

原子力発電所事故による
畜産物の放射性同位元素汚染に関する研究

2013 年

岐阜大学大学院
連合獣医学研究科
(帯広畜産大学)

目次

目次	1
Abbreviation list	4
緒言	5
第1章 福島第一原子力発電所 20 km 圏内の養豚場で飼育されていた ブタの血液および糞中放射性同位元素の調査	
1. 背景	8
2. 材料および方法	8
3. 結果	9
4. 考察	9
小括	11
図表	12
第2章 福島第一原子力発電所 20 km 圏内の養豚場から清浄地域に移 送されたブタの可食部筋肉の放射性同位元素濃度測定とオートラジオ グラム (ARG)	
1. 背景	13
2. 材料および方法	13
3. 結果	14
4. 考察	15
小括	18
図表	19
第3章 計画的避難区域で捕獲・回収した野生動物の内部被曝歴	
1. 背景	22

2. 材料および方法	22
3. 結果	24
4. 考察	26
小括	31
図表	32

第4章 ベントナイトの安定同位体セシウム (Cs) 吸収抑制の子ウシを用いた基礎的検討

1. 背景	44
2. 材料および方法	45
3. 結果	46
4. 考察	47
小括	49
図表	50

第5章 ベントナイトの放射性Cs吸収抑制についてのニワトリを用いた検証

1. 背景	52
2. 材料および方法	52
3. 結果	55
4. 考察	55
小括	58
図表	59
総括	62
謝辞	65

参考文献 · · · · · 66

Abstract · · · · · 72

Abbreviation list

ARG: Autoradiogram

Ca: Calcium

Cs: Cesium

CsCl: Cesium Chloride

Ge: Germanium

Te: Tellurium

I: Iodine

ICP-MS: Inductive coupled plasma mass spectrometry

IP: Imaging plate

K: Potassium

PSL: Photo stimulated luminescence

諸言

2011年3月11日の東日本大震災に続発した津波で福島第一原子力発電所が被災し、放射性同位元素が漏洩した。そして、福島第一原子力発電所事故直後、ハウレンソウ

(<http://www.asahi.com/english/TKY201104190225.html>) および原乳 (15) の放射性同位元素汚染が報じられた。

これまでに、農畜産物の放射性同位元素汚染は、1950年代の核実験でも発生し、それを食したヒトの放射性同位元素の内部被曝による健康被害が報告されている (25)。また、1979年のスリーマイル島原子力発電所事故は、放射性希ガス (^{85}Kr および ^{133}Xe) が 93 PBq, ^{131}I が 560 GBq 漏洩し、放射性 Cs の漏洩は無かったと報道された

(<http://www.nrc.gov/reading-rm/doc-collections/fact-sheets/3mile-isle.html>)。その結果、国際原子力事象評価尺度 (INES) がレベル 5 (事業所外へのリスクをとまなうもの) と評価された。そして、原子力発電所から 16 km 圏内の住民が 0.08-1.0 mSv の被曝を受けたと計算され、被曝によるヒトの放射線障害は無いと報道された

(<http://www.ans.org/pi/resources/sptopics/tmi/whathappened.php>)。しかしながら、その地域で飼育されていたウマおよびウシの繁殖率の低下や野生の動植物で奇形発現率の増加

(<http://fnn.fujitv.co.jp/news/headlines/articles/CONN00196224.html>) が報道された。また、1986年のチェルノブイリ原子力発電所事故は、放射性ヨウ素換算値で約 5,200 PBq が漏洩した

(http://www.tepco.co.jp/cc/press/betu12_j/images/120524j0101.pdf)。その結果、INES のレベル 7 (深刻な事故) と評価された。旧ソビエト連邦共和国政府が事故発生 36 時間後から原子力発電所周辺住民 (約 11.6

