bq/日未満であれば、ゼオライトを 200 g/日以上投与することにより、乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満に抑制できることが示唆された。

一方、第4章では、PB 摂取量を 3.0 g/日以上としたとき乳の放射性 Cs 濃度および Fm は抑制され、乳の放射性 Cs 濃度は 8.6 Bq/kg-fresh となり、Fm は最小 0.21×10^{-3} 、最大 2.61×10^{-3} となった。また、PB 摂取量の増加により乳への放射性 Cs の移行抑制効果が高くなることが確認された。このことから、ウシが PB を自由に摂取できる条件において、乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満するためには、給与飼料の放射性 Cs 摂取量が 3,500 Bq/日の場合は 1.7 g/日、8,000 Bq/日の場合は 5.0 g/日の PB 投与が必要になることが試算された。また、本研究で得られた Fm および CR から、飼料の放射性 Cs 濃度が 250 Bq/kg-dry 未満、放射性 Cs 摂取量が 4,800 Bq/日未満であれば、PB を 3.0 g/日以上投与することで乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満に抑制できることが示唆された。

これらのことから、ゼオライトもしくは PB の投与により乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満にできると判断された。また、Fm の変動係数は大きく、放射性 Cs の乳への移行に対する変動幅は大きくなることから、飼料の暫定許容値 500 Bq/kg-dry 未満の放射性 Cs 濃度の飼料であっても、放射性 Cs を含む飼料を給与している場合は、リスクを最小限に抑え、さらに、乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh

未満にするために、泌乳牛に対して常に放射性 Cs 吸着剤を投与することが望ましいと判断された。ゼオライトは飼料の放射性 Cs 濃度が 500 Bq/kg-dry 未満が予測される場合に使用し、PB は飼料の放射性 Cs 濃度が低く、繊維質摂取量が少なく糞への放射性 Cs 排出量が少ない状況において、意図しない放射性 Cs の飼料への混入に対応できるように未然防止対策する場合に使用するような放射性 Cs 吸着剤の使い分けが有効であることが示唆された。

^{137}Cs は半減期が 30 年と長く、未除染の農地がまだあり、牧草および家畜の放射性 Cs 吸収抑制対策は長期に及ぶことが想定されるため、意図せず放射性 Cs を摂取した場合の持続可能な乳への放射性 Cs 移行抑制のために、本研究は、安全・安心な乳生産技術の確立の一助になったものと考えられた。今後は、乳の放射性 Cs 吸収抑制のために、飼料から乳への放射性 Cs 移行の要因を解析、放射性 Cs 吸着剤の効率利用方法および飼料栄養を検討し、あわせて放射性 Cs の低吸収草種および新たな放射性 Cs 吸着剤の探索を行い、放射性 Cs を含まない乳生産のための知見を得ていく必要があることが示唆された。

7.6 結論

本研究の結果、飼料中の放射性 Cs 濃度が農林水産省の定める暫定許容値 (500 Bq/kg-dry) 未満であれば、ゼオライトや PB を給与しなくても厚生労働省の定める乳の基準値 (50 Bq/kg-fresh) 未満の乳生産ができるが、乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg 未満に抑制するには放射性 Cs 摂取量を制限する必要がある。飼料の放射性 Cs 濃度が 150 Bq/kg-dry 以上、放射性 Cs 摂取量が 2,800 Bq/日以上ある場合は、放射性 Cs 吸着剤の投与が必要であることが示された。放射性 Cs 吸着剤を投与することにより、許容される飼料の放射性 Cs 濃度および放射性 Cs 摂取量が拡大することが示された。

放射性 Cs 吸着剤を投与する場合、乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満にするためには、許容される飼料の放射性 Cs 濃度および放射性 Cs 摂取量は、飼料の放射性 Cs 濃度が 200 Bq/kg-dry 未満、放射性 Cs の摂取量が 3,600 Bq/日未満であれば、ゼオライトを 200 g/日以上投与する必要があり、また、飼料の放射性 Cs 濃度が 250 Bq/kg-dry 未満、放射性 Cs 摂取量が 4,800 Bq/日未満であれば、PB を 3 g/日以上投与する必要があることが示された。

ゼオライトと PB の放射性 Cs 吸着の特性と効果は異なり、PB はゼオライトより少ない投与量で摂取した放射性 Cs を糞と共に排出して乳への放射性 Cs の移行を抑制し、PB を固形塩に混合して利用することにより、容易に PB を泌乳牛に摂取させることができることが示された。

摂取された放射性 Cs は糞へ最も多く排出され、乳と尿への排出は糞より少なく、その比は一定であ

るため、放射性 Cs 吸着剤の投与による糞への放射性 Cs の排出促進は、体内からの被曝を最小限にするとともに、乳の放射性 Cs 濃度を低減させる効果的な方法であることが示された。

