

# ゼオライトによる飼料から牛乳への放射性セシウムの移行抑制

Effect of zeolite on the transfer coefficients of radiocesium from diet to milk in dairy cattle

畜産研究所 生沼英之<sup>1</sup> 齋藤美緒 小田康典

<sup>1</sup>現農業振興課

本研究は、ホルスタイン種泌乳牛のべ20頭を用い、放射性セシウム (Cs) を含む完全混合飼料にゼオライトを添加して給与試験を行い、ゼオライトが飼料由来の放射性Csの移行係数に及ぼす影響を検討した。その結果、ゼオライトを添加しない場合、放射性Csの飼料から牛乳への移行係数は $3.8 \times 10^{-3}$ となった。また、ゼオライトを添加した場合、放射性Csの飼料から牛乳への移行係数は  $1.6 \times 10^{-3}$ となった。このことから、飼料用ゼオライトを飼料に混合給与することにより、飼料から牛乳への放射性Csの移行を抑制できることが示された。

キーワード：移行係数、吸着資材、飼料用ゼオライト、放射性セシウム

## 1 緒言

福島県における草地や飼料畑は、東京電力福島第一原子力発電所の放射能漏れ事故により、放射性セシウム (Cs) などの放射性物質が飛散して汚染され<sup>12)</sup>、原乳・牛肉の出荷制限、牧草の給与制限、あるいは堆肥の流通自粛が行われ、甚大な損失を被った。

2011年4月に農林水産省から「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」が通知された。その後2012年2月には、食品衛生法に基づく牛乳中の新規制値により、泌乳牛向け粗飼料中の放射性Csの暫定許容値が100Bq/kg (水分含有量80%換算) 以下に再設定されたことから、放射性物質汚染地域において放射性Csの規制基準に合致した粗飼料および牛乳を生産するための技術開発が強く求められている。

ゼオライトは粘土鉱物の一種であり<sup>25)</sup>、土壌改良資材や飼料添加物として用いられており、<sup>15)</sup>ゼオライトを混合した飼料の乳牛への給与により放射性Csの乳への移行が抑制されると報告されている<sup>24)</sup>。

著者らの研究グループでは、A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が含まれるウシ胃液を用いた培養実験により、放射性Csの吸着能力の高い製品を明らかにした<sup>17)</sup>。また、泌乳牛に対するゼオライト製品の給与が、尿への移行を抑制すると報告した<sup>22)</sup>。さらに、40.5Bq/kg (水分含有量80%換算)の放射性Csを含む飼料を泌乳牛に自由採食させた場合、200g/日の飼料用ゼオライトを飼料に混合することにより、乾物摂取量、乳生産性、乳成分および乾物消化率に影響を与えることなく、飼料由来の放射性Csの牛乳への移行抑制に有効であることを明らかにした<sup>18)</sup>。

東京電力福島第一原子力発電所の放射能漏れ事故による汚染飼料を泌乳牛に給与することで牛乳からの放射性Cs検出は報告されている<sup>7)12)</sup>が、移行係数の算出に十分な数のデータとはなっていない。2013年3月以降、福島県内の酪

農団体では暫定許容値を大きく下回る自給飼料の給与を検討していることから、50Bq/kg未滿の放射性Csを含む自給飼料から牛乳への移行係数の算出およびゼオライト添加による牛乳への移行係数に及ぼす影響を検討した。

## 2 材料及び方法

### (1) 供試飼料

放射性Csがフォールアウトした福島県農業総合センター畜産研究所の圃場 (福島県福島市)において、2011年5月にペレニアルライグラス一番草の乾草、9月にトウモロコシサイレージを慣行法でそれぞれ栽培、調製した。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は、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、日本飼養標準乳牛2006年版<sup>5)</sup>に基づく栄養成分要求量を満たすように、給与飼料を設計した。

### (2) 給与試験および試料採取

本研究の飼養試験は2012年6月18日から12月26日の191日間を4期 (I期6/18~8/6、II期8/6~9/15、III期9/15~11/17、IV期11/17~12/26)に分け、福島県農業総合センター畜産研究所において実施した。

供試動物としてホルスタイン種泌乳牛のべ20頭 (平均体重640kg、平均産次2.6産、平均分娩後日数208日)を用い、個別ストールにスタンションで係留飼養した。給与飼料は完全混合飼料 (TMR) を8:00と16:00に1日量の半分ずつ給与し、自由採食させた。給与量は、給与量の10%程度を食べ残すよう調整し、残飼は朝の給与前に全て回収した。鈹塩 (ボビリックSP; 日本全薬工業株式会社、福島) および水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。