万人) を避難させたにもかかわらず、甲状腺癌 (3, 5, 20) および膀胱癌 (28, 31) が小児で増加し、甲状腺癌の発症率と 0.008-8.6Gy の範囲の放射線被曝が相関すると報告された (1)。また、避難させられた家畜 (ウシ約 5 万頭, ブタ約 1.3 万頭) の汚染に関する報告はないが、英国のヒツジおよびウシの肉で ^{134}Cs が 2 kBq/kg, ^{137}Cs が 4 kBq/kg および ^{131}I が 2 MBq/kg 検出されていた (30)。そして、チロルおよびチベット地方では、ヒトの母乳で平均 2.9 Bq/l (0.74-7.4 Bq/l) の放射性同位元素が検出された (22)。さらに、ドイツ, デンマーク, スウェーデン, ハンガリーおよびオーストリアが 2008-2009 年に出荷した牛乳で、7-8% が基準値を超える放射性同位元素汚染が確認されている (30)。

2011 年の福島第一原子力発電所事故では、放射性ヨウ素換算値で約 900 PBq (希ガスが 500 PBq, ^{131}I が 500 PBq, ^{134}Cs が 10 PBq, ^{137}Cs が 10 PBq) が漏洩したと公表された

(http://www.tepco.co.jp/cc/press/betu12_j/images/120524j0101.pdf)。その結果、INES のレベル 7 と評価された。

このことから、福島第一原子力発電所事故で家畜が放射性同位元素で汚染され、その畜産物を摂取したヒトが内部被曝による健康被害を起こすことが推測された。そのため、汚染の疑われる畜産物は、出荷前に放射性同位元素汚染を検査され、暫定規制値 (500 Bq/kg) を超えた製品は出荷されなかった。しかし、2011 年 7 月に、ウシをガイガー・ミュラー計数管式サーベイメータでスクリーニング検査していたにもかかわらず、放射性同位元素に汚染した牛肉が流通した

(<http://www.asahi.com/english/TKY201107120464.html>),

(<http://www.mhlw.go.jp/stf/houdou/2r9852000001jc5x.html>)。

そこで、福島第一原子力発電所事故で漏洩した放射性同位元素によ

る畜産物の汚染を最小限にするため、家畜を汚染した放射性同位元素の種類およびその汚染経路に応じた家畜への対処が求められた。しかしながら、屠殺前の家畜の放射性同位元素の内部汚染検査方法は、明らかとなっていない。さらに、食用になる野生動物の放射性同位元素汚染の経路と程度についても不明な点が多い。

これらのことから、本研究では、福島第一原子力発電所事故により放射性同位元素汚染された地域で飼育されていた家畜および捕獲・回収した野生動物の内部汚染に焦点を当て、食の安心・安全確保のために、放射性同位元素の内部汚染を調査し、家畜の内部汚染を抑制する飼養法の開発を目的とした。

まず第1章では、ゲルマニウム（Ge）半導体検出器を用いて、放射性同位元素汚染地域で飼育されていたブタの内部汚染を調査した。

第2章では、オートラジオグラム（ARG）で、放射性同位元素汚染地域から清浄地域に移送されたブタの内部汚染を調査した。

第3章では、ARGおよびシンチグラムで、放射性同位元素汚染地域で捕獲・回収した野生動物の内部被曝歴を調査した。

第4章では、基礎検討として安定同位体セシウム（Cs）を用い、Cs吸着能を持つベントナイトのCsの吸収の抑制効果を子ウシで検討した。

第5章では、ベントナイトの放射性Csの吸収抑制について、ニワトリを用いて計画的避難区域で検証した。

第1章 福島第一原子力発電所 20 km 圏内の養豚場で飼育されていた ブタの血液および糞中放射性同位元素の調査

1. 背景

東日本大震災に続発した津波で福島第一原子力発電所が被災し、放射性同位元素が漏洩し、農畜産物の放射性同位元素汚染が報じられた。そして、ヒトの放射性同位元素による内部被曝を防護する目的で、汚染の疑いがある農畜産物の放射性同位元素汚染が出荷前に検査された。しかし、ウシをスクリーニング検査していたにもかかわらず、放射性同位元素汚染した牛肉が流通した。そのため、食の安心・安全確保の目的で、家畜の放射性同位元素の内部汚染を屠殺前に検出することが求められた。そこで、放射性同位元素汚染地域で飼育されている家畜の内部汚染について生体材料を用いて調査した。