飼料から乳への放射性 Cs の移行指標である Fm の変動要因は飼料の放射性 Cs 濃度、放射性 Cs 摂取量、繊維質摂取量との関係が確認されたが、試験によって 0.96×10^{-3} – 5.79×10^{-3} の範囲で大きく変動することが示された。乳の放射性 Cs 濃度を確実に 10 Bq/kg-fresh 未満にするためには、Fm の変動要因をさらに解明していくことが今後の課題となることが示された。

謝辞

本研究をとりまとめるにあたり、帯広畜産大学准教授の花田正明博士には指導教官として終始、懇親丁寧なご指導とご配慮を賜り、ここに謹んで感謝の意を表します。帯広畜産大学教授辻修博士には副指導教官として、博士課程進学之机を与您にいただき、適切なお助言を賜り、深謝の意を表します。山形大学准教授松山裕城博士には副指導教官として、震災当時より試験遂行のご指導とご助言を賜り、感謝の意を表します。

本研究を実施するにあたり、放射線測定手法のご指導、ご支援をいただいた東北大学電子光理学研究センターの大槻勤教授、菊永英寿准教授に心から感謝の意を表します。また、固形塩の試作、血液分析、協定研究のご支援およびご助言をいただいた日本全薬工業株式会社開発部マネージャー阿部泉博士、日本獣医生命科学大学教授味戸忠春博士に心から感謝の意を表します。

本研究におけるゼオライトの提供、試作品のご支援および貴重な情報を提供いただきました出光興産の松岡真二郎博士、飯田悦正氏、共立製薬の谷口吉宣氏、また、Giese salt および有用な情報をご提供いただきました丸紅ケミックス株式会社脇田千絵部長代理、ハネウエルジャパン株式会社梅原崇アカウントマネージャー、さらに、ゼオライトを提供いただいた株式会社ロゴストロン研究所木下拓也代表取締役役に感謝の意を表します。