試験区は、放射性Csを含まない飼料を給与した対照区、放射性Csを含む飼料のみ給与した無添加区および飼料用のゼオライト (フィードボンド; 出光興産、東京) を1日当

たり 200 ~ 400g 添加する区（添加区）の 3 区を設定した。ゼオライトを給与する区では、1 日給与量のゼオライトを半分ずつ TMR に混合して 2 回に分けて給与した。なお、放射性 Cs を含む飼料は、放射性 Cs 濃度が 50Bq/kg（水分含有量 80%換算）未満になるように設計した（表 1）。本試験期間中には、給与量および残飼量を毎日秤量し、乾物摂取量を求めた。牛乳は搾乳時に採取し、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。

表 1 試験期間、試験区および供試飼料の放射性Cs濃度

試験期間	試験区	給与飼料の放射性Cs濃度 Bq/kg (80%水分補正)
I 期 49日間	対照区	N.D.
	無添加区	40.5
	添加区	40.5
II 期 40日間	対照区	N.D.
	無添加区	19.0
	添加区	19.0
III 期 63日間	対照区	N.D.
	無添加区	35.0
	添加区	35.0
IV 期 39日間	対照区	N.D.
	無添加区	29.0
	添加区	29.0

### (3) 試料の分析方法

飼料原料、給与飼料および残飼は、60℃、72 時間の通風乾燥機で乾燥させ、1mm 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）で粉砕したものを分析に供した。粉砕した試料は 135℃ 2 時間乾燥法で乾物（DM）を算出した<sup>10)</sup>。

放射性 Cs 濃度測定のための試料は、牛乳 1000g を 200℃ のホットプレートで、水分除去したものをを用いた。測定試料を U8 容器に入れ、高純度ゲルマニウム半導体検出器（GEM40-76；セイコー・イージ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。ここでは <sup>134</sup>Cs は 604keV を、<sup>137</sup>Cs は 661keV のガンマ線を定量に用い、放射性 Cs 濃度は、IAEA-372<sup>21)</sup> を標準として用い、計数値積算法<sup>3)</sup> で算出した。十分な計数値が得られるように、牛乳は 4 時間の測定を行った。放射性 Cs 濃度は <sup>134</sup>Cs と <sup>137</sup>Cs を合算したものとした。放射性 Cs の飼料から乳への移行係数（Fm）は次の式により算出した<sup>20)</sup>。

$$\text{移行係数 (Fm)} = \frac{\text{牛乳の放射性 Cs 濃度 } (^{134+137}\text{Cs Bq/L})}{\text{摂取した飼料中の放射性 Cs 量 } (^{134+137}\text{Cs Bq/日})}$$

### (4) 統計解析

統計解析は分散分析後、各処理間差を Tukey の方法により検定した。また、関連する項目間の関係を検討するために、相関係数を求め、検定を行なった。

## 3 結果

牛乳の放射性 Cs 濃度は、飼料の放射性 Cs 濃度（現物および乾物）と高い相関が見られた。また、牛乳の放射性 Cs 量は、飼料の放射性 Cs 濃度（現物および乾物）と高い相関が見られた。牛乳の放射性 Cs 濃度および量は、摂取した放

射性 Cs 量と高い相関が見られた（表 2）。

表 2 牛乳中の放射性に関連する項目の相関検定

r 値判定 (*:5% **:1%)	牛乳Cs濃度 Bq/kgFM	牛乳Cs量 Bq/day	乳量 kg	乾物摂取量 kg	飼料摂取量 kgFM	飼料Cs濃度 Bq/kgDM	飼料Cs濃度 Bq/kgFM	摂取Cs量 Bq/day
	1	0.843**	-0.346	0.368	0.560	0.829**	0.810**	0.771**
		1	0.189	0.569	0.651*	0.810**	0.847**	0.845**
			1	0.431	0.230	-0.060	0.031	0.125
				1	0.953**	0.448	0.491	0.726**
					1	0.643*	0.656*	0.852**
						1	0.992**	0.932**
							1	0.947**
								1

ゼオライトを用いない無添加区では、回帰式（切片を 0 に補正）から得られる放射性 Cs の飼料から牛乳への移行係数は  $3.8 \times 10^{-3}$  となった（n=13）。牛乳の放射性 Cs 濃度と摂取した放射性 Cs 量には高い相関（ $r=0.85^{**}$ ）が見られた（図 1）。