2. 材料および方法

2.1. 試料

2011年4月10日（福島第一原子力発電所事故30日後）に福島第一原子力発電所から20 km 圏内の養豚場で飼育されていたブタ（交雑種、雄、体重：100 kg、月齢：4ヶ月齢）1例から血液と糞を採取した。血液は、耳介静脈から採取し、血餅と血清に分けて試料とした。糞は、豚舎内にいる別のブタの糞や周囲の放射性同位元素の汚染を受けないように、直腸から直接用手法で採取した。また、被検ブタが飼育されていた環境を汚染した放射性同位元素と被検ブタを汚染していた放射性同位元素の関係を知る目的で、被検ブタが飼育されていた豚舎周囲の表層土を採取した。

2.2. 放射性同位元素測定

血餅，血清，糞および表層土の1 gをそれぞれ樹脂製容器に入れ，Ge半導体検出器（GMX-10180; ORTEC, Advanced Measurement Technology Inc., Oak Ridge, TN, U.S.A.）を用い，0.03-1.5 MeVの測定レンジで43,200秒間測定した。得られた γ 線スペクトルで検出された放射性同位元素を同定し，物理学的半減期補正して採取日（2011年4月10日）の放射性同位元素濃度を算出した。

3. 結果

血餅，血清，糞および表層土の放射性同位元素濃度をTable 1に示す。表層土で ^{129m}Te ， ^{131}I ， ^{134}Cs ， ^{136}Cs および ^{137}Cs が検出された。また，血餅で ^{134}Cs および ^{137}Cs が検出されたが，血清では，放射性同位元素が検出されなかった。さらに，糞で ^{131}I ， ^{134}Cs および ^{137}Cs が検出された。

なお，Ge半導体検出器の測定条件における検出限界は， ^{129m}Te （0.106 MeV）， ^{131}I （0.364 MeV）， ^{134}Cs （0.605 MeV）， ^{136}Cs （1.048 MeV）および ^{137}Cs （0.662 MeV）で，それぞれ0.181，0.058，0.056および0.062 Bq/gであった。

4. 考察

2011年7月に流通した牛肉の放射性Cs汚染は，ウシが放射性同位元素汚染した稲ワラを経口摂取したことが原因と報道された

（www.asahi.com/english/TKY201107120464.html）。被検ブタは，稲ワラを与えられることなく放射性同位元素汚染の無い輸入配合飼料で飼育されていたにもかかわらず，糞で ^{131}I ， ^{134}Cs および ^{137}Cs が検出された。

この糞で検出された放射性同位元素は、豚舎周囲の表層土からも検出されていたことから、飼育環境を汚染していた放射性同位元素が被検ブタに経口摂取されたと考えられた。また、血餅で放射性 Cs が検出されたことから、経口摂取された放射性 Cs が体内に吸収されたことが考えられた。一方、表層土で検出された ^{136}Cs が糞、血餅または血清で検出できなかった原因は、漏洩した放射エネルギーが少なく、半減期（13 日）が短いことが考えられた。また、表層土で検出された $^{129\text{m}}\text{Te}$ が糞、血餅および血清で検出できなかった原因は、吸収された $^{129\text{m}}\text{Te}$ が特異的に腎臓に集積する（13）ためと考えられた。

放射性同位元素汚染地域で飼育されていたブタの内部汚染があったことから、畜産物によるヒトの内部汚染を未然に防ぐために、汚染地域で飼育されていた家畜の畜産物の放射性同位元素汚染検査が必要であると考えられた。これまでに、屠殺後の生体材料を用いた放射性同位元素汚染検査が報告されている（17）。そして、屠殺前の家畜で、食用肉の放射性同位元素汚染濃度を測ることは困難であった。今回の結果から、食品の安心・安全確保のために、生きた家畜の血液や糞を用いた放射性同位元素汚染のスクリーニング検査が可能と考えられた。