乳牛飼養試験について貴重なご指導をいただきました畜産草地研究所那須研究拠点の塩谷繁博士、細田謙次博士、宮地慎博士には、感謝の意を表します。

乳牛の放射性 Cs 吸収抑制対策試験に取り組んだ福島県農業総合センター畜産研究所酪農科、動物管理員、農場管理員の皆様に感謝いたします。

本研究の一部は、福島県健康管理基金繰入金で実施し、多くのご助言とご協力を受けたことに厚く謝意を表します。

最後に、本研究を行うにあたり、献身的に応援してくれた妻、娘たち、義母、ともに支援してくれた母に深く感謝の意を表します。

引用文献

- AOAC, 2000. Official Methods of Analysis, 17th ed. Association of Official Analytical Chemists. Arlington, VA, USA.
- Aii, T., Kume, S., Takahashi, S., Kurihara, M., Mitsuhashi, T., 1990. The effect of the radionuclides from Chernobyl on iodine-131 and cesium-137 contents in milk and pastures in South-western Japan. *Jpn. Zootech. Sci.* 61, 47–53. <https://doi.org/10.2508/chikusan.61.47>
- Arnaud, M.J., Clement, C., Getaz, F., Tannhauser, F., Schoenegge, R., Blum, J., Giese, W., 1988. Synthesis, effectiveness and metabolic fate in cows of the caesium complexing compound ammonium ferric hexacyanoferrate labelled with ^{14}C . *J. Dairy Res.* 55, 1–13. <https://doi.org/10.1017/S0022029900025796>
- Baerlocher, C., McCusker, L. B., Olson, D.H., 2007. Atlas of Zeolite Framework Types, Sixth Revised Edition. Published on behalf of the Structure Commission of the International Zeolite Association by Elsevier, Amsterdam, UK. www.iza-structure.org/books/Atlas_6ed.pdf
- Beresford, N.A., Mayes, R.W., Howard, B.J., Lamb, C.S., Barnett, C.L., Segal, M.G., 1992. The bioavailability of different forms of radiocaesium for transfer across the gut of ruminants. *Radiat. Prot. Dosimetry.* 41, 87–91. <https://doi.org/10.1093/oxfordjournals.rpd.a081235>
- Beresford, N.A., Mayes, R.W., Cooke, A.I., Barnett, C.L., Howard, B.J., Lamb, C.S., Naylor, G.P.L., 2000. The importance of source-dependent bioavailability in determining the transfer of ingested radionuclides to ruminant-derived food products. *Environ. Sci. Technol.* 34, 4455–4462. <https://doi.org/10.1021/es0000697>
- Beresford, N. A., Mayes, R. W., Barnett, C. L., Howard, B. J., 2007. The transfer of radiocaesium to ewes through a breeding cycle – an illustration of the pitfalls of the transfer coefficient. *J. Environ. Radioact.* 98, 24-35. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2006.10.004>
- Birgitta, A., Sevald, F., Gustaf, A., 1990. Zeolite and bentonite as caesium binders in reindeer feed. *Rangifer, Special Issue 3*, 73-82. <https://doi.org/10.7557/2.10.3.834>
- Clarke, G.M., 1963. A second set of treatments in a Youden square design. *Biometrics.* 19, 98–104. <https://doi.org/10.2307/2527574>
- Cochran, R.C., Galyean, M.L., 1994. Measurement of in vivo forage digestion by ruminants. in Forage quality, evaluation, and utilization, in: Fahey, Jr., G.C. (Ed.), Forage Quality, Evaluation, and Utilization. American Society of Agronomy, Inc., Crop Science Society of America, Inc., Soil Science Society of America, Wisconsin. pp. 613–639.
- Cooper, J. A., 1970 Factors determining the ultimate detection sensitivity of Ge(Li) gamma-ray spectrometers. *Nucl. Instr. Methods.* 82, 273-277. [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(70\)90361-7](https://doi.org/10.1016/0029-554X(70)90361-7)
- Covell, D. F., 1959. Determination of gamma-ray abundance directly from the total absorption peak. *Analytical Chemistry.* 31, 1785-1790. <https://doi.org/10.1021/ac60155a027>
- EFSA, 2007. Opinion of the scientific panel on additives and products or substances used in animal feed on the safety of zeolite (sodium aluminosilicate, synthetic) for the reduction of risk of milk fever in dairy cows. *The European Food Safety Authority Journal.* 523, 1-11. <https://efsa.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.2903/j.efsa.2007.523>
- Fesenko, S.V., Alexakhin, R.M., Balonov, M.I., Bogdevitch, I.M., Howard, B.J., Kashparov, V.A., Sanzharova, N.I. Panov, A.V., Voigt, G., Zhuchenka, Y.M., 2007. An extended critical review of twenty years of countermeasures used in agriculture after the Chernobyl accident. *Sci. Total Environ.*, 383, 1–24. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2007.05.011>
- Fukuda, T., Kino, Y., Abe, Y., Yamashiro, H., Kuwahara, Y., Nihei, H., Sano, Y., Irisawa, A., Shimura, T., Fukumoto, M., Shinoda, H., Obata, Y., Saigusa, S., Sekine, T., Isogai, E., Fukumoto, M., 2013. Distribution of Artificial Radionuclides in Abandoned Cattle in the Evacuation Zone of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *PLOS ONE.* 8, 1-7. <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0054312>
- 福島県, 2014. 「ふくしまからはじめよう。」農業技術情報 (第39号) . カリウム濃度の高い牧草の利用技術. 農林水産部, 福島. <http://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/165974.pdf>
- 福島県, 2019. 農林水産物 (牧草・飼料作物) に係る緊急時環境放射線 モニタリング検査の結果について. 農林水産部, 福島.
- 原発事故損害賠償対策農団協議会, 2013. 生乳の放射性物質監視体制並びに自主管理基準. 原発事故損害賠償対策農団協議会, 福島.
- 原子力規制委員会, 2013. 降下物環境放射能水準調査結果 (月間降下物) (平成23年6月分) . <https://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/195/list-7.html>
- Giese, W. W., 1988. Ammonium-ferric-cyano-ferrate (II) (AFCA) as an effective antidote against radiocaesium burdens in domestic animals and animal derived foods. *Br. Vet. J.* 144, 363–369. [https://doi.org/10.1016/0007-1935\(88\)90065-6](https://doi.org/10.1016/0007-1935(88)90065-6)
- Giese, W. W., 1989. Countermeasures for reducing the