ゼオライトを用いた添加区では、回帰式（切片を 0 に補正）から得られる放射性 Cs の飼料から牛乳への移行係数は  $1.6 \times 10^{-3}$  となった（n=7）。牛乳の放射性 Cs 濃度と摂取した放射性 Cs 量には高い相関（ $r=0.96^{**}$ ）が見られた。牛乳の放射性 Cs 濃度は、無添加区と比較して添加区において減少し有意な差が見られ（ $p<0.01$ ）、ゼオライトを飼料に添加することにより、平均で 54%減少した（図 1）。

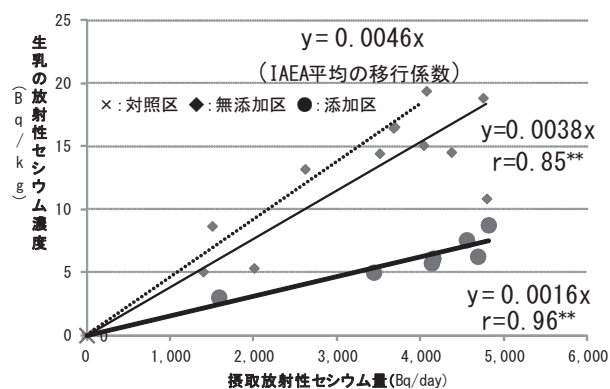


図 1 牛乳中放射性Cs濃度と摂取放射性Cs濃度の関係

## 4 考察

本研究では、放射性 Cs 濃度が 19.0 ~ 40.5Bq/kg（水分含有量 80%換算）の TMR を 191 日間自由採食させることにより、放射性 Cs の飼料から牛乳への移行係数は  $3.8 \times 10^{-3}$  となった。この移行係数は、国際原子力機関（IAEA）の示す平均値<sup>8)</sup>である  $4.6 \times 10^{-3}$  に近い係数であるとともに、今までに国内の事例で報告されている 100Bq/日未満の放射性 Cs を摂取したときの係数<sup>1)9)14)</sup>の範囲内であった。これらのことから、暫定許容値以下の飼料を泌乳牛に給与した場合の牛乳の放射性 Cs 濃度を推定する場合は、移行係数に  $4.6 \times 10^{-3}$  を用いることが適当であると推察される。

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近似している<sup>13)</sup>。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。Cs がゼオライトとともに水溶液中に存在する場合は、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<sup>16)</sup>。この特性を利用した飼料中放射性 Cs の体内吸収を抑制する効果は、トナカイにおいては Birgitta ら<sup>2)</sup>、ヒツジにおいては Phillippo ら<sup>19)</sup>、泌乳牛においては生沼ら<sup>18)</sup>が実証している。本研究では、放射性 Cs 濃度が 50Bq/kg 未満（水分含有量 80% 換算）の TMR に放射性 Cs の吸着に有効なゼオライトを添加して 191 日間自由採食させることにより、放射性 Cs の飼料から牛乳への移行係数は  $1.6 \times 10^{-3}$  と低減し、飼料から牛乳への放射性 Cs の移行係数は低下した。この結果は、ゼオライトを TMR に混合することにより、ルーメン内または下部消化管内において TMR から遊離した放射性 Cs イオンをゼオライトが吸着したためと推察される。

物質・材料データベース<sup>4)</sup>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。Unworth ら<sup>24)</sup>は、泌乳牛において放射性 Cs を 16000Bq/日 摂取時にゼオライトを 300g 給与することにより、牛乳中の放射性 Cs 濃度を 45% 減少することを報告している。本研究において、ゼオライト給与による牛乳の放射性 Cs 濃度が平均で 54% 減少したことは、ゼオライト製品の産地や組成による吸着能力の差および給与したゼオライト量に対して摂取した放射性 Cs 量が少なかったことから、ゼオライトが放射性 Cs を比較的効率よく吸着できたものと考えられる。

小林ら<sup>13)</sup>は、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ことを指摘している。さらに、放射性 Cs 吸着物質を用いた 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 吸着物質が腸管壁からの Cs 再吸収を阻害することにより、糞中への放射性 Cs の排泄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、牛乳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る。

乳牛においては、乳熱対策で乾乳牛に 700g/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<sup>23)</sup>。また、欧州食品安全機関<sup>6)</sup>は乳熱のリスク低減のために 500g/日以上 of ゼオライトを与えたときに乾物摂取量は減るが、250g/日のゼオライ

ト給与は、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。さらに、生沼ら<sup>18)</sup>は、放射性 Cs 濃度が暫定許容値未満の 40.5Bq/kg（水分含有量 80% 換算）の濃度で放射性 Cs を含む飼料を泌乳牛に自由採食させた場合、200g/日の飼料用のゼオライトを飼料に混合することにより、乾物摂取量、乳生産性、乳成分および乾物消化率に影響を与えることなく、飼料由来の放射性 Cs の牛乳への移行抑制に有効であることを示している。これらのことから、500g/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る。