そればかりか、放射性同位元素汚染地域で汚染のない飼料で飼育された被検ブタが内部汚染していたように、放射性同位元素汚染地域に居住し、汚染の無い食事をしてきたヒトにおいても、放射性同位元素の内部汚染が報じられた

（<http://www.asahi.com/english/TKY201105020109.html>）。なお、本調査で用いた血液および糞によるバイオアッセイ法は、ヒトの放射性同位元素の内部汚染を知る方法としても有効と考えられた。

小括

福島第一原子力発電所から 20 km 圏内の養豚場で飼育されていたブタの血液と糞および豚舎周囲の表層土を採取し、放射性同位元素の内部汚染を調査した。豚舎周囲の表層土で検出された ^{131}I 、 ^{134}Cs および ^{137}Cs が糞で検出されたことから、福島第一原子力発電所事故で飼育環境を汚染した放射性同位元素をブタが経口摂取したと考えられた。さらに、血餅で ^{134}Cs および ^{137}Cs が検出されたことから、経口摂取された放射性 Cs が消化管から吸収されて、ブタを内部汚染したと考えられた。このことから、放射性同位元素汚染地域で飼育されていたブタの内部汚染の危険性が考えられた。また、屠殺前の生体材料で内部汚染検査できる可能性を示した。

図表

Table 1. Radioactive concentration in the blood clots, serum, feces and soil samples collected on April 10, 2011 at noon from a pig at farm within 20 km of the Fukushima Daiichi nuclear power plant

	blood clots	Serum	feces	soil
^{129m}Te (0.106 MeV)	N.D.	N.D.	N.D.	192,057
^{131}I (0.364 MeV)	N.D.	N.D.	1,098	111,207
^{134}Cs (0.605 MeV)	203	N.D.	552	200,199
^{136}Cs (1.048 MeV)	N.D.	N.D.	N.D.	9,067
^{137}Cs (0.662 MeV)	280	N.D.	687	24,152

(Bq/kg)

N.D.: Peaks were not detected.

第 2 章 福島第一原子力発電所 20 km 圏内の養豚場から清浄地域に移送されたブタの可食部筋肉の放射性同位元素濃度測定と ARG

1. 背景

第 1 章において放射性同位元素汚染した環境で飼育されていたブタの放射性 Cs の内部汚染が示唆された。一方、ガイガー・ミュラー計数管式サーベイメータを用いて放射線を計測して基準値（100,000 cpm）を超えない家畜は、福島第一原子力発電所事故後、放射性同位元素汚染地域から清浄地域に移送が許可された。これまでに、放射性 Cs で内部汚染した動物は、清浄地域で飼育される期間に体内に蓄積した放射性 Cs を排泄することが知られている（19, 29, 32）。そこで、放射性同位元素汚染地域で飼育されてから、清浄地域で飼育後に屠殺されたブタの可食部筋肉の内部汚染について調べた。

2. 材料および方法

2.1. 試料

福島第一原子力発電所から 20 km 圏内の養豚場で事故発生時（2011 年 3 月 12 日）に飼育されていたブタ（交雑種，雄）が、福島第一原子力発電所事故から 17 日後（2011 年 3 月 29 日）に 1,000 km 以上離れた清浄地域に移送された。41 日後（2011 年 5 月 10 日）に屠殺（体重：100 kg，月齢：6 ヶ月齢）し、骨格筋（バラ，モモ，ロース）および心臓を採取した。なお、被検ブタは、生涯を通して放射性同位元素汚染のない輸入配合飼料で飼育されていた。

対照として清浄地域で生涯飼育されたブタ（交雑種，雄体重：100 kg，

月齢：7ヶ月齢）の骨格筋（バラ，モモ，ロース）および心臓を2011年5月10日に採取した。

2.2. 放射性同位元素測定

被検ブタおよび対照ブタの骨格筋（バラ，モモ，ロース）および心臓100 gをそれぞれ樹脂製容器に入れ，Ge半導体検出器（GMX-10180）で測定レンジを0.05-1.5 MeVとし，43,200秒間測定した。得られた γ 線スペクトルで検出された放射性同位元素を同定し，物理学的半減期補正して，採取した2011年5月10日の放射性同位元素濃度を算出した。また，実効半減期補正して，被検ブタが清浄地域に移送された2011年3月29日の放射性同位元素濃度を算出した。