- transfer of radiocesium to animal derived foods. *Sci. Total Environ.* 85, 317–327.
[https://doi.org/10.1016/0048-9697\(89\)90331-8](https://doi.org/10.1016/0048-9697(89)90331-8)
- 橋本健, 田野井慶太郎, 桜井健太, 飯本武, 野川憲夫, 桧垣正吾, 小坂尚樹, 高橋友継, 榎本百合子, 小野山一郎, 李俊佑, 眞鍋昇, 中西友子, 2011. 福島第一原子力発電所事故後の茨城県産牧草を給与した牛の乳における放射性核種濃度. *RADIOISOTOPES.* 60, 335-338.
<https://doi.org/10.3769/radioisotopes.60.335>
- Hecht, H., 1992. Decontamination of radio-active foods. *Fleischwirtsch.* 72, 751-756.
- Hove, K., 1993. Chemical methods for reduction of the transfer of radionuclides to farm animals in semi-natural environments. *Sci. Total Environ.* 137, 235–248. [https://doi.org/10.1016/0048-9697\(93\)90391-I](https://doi.org/10.1016/0048-9697(93)90391-I)
- Howard, B.J., Beresford, N.A., Barnett, C.L., Fesenko, S., 2009a. Quantifying the transfer of radionuclides to food products from domestic farm animals. *J. Environ. Radioact.* 100, 767–773.
<https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2009.03.010>
- Howard, B.J., Beresford, N.A., Barnett, C.L., Fesenko, S., 2009b. Gastrointestinal fractional absorption of radionuclides in adult ruminants. *J. Environ. Radioact.* 100, 1069–1078.
<https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2009.03.023>
- IAEA, 1989. Radioactive fallout in food and agriculture. *Tec. Doc. 494.* International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria.
- IAEA, 1997. The use of Prussian blue to reduce radiocaesium contamination of milk and meat produced on territories affected by the Chernobyl accident. *Tec. Doc. 926.* International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria.
- IAEA, 2006. Environmental consequences of the Chernobyl accident and their remediation: twenty years of experience. *Radiological assessment reports series.* International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria. https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/Pub1239_web.pdf
- IAEA, 2010. Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. *Tec. Rep. 472.* International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria.
- 石川雄治, 古閑文哉, 内田守譜, 矢内伸佳, 渡邊鋼一, 佐藤亮一, 2018. ゼオライトを給与した黒毛和種牛の体内放射性セシウム濃度の推移. *福島農総セ研資.* 9, 33-38.
- 伊藤伸彦, 梶山巖, 木口伸二, 久保盛恵, 亀田昌典, 古川義宣, 1994. 青森県における牛乳への ^{137}Cs 移行係数. *RADIOISOTOPES.* 43, 695-699.
https://doi.org/10.3769/radioisotopes.43.11_695
- 伊藤伸彦, 2012. 福島第一原発事故による畜産物への影響とその克服. *日獣学会誌.* 65, 645-652.
- Jacob, P., Fesenko, S., Firsakova, S.K., Likhtarev, I.A., Schotola, C., Alexakhin, R.M., Zhuchenko, Y.M., Kovgan, L., Sanzharova, N.I., Ageyets, V., 2001. Remediation strategies for rural territories contaminated by the Chernobyl accident. *J. Environ. Radioact.* 56, 51–76.
[https://doi.org/10.1016/s0265-931x\(01\)00047-9](https://doi.org/10.1016/s0265-931x(01)00047-9)
- JLTA, 2005. *Animal hygiene manual -revised edition-*. Japan Livestock Technology Association, Tokyo, Japan.
- Johnson, J.E., Ward, G.M., Firestone, E., Knox, K.L., 1968. Metabolism of radioactive cesium (^{134}Cs and ^{137}Cs) and potassium by dairy cattle as influenced by high and low forage diets. *J. Nutr.* 94, 282–288. <https://doi.org/10.1093/jn/94.3.282>
- Kaikkonen, M., 2000. The effect of ammonium ferric hexacyanoferrate on reducing radiocaesium transfer from grass silage to sheep. *Agri. Food. Sci. Finland.* 9, 135-137.
<https://doi.org/10.23986/afsci.5655>
- Katsoulos, P.D., Roubies, N., Panousis, N., Christaki, E., Karatzanos, P., Karatzias, H., 2005. Effects of long term feeding dairy cows on a diet supplemented with clinoptilolite on certain haematological parameters. *Veterinary Medicine – Czech* 50, 427–431.
<https://doi.org/10.17221/5644-VETMED>
- Kinoshita, N., Sueki, K., Sasa, K., Kitagawa, J., Ikarashi, S., Nishimura, T., Wong, Y. S., Satou, Y., Handa, K., Takahashi, T., Sato, M., Yamagata, T., 2011. Assessment of individual radionuclide distributions from the Fukushima nuclear accident covering central-east Japan. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA.* 108 (49), 19526-19529.
<https://doi.org/10.1073/pnas.1111724108>
- 経済産業省, 2011. 計画的避難区域・緊急時避難準備区域の設定について. 経済産業省, 東京. https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/shiji_0421_001.pdf
- 小林美穂, 鈴木一好, 宮本進, 西村宏一, 小松正憲, 梶村恭子, 的場和弘, 木方展治, 2012. 東京電力福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の飛散を受けて実施した放牧試験牛の乳中放射能緊急調査報告. *日本畜産学会報.* 83, 57-64.
<https://doi.org/10.2508/chikusan.83.57>
- 小林信義, 山本 泰, 明石真言, 1998. 放射線事故時におけるセシウム除去としてのプルシアンブルー. *保健物理.* 33, 323-330.
<https://doi.org/10.5453/jhps.33.323>
- 厚生労働省, 2012. 乳及び乳製品の成分規格等に関する省令 (昭和 26 年厚生省令第 52 号) 及