以上のことから、放射性 Cs 濃度が 50Bq/kg 未満（水分含有量 80% 換算）の飼料を泌乳牛に自由採食させた場合、200～400g/日の飼料用のゼオライトを飼料に混合して給与することは、放射性 Cs の飼料から牛乳への移行係数の抑制に有効であることが示された。

<sup>137</sup>Cs は半減期が 30 年と長く、農地の除染作業が長期に及ぶことが想定される。Katsoulos ら<sup>11)</sup>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一年近い給与は血液成分に影響しないと指摘している。

今後は、自給飼料を活用した乳牛の飼養体系における放射性 Cs の吸着を目的とするゼオライトの長期給与の影響についての検討が必要となる。

## 謝 辞

本研究を行うにあたり、畜産草地研究所那須研究拠点の塩谷繁氏、細田謙次氏、松山裕城氏、宮地慎氏に貴重なご指導をいただいた。放射能測定は、東北大学電子光学学研究センターの大槻勤氏、菊永英寿氏にご指導をいただいた。ここに深謝いたします。

## 引用文献

- 1) Aii, T., Kume, S., Takahashi, S., Kurihara, M. and Mitsuhashi, T. 1989. The effect of the radionuclides from Chernobyl on iodine-131 and cesium-137 contents in milk and pastures in South-western Japan. *Journal of Zootechnical Science* 61: 47-53.
- 2) Birgitta, A., Sevald, F. and Gustaf, A. 1990. Zeolite and bentonite as caesium binders in reindeer feed. *Rangifer, Special Issue* 3: 73-82.
- 3) Covell, D.F. 1959. Determination of gamma-ray abundance directly from the total absorption peak. *Analytical Chemistry* 31: 1785-1790.
- 4) 独立行政法人物質・材料研究機構. 2012. 物質・材料データベース (MatNavi). <http://reads.nims.go.jp/PDF/Cs/zeolite/>
- 5) 独立行政法人農業・食品産業技術総合研究機構. 2006. 日本飼養標準乳牛 2006 年版. 中央畜産会, 東京.
- 6) European Food Safety Authority. 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 EFSA Journal 523:1-11.
- 7) 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.
- 8) IAEA. 2010. Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments 472: 82-96.
- 9) 伊藤伸彦・棚山 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 <sup>137</sup>Cs 移行係数. RADIOISOTOPES 43: 695-699.
- 10) 自給飼料利用研究会. 2009. 三訂版粗飼料の品質評価ガイドブック. 日本草地畜産種子協会, 東京.
- 11) Katsoulos, P.D., Roubies, N., Panousis, N., Christaki, E., Karatzanos, P. and 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.
- 12) 小林美穂・鈴木一好・宮本 進・西村宏一・小松正憲・梅村恭子・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.
- 13) 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ブルシアンブルー. 保健物理 33: 323-330.
- 14) 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.
- 15) 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.
- 16) Nikolai, F.C. 1995. Use of natural zeolites at Chernobyl. Ming, D.W., Mumpton, F.A. (eds), Natural Zeolites, 93. Int. Comm. Natural Zeolites, New York.
- 17) 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.
- 18) 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.
- 19) Phillippo, M., Gvozdanovic, S., Gvozdanovic, D., Chesters, J.K., Paterson, E. and Mills, C.F. 1988. Reduction of radiocaesium absorption by sheep consuming feed contaminated with fallout from Chernobyl. The Veterinary Record 122: 560-563.
- 20) 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.
- 21) Shkhashiro, A. and Sansone, U. 2009. Radionuclide activity measurements in environmental samples of water, soil and grass, CCRI (II) -S4 comparison report. Metrologia 46: Technical Supplement: 1-18.
- 22) 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.
- 23) Thilsing-Hansen, T., Jorgensen, R. J., Enemark, J. M. D. and Larsen, T. 2002. The effect of zeolite A supplementation in the dry period on periparturient calcium, phosphorus, and magnesium homeostasis. Journal of Dairy Science 85: 1855-1862.
- 24) Unsworth, E. F., Pearce, J., McMurray, C. H., Moss, B. W., Gordon, F. J. and Rice, D. 1989. Investigations of the use of clay minerals and prussian blue in reducing the transfer of dietary radiocaesium to milk. The Science of the Total Environment 85: 339-347.
- 25) 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・和頼朗太・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.