2.3. ARG作成

被検ブタおよび対照ブタの骨格筋（モモ）をそれぞれ5 mm厚に薄切し，凍結乾燥した。そして，樹脂製ラップで包埋し，イメージングプレート（IP；SR；富士フイルム，東京，日本）に31日間露光した。なお，ARGの陽性コントロールとして自然界のカリウムに含まれる ^{40}K を含むショウガを用いた。IPの読取りは，BAS-5000システム（富士フイルム，東京，日本）を用いて，25 μm の分解能で行った。また，被検ブタおよび対照ブタのARGに関心領域を設定し，放射線強度を示すphoto stimulated luminescence density（PSL/ mm^2 ）を読み取った。被検ブタおよび対照ブタのPSL/ mm^2 値は，Student'sの両側 t 検定を行い， $p < 0.01$ で有意差ありとした。

3. 結果

Ge 半導体検出器の測定条件における検出限界は、 ^{40}K (1.461 MeV), ^{134}Cs (0.605 MeV) および ^{137}Cs (0.662 MeV) で、それぞれ 0.468, 0.055 および 0.063 Bq/100g であった。採取した 2011 年 5 月 10 日に物理学的半減期補正した放射性同位元素は、被検ブタの骨格筋で ^{134}Cs が 58.9-64.3 Bq/kg, ^{137}Cs が 68.9-79.6 Bq/kg および ^{40}K が 99.6-110.3 Bq/kg, 心臓で ^{134}Cs が 31.8 Bq/kg, ^{137}Cs が 41.1 Bq/kg および ^{40}K が 98.8 Bq/kg 検出された (Table 2)。一方、対照ブタでは、 ^{40}K のみが骨格筋で 114.2-123.2 Bq/kg および心臓で 96.3 Bq/kg 検出された。

被検ブタが清浄地域に移送された 2011 年 3 月 29 日に実効半減期補正した放射性同位元素は、骨格筋で ^{134}Cs が 157.7-172.2 Bq/kg, ^{137}Cs が 178.1-205.8 Bq/kg, 心臓で ^{134}Cs が 85.2 Bq/kg, ^{137}Cs が 106.3 Bq/kg と計算された (Table 2)。

得られた被検ブタおよび対照ブタの ARG の画像の形状は、標本の脂肪部分を除く骨格筋の形状に一致した (Fig. 1-a, 1-b)。また、対照ブタの ARG は、均一な黒化を示し、被検ブタの ARG は、散発的に黒化度の高い不均一な画像を示した。さらに、被検ブタおよび対照ブタの ARG から求めた PSL/mm² 値は、それぞれ 3.89 ± 0.67 および 2.13 ± 0.43 PSL/mm² を示し、被検ブタの ARG が有意に高かった ($p < 0.01$)。

4. 考察

福島第一原子力発電所 20 km 圏内の養豚場の豚舎で飼育されていた被検ブタは、清浄地域に移送されるまで放射性同位元素汚染の無い輸入配合飼料で飼育されていたにもかかわらず、骨格筋および心臓の γ 線スペクトルで ^{134}Cs , ^{137}Cs および ^{40}K が検出された。一方、対照ブタの骨格筋および心臓の γ 線スペクトルから、 ^{40}K のみが検出され、放射

性 Cs は検出されなかった。被検ブタは、事故発生時に飼育されていた豚舎周囲の表層土に ^{134}Cs および ^{137}Cs が含まれていた (Fig. 2) ことから、清浄地域に移送される前に ^{134}Cs および ^{137}Cs の内部汚染を受けていたと考えられた。なお、採取時の被検ブタの骨格筋の ^{134}Cs および ^{137}Cs 濃度は、暫定規制値 (500 Bq/kg) 以下で、2012 年 4 月 1 日設定の食品・基準値 (100 Bq/kg) 以上と判断された。