- び食品、添加物等の規格基準（昭和34年厚生省告示第370号）。厚生労働省，東京。
- 厚生労働省，2020. 原子力災害対策特別措置法第20条第2項の規定に基づく食品の出荷制限の解除。厚生労働省，東京。
https://www.mhlw.go.jp/stf/newpage_10984.html
- Leitgeb, R., Ratheiser, N., 1990. Use of different substances as decontaminators of ¹³⁷Cs in bulls, cows and calves. Environmental contamination following a major nuclear accident, vol. 2. 234-236. International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria.
- Leggett, R. W., Williams, L.R., Melo, D.R., Lipsztein, J. L., 2003. A physiologically based biokinetic model for cesium in the human body. *Sci Total Environ.* 317 (1-3), 235-55.
[https://doi.org/10.1016/S0048-9697\(03\)00333-4](https://doi.org/10.1016/S0048-9697(03)00333-4)
- Lehmkuhler, J., Burris, R., Amaral-Phillips, D. M., 2014. Mineral and protein blocks and tubs for beef cattle. Agriculture and natural resources publications. 147, University of Kentucky UKnowledge, Kentucky, United States.
https://uknowledge.uky.edu/anr_reports/147/ (accessed 30. 4. 20)
- Majle, T., Gorzkowski, B., Sobociński, L., 1991. The role of individual segments of the gastrointestinal tract in the elimination of cesium radioisotopes (abstract in English). *Roczniki Panstwowego Zakladu Higieny.* 42, 51-54.
<https://europepmc.org/article/med/1788512>
- Martin, P., Shakhshiro, A., 2010. Certified reference material IAEA-372 radionuclides in grass, International Atomic Energy Agency Environmental laboratories, Vienna, Austria.
- Mayes, R.W., Beresford, N.A., Howard, B.J., Vandecasteele, C.M., Stakelum, G., 1996. Use of the true absorption-coefficient as a measure of bioavailability of radiocaesium in ruminants. *Rad. Environ. Biophys.* 35, 101-109.
https://www.academia.edu/19144528/Use_of_the_true_absorption_coefficient_as_a_measure_of_bioavailability_of_radiocaesium_in_ruminants
- 三橋俊彦，1996. 国産牛乳におけるセシウム-137の移行係数に関する研究. 畜産試験場研究報告. 56, 1-5.
<https://agriknowledge.affrc.go.jp/RN/2010522236.pdf>
- Mokudai, T., Anezaki, T., Mizutani, T., Tomabechi, T., Asami, S., Ogura, H., Goto, S., 2016. Radiocesium contamination of wild animals in Gunma Prefecture based on samples from October 2010 to August 2014. *Bull. Gunma Mus. Natu. Hist.* 20, 169-176.
- 元井葎子，1988. 生理・生化学的正常値. 清水正高，稲葉右二，小沼操，金川弘司，藤永徹，本好茂一編，牛疫学(第二版). 近代出版，東京. pp.63-66.
- 文部科学省，2011. 文部科学省による放射線量等分布マップ（放射性セシウムの土壌濃度マップ）の作成結果を踏まえた航空機モニタリング結果（土壌濃度マップ）の改訂について. 文部科学省，東京。
https://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/5000/4931/24/1940_0830_1.pdf
- Mumpton, F.A., 1999. La roca magica: Uses of natural zeolites in agriculture and industry. *Proceedings of the national academy of sciences of the United States of America.* 96, 3463-3470.
<https://doi.org/10.1073/pnas.96.7.3463>
- NARO, 2006. 日本飼養標準乳牛2006年版. 独立行政法人農業・食品産業技術総合研究機構. 中央畜産会，東京。
- Nikolai, F.C., 1995. Use of natural zeolites at Chernobyl. Ming DW, Mumpton FA (eds), *Natural Zeolites '93. Int. Comm. Natural Zeolites.* New York.
- NIMS, 2012. 物質・材料データベース (MatNavi). 独立行政法人物質・材料研究機構，茨城県つくば市。
URL:<http://reads.nims.go.jp/PDF/Cs/zeolite/>
- NRC, 1988. *Nutrient Requirements of Dairy Cattle* (6th rev. ed.), Natl. Acad. Press, Washington, DC, USA.
- NRC, 2001. *Nutrient requirements of dairy cattle, seventh rev. ed.* The National Academies Press, Washington, DC. <https://doi.org/10.17226/9825>
- 農林水産省，2011. 原子力発電所事故を踏まえた粗飼料中の放射性物質の暫定許容値の設定等について. 農林水産省，東京。
- 農林水産省，2012. 飼料中の放射性セシウムの暫定許容値の見直しについて. 農林水産省，東京。
- 生沼英之，矢内清恭，松山裕城，宮地慎，2012. 泌乳牛におけるゼオライトとベントナイトの放射性セシウム吸収抑制効果. *東北農業研究.* 65, 89-90. www.naro.affrc.go.jp/org/tarc/to-noken/DB/DATA/065/065-089.pdf
- 生沼英之，齋藤美緒，小田康典，遠藤孝悦，2013. 泌乳牛におけるゼオライトによる放射性セシウム移行抑制効果. *日本畜産学会報.* 84, 333-339.
<https://doi.org/10.2508/chikusan.84.333>
- Oinuma, H, Saito, M, Oda, Y, Ajito, T, Abe, I, Hanada, M., 2020. Prussian blue in salt blocks decreases radiocesium activity concentration in milk from dairy cattle fed a diet contaminated by the Fukushima nuclear accident. *J. Eiviron. Radioac.* 222, 106307.
<https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106307>
- Parab, H., Sudersanan, M., 2010. Engineering a lignocellulosic biosorbent – Coir pith for removal of cesium from aqueous solutions:

- Equilibrium and kinetic studies. *Water Res.* 44, 854–860.
<https://doi.org/10.1016/j.watres.2009.09.038>
- Phillippo, M., Gvozdanovic, S., Gvozdanovic, D., Chesters, J.K., Paterson, E., Mills, C.F., 1988. Reduction of radiocaesium absorption by sheep consuming feed contaminated with fallout from Chernobyl. *Vet. Rec.* 122, 560–563.
<https://doi.org/10.1136/vr.122.23.560>
- 佐伯誠道, 大桃洋一郎, 鎌田博, 内田滋夫, 池上幸枝, 鎌田博, 三橋俊彦, 1994. 環境パラメータシリーズ4 食品の調理・加工による放射性核種の除去率. 財団法人原子力環境整備センター, 東京.
<https://www.rwmc.or.jp/library/other/file/Kankyou4.pdf>
- 佐伯誠道, 大桃洋一郎, 鎌田博, 稲葉次郎, 宮本進, 三橋俊彦, 1995. 環境パラメータシリーズ5 飼料から畜産物への放射性核種の移行係数. 財団法人原子力環境整備センター, 東京.
https://www.rwmc.or.jp/library/other/file/kankyoo5_1.pdf
- Sasaki, K., Hayashi, M., Narita, T., Motoyama, M., Oe, M., Ojima, K., Nakajima, I., Muroya, S., Chikuni, K., Aikawa, K., Ide, Y., Nakanishi, N., Suzuki, N., Shioya, S., Takenaka, A., 2012. Radiocesium Distribution in the Tissues of Japanese Black Beef Heifers Fed Fallout-Contaminated Roughage Due to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Accident. *Food & Nutrition Science Communication.* 76, 1596–1599. <https://doi.org/10.1271/bbb.120424>
- 佐瀬尚弘, 矢部俊則, 2002. 泌乳牛にゼオライトを給与した時の血液成分および乳成分の変化. 帯広畜産大学特別研究報告. 16, 16–17.
- Shakhashiro, A., Sansone, U., 2010. Certified reference material IAEA-444 gamma emitting radionuclides in soil, International Atomic Energy Agency Environmental laboratories, Vienna, Austria.
- Stewart, H.F., Ward, G.M., Johnson, J.E., 1965. Availability of fallout Cs137 to dairy cattle from different types of feed. *J. Dairy Sci.* 48, 709–713. [https://doi.org/10.3168/jds.S0022-0302\(65\)88325-4](https://doi.org/10.3168/jds.S0022-0302(65)88325-4)
- Takahashi, A., Tanaka, H., Parajuli, D., Nakamura, T., Minami, K., Sugiyama, Y., Hakuta, Y., Ohkoshi, S., Kawamoto, T., 2016. Historical Pigment Exhibiting Ammonia Gas Capture beyond Standard Adsorbents with Adsorption Sites of Two Kinds. *Journal of American Chemical Society*, 138, 6376–6379.
<https://doi.org/10.1021/jacs.6b02721>
- 高橋友継, 榎本百利子, 遠藤麻衣子, 小野山一郎, 富松理, 池田正則, 李俊佑, 田野井慶太郎, 中西友子, 眞鍋昇, 2012. 福島第一原子力発電所事故後の茨城県産牧草を給与した牛の乳における放射性核種濃度の経時変化(第2報). *RADIOISOTOPES*, 61, 551–554.
<https://doi.org/10.3769/radioisotopes.61.551>
- 竹中昭雄, 2012. 畜産物への放射性セシウムの移行とその対策. *家畜衛生学雑誌*. 38, 97–103.
<https://tonbyo.com/proceedings/630.html?dl=3>
- Thilising-Hansen, T., Jørgensen, R.J., Enemark, J.M.D., Larsen, T., 2002. The effect of zeolite A supplementation in the dry period on periparturient calcium, phosphorus, and magnesium homeostasis. *J. Dairy Sci.* 85, 1855–1862. [https://doi.org/10.3168/jds.S0022-0302\(02\)74259-8](https://doi.org/10.3168/jds.S0022-0302(02)74259-8)
- Trckova, M., Matlova, L., Dvorska, L., Pavlik, I., 2004. Kaolin, bentonite, and zeolites as feed supplements for animals: health advantages and risks. *Vet. Med. (Praha)*. 49, 389–399.
<https://doi.org/10.17221/5728-VETMED>
- Tsuiki, M., Maeda, T., 2012a. Spatial distribution of radioactive cesium fallout on grasslands from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant in 2011. *Grassl. Sci.* 58, 153–160.
<https://doi.org/10.1111/j.1744-697X.2012.00257.x>
- Tsuiki, M., Maeda, T., 2012b. Spatial variability of radioactive cesium fallout on grasslands estimated in various scales. *Grassl. Sci.* 58, 227–237. <https://doi.org/10.1111/grs.12005>
- Unsworth, E.F., Pearce, J., McMurray, C.H., Moss, B.W., Gordon, F.J., Rice, D., 1989. Investigations of the use of clay minerals and Prussian blue in reducing the transfer of dietary radiocaesium to milk. *Sci. Total Environ.* 85, 339–347.
[https://doi.org/10.1016/0048-9697\(89\)90333-1](https://doi.org/10.1016/0048-9697(89)90333-1)
- Van Soest, P.J., Robertson, J.B., Lewis, B.A., 1991. Methods for dietary fiber, neutral detergent fiber, and non-starch polysaccharides in relation to animal nutrition. *J. Dairy Sci.* 74, 3583–3597.
[https://doi.org/10.3168/jds.S0022-0302\(91\)78551-2](https://doi.org/10.3168/jds.S0022-0302(91)78551-2)
- Voigt, G., Pröhl, G., Müller, H., Bauer, T., Lindner, J.P., Probstmeier, G., Röhrmoser, G., 1989. Determination of the transfer of cesium and iodine from feed into domestic animal. *Sci. Total Environ.* 85, 329–338.
[https://doi.org/10.1016/0048-9697\(89\)90332-X](https://doi.org/10.1016/0048-9697(89)90332-X)
- Voigt, G., 1993. Chemical methods to reduce the radioactive contamination of animals and their products in agricultural ecosystems. *Sci. Total Environ.* 137, 205–225.
[https://doi.org/10.1016/0048-9697\(93\)90389-N](https://doi.org/10.1016/0048-9697(93)90389-N)
- Vreman, K., Hoek, J., Struijs, T.D.B., 1992. Administration of ammonium ferric

- hexacyanoferrate strongly reduces radiocaesium contamination of cow's milk. *Neth. Milk Dairy J.* 46, 81–88.
- Ward, G.M., Johnson, J.E., Wilson, D.W., 1966. Deposition of fallout cesium 137 on forage and transfer to milk. *Public Health Rep.* 81, 639–645. <https://doi.org/10.2307/4592794>
- Ward, G. M., Johnson, J. E., Sasser, L. B., 1967. Transfer coefficients of fallout cesium-137 to milk of dairy cattle fed pasture, green-cut alfalfa, or stored feed. *J. Dairy Sci.* 50, 1092–1096. [https://doi.org/10.3168/jds.S0022-0302\(67\)87571-4](https://doi.org/10.3168/jds.S0022-0302(67)87571-4)
- Wakihara, T., Tatami, J., 2013. Top-down tuning of nanosized zeolites by bead-milling and recrystallization. *Journal of the Japan Petroleum Institute.* 56. 206-213. <https://doi.org/10.1627/jpi.56.206>
- Watari, K., Imai, K., Izawa, M., 1968. Radiochemical application of “iron ferrocyanide-anion exchange resin”. *J. Nucl. Sci. Tech.* 5, 309–312. <https://doi.org/10.1080/18811248.1968.9732459>
- 山口紀子, 高田裕介, 林健太郎, 石川寛, 倉俣正人, 江口定夫, 吉川省子, 坂口敦, 朝田景, 和穎朗太, 牧野知之, 赤羽幾子, 平舘俊太郎, 2012. 土壌-植物系における放射性セシウムの挙動とその変動要因. *農業環境技術研究所報告.* 31, 75-129.

要約

2011年福島第一原子力発電所事故により拡散した放射性セシウム ($^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$) により、乳や粗飼料をはじめとする畜産生産物が汚染された。日本国内での放射性セシウム (Cs) 濃度の基準は、乳で 50 Bq/kg-fresh 未満、牛の飼料で 500 Bq/kg-dry 未満でなければならないが、乳業者は 10 Bq/kg-fresh 未満の乳を求めている。これまで放射性 Cs 吸着剤の投与による放射性 Cs の乳への移行抑制は報告されているが、10 Bq/kg-fresh 未満の乳を生産するための吸着剤の使用については検討されていない。本研究は 10 Bq/kg-fresh 未満の乳生産を目的に、泌乳牛のべ 48 頭を用いて放射性 Cs 吸着剤であるゼオライトおよびプルシアンブルー (PB) の乳への放射性 Cs に移行抑制効果を検討した。

第 2 章では放射性 Cs を含む飼料を給与する飼養試験の飼料馴致試験期間を設定するため、1 頭の泌乳牛に放射性 Cs 濃度が 202 Bq/kg-dry の完全混合飼料 (TMR) を給与し、放射性 Cs 摂取後の乳の放射性 Cs 濃度の推移を調べた。その結果、乳の放射性 Cs 濃度は放射性 Cs を含む飼料投与後 11 日目で平衡に達したことから、本研究における飼料馴致期間は 14 日程度で十分であると判断した。

第 3 章では、放射性 Cs の飼料から乳への移行抑制に対するゼオライトの効果を検討するため、ゼオライトの投与量や形態を変えて 3 回の飼養試験を実施した。第 1 試験では、放射性 Cs 濃度が 202 Bq/kg-dry の TMR を給与した泌乳牛に、ゼオライトを 0、200、400 g/日投与した。その結果、ゼオライトの投与により乳の放射性 Cs 濃度は 14.7 から 6.5 Bq/kg-fresh に、飼料から乳への放射性 Cs の移行係数 (Fm) は、 3.46×10^{-3} から 1.50×10^{-3} に減少した。第 2 試験では、微細化して表面積を拡大したゼオライト 1.0 g/日を、放射性 Cs 濃度が 95 Bq/kg-dry の TMR を給与した泌乳牛に投与した。微細化したゼオライトの投与により乳の放射性 Cs 濃度は 6.4 から 5.0 Bq/kg-fresh へ減少し、Fm も 4.04×10^{-3} から 3.09×10^{-3} に抑制された。第 3 試験では、放射性 Cs 濃度が 215 Bq/kg-dry の TMR を給与した泌乳牛に、ルーメン以降での放射性 Cs の吸着を促進する目的で油脂被覆処理したゼオライト、第 1 試験で用いたゼオライトを各々 100 g/日投与した。乳の放射性 Cs 濃度および Fm はいずれのゼオライト投与でも抑制されなかった。

第 4 章では放射性 Cs の飼料から乳への移行抑制に対する PB の効果を検討するため PB の投与試験を 2 回実施した。第 4 試験では、放射性 Cs 濃度が 175 Bq/kg-dry の TMR を給与した泌乳牛に、PB 固形塩を自由舐食もしくは経口投与した。PB 摂取量は 0–3.0 g/日となり、PB 摂取量の増加に伴い乳の放射性 Cs 濃度は 16.4 から 8.6 Bq/kg-fresh に、Fm は 4.77×10^{-3} から 2.61×10^{-3} に減少した。第 5 試験では、放射性 Cs 濃度が 927 Bq/kg-dry の TMR を給与した泌

乳牛に嗜好性を改善した PB 固形塩を自由舐食もしくは経口投与した。PB 摂取量は 0–18.9 g/日となり、PB 固形塩の嗜好性改善により PB 摂取量が高めることができた。PB 摂取量の増加に伴い乳の放射性 Cs 濃度は 24.3 から 4.2 Bq/kg-fresh に、Fm は 1.68×10^{-3} から 0.28×10^{-3} に減少した。

第 5 章では第 3 章および第 4 章で使用したのべ 48 頭の結果を解析し、乳の放射性 Cs 濃度に影響を及ぼす要因を検討した。本研究で給与した飼料の放射性 Cs 濃度は 95–1,047 Bq/kg-dry の範囲であり、乳の放射性 Cs 濃度の平均および最大値は 15.4、32.0 Bq/kg-fresh であった。乳の放射性 Cs 濃度は飼料の放射性 Cs 濃度や放射性 Cs 摂取量の減少、ゼオライトおよび PB の投与量や給与飼料の NDF 濃度の増加に伴い低下することが示唆された。一方、Fm はゼオライトおよび PB の投与によって低下したが、変動幅が大きかった (平均: 2.80×10^{-3} , 変動係数: 49%)。

第 6 章では放射性 Cs を含む飼料の給与を中断して放射性 Cs を含まない飼料に切り替えた後の乳の放射性 Cs 濃度の推移を調べた。その結果、乳の放射性 Cs は 4.2 日で半減し、放射性 Cs が未検出になるまでに 15 日を要した。乳から 50 Bq/kg-fresh の放射性 Cs が検出された場合、放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg-fresh 未満にするためには、放射性 Cs を含まない飼料を 8 日以上給与する必要があると推察された。

これらのことから給与飼料の放射性 Cs 濃度が 500 Bq/kg-dry 未満であれば、乳の放射性 Cs 濃度を 50 Bq/kg-fresh 未満に維持でき、ゼオライトもしくは PB の投与により乳の放射性 Cs 濃度を 10 Bq/kg 未満にできると判断された。また、放射性 Cs の乳への移行率の変動は大きいことから、放射性 Cs を含む飼料を給与している場合は、常に放射性 Cs 吸着剤を投与することが望ましいと判断された。