被検および対照ブタの骨格筋に含まれる放射性同位元素は、種類と濃度が異なり、骨格筋の ARG も異なった放射性同位元素の分布を示した。すなわち、被検ブタの骨格筋 (モモ) で、IP 露光開始時の ^{134}Cs , ^{137}Cs および ^{40}K の濃度は、それぞれ 48.2, 67.9 および 110.3 Bq/kg であった。また、対照ブタの骨格筋 (モモ) で、 ^{40}K のみが、123.2 Bq/kg であった。検出された ^{134}Cs , ^{137}Cs および ^{40}K は、 γ 線と β 線を放出する。IP は、 β 線で感光され、ARG を得ることができる (14)。これらことから、今回の ARG は、 ^{134}Cs の β 線 (0.658 MeV : 70.2%, 0.415 MeV : 2.5% および 0.0888 MeV : 27.3%), ^{137}Cs の β 線 (0.512 MeV : 94.6% および 1.174 MeV : 5.4%) および ^{40}K の β 線 (1.33 MeV : 89.3%) で画像化されたと考えられた。なお、被検および対照ブタの骨格筋および心臓で検出された ^{40}K は、自然界に存在するカリウムに 0.0119% の割合で含まれる (23)。そのため、 ^{40}K による ARG は、カリウムイオンの生物学的分布を画像化する (23, 41)。したがって、対照ブタの ARG は、天然に存在する ^{40}K がカリウムイオンの分布する筋組織を画像化したと考えられた。また、Cs イオンは、カリウムイオンと同様に骨格筋に分布する (19, 21, 29)。そして、被検ブタの ARG は、対照ブタの ARG と比較して、筋組織を画像化した不均一で PSL/mm² 値が有意に高かった。これは、 ^{134}Cs および ^{137}Cs の影響と考えられた。これ

らのことから、被検ブタおよび対照ブタの ARG を比較することで放射性 Cs の生物学的分布を画像として観察できた。また、放射性 Cs が、清浄地域に移送されたブタの骨格筋に 41 日間以上残存し、心臓よりも高い濃度を示したことから、放射性 Cs の摂取がない状況で、運動量の多い心筋が骨格筋よりも短期間で放射性 Cs を排出したと考えられた。また、被検ブタの骨格筋の不均一な ARG は、骨格筋に分布する異なった筋線維タイプの活動性の違いが放射性 Cs の排泄に影響した可能性がある (7)。

なお、ブタは、ウシと異なり豚肉の追跡調査システムがないため、放射性同位元素汚染した豚肉が、清浄地域から流通し食用になる可能性が推測された。ただし、被検ブタの食肉 1 kg をヒトが摂取した場合の ^{134}Cs および ^{137}Cs を含めた預託実効線量は、0.006-0.007 mSv と計算された。また、通常のもも肉は、カリウムを 350 mg/100g の濃度で含有する

(http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/gijyutu/gijyutu3/toushin/05031802.htm)。したがって、1 kg のもも肉に ^{40}K が、およそ 100 Bq 含まれると計算される。このことから、被検ブタと対照ブタで検出された ^{40}K の濃度は、理論的に妥当であると考えられた。そこで、被検ブタの骨格筋の ^{40}K 濃度 (114.2-123.2 Bq/kg) から、被検ブタの食肉 1 kg をヒトが摂取した場合の預託実効線量は、0.001 mSv と計算されるため、万一、被検ブタの食肉をヒトが摂取した場合でも、ヒトが受ける預託実効線量は、自然放射線被曝 (年間 2.4 mSv) に比べて充分低い値と考えられた。

小括

福島第一原子力発電所 20 km 圏内の養豚場から清浄地域に移送されたブタの骨格筋および心臓を採取した。そして、Ge 半導体検出器で測定し、放射性 Cs の内部汚染を確認した。また、被検ブタの骨格筋の ARG で、放射性 Cs の分布を画像化した。これらのことから、放射性同位元素の汚染地域から清浄地域に移送されたブタの放射性同位元素汚染が示唆された。

图 表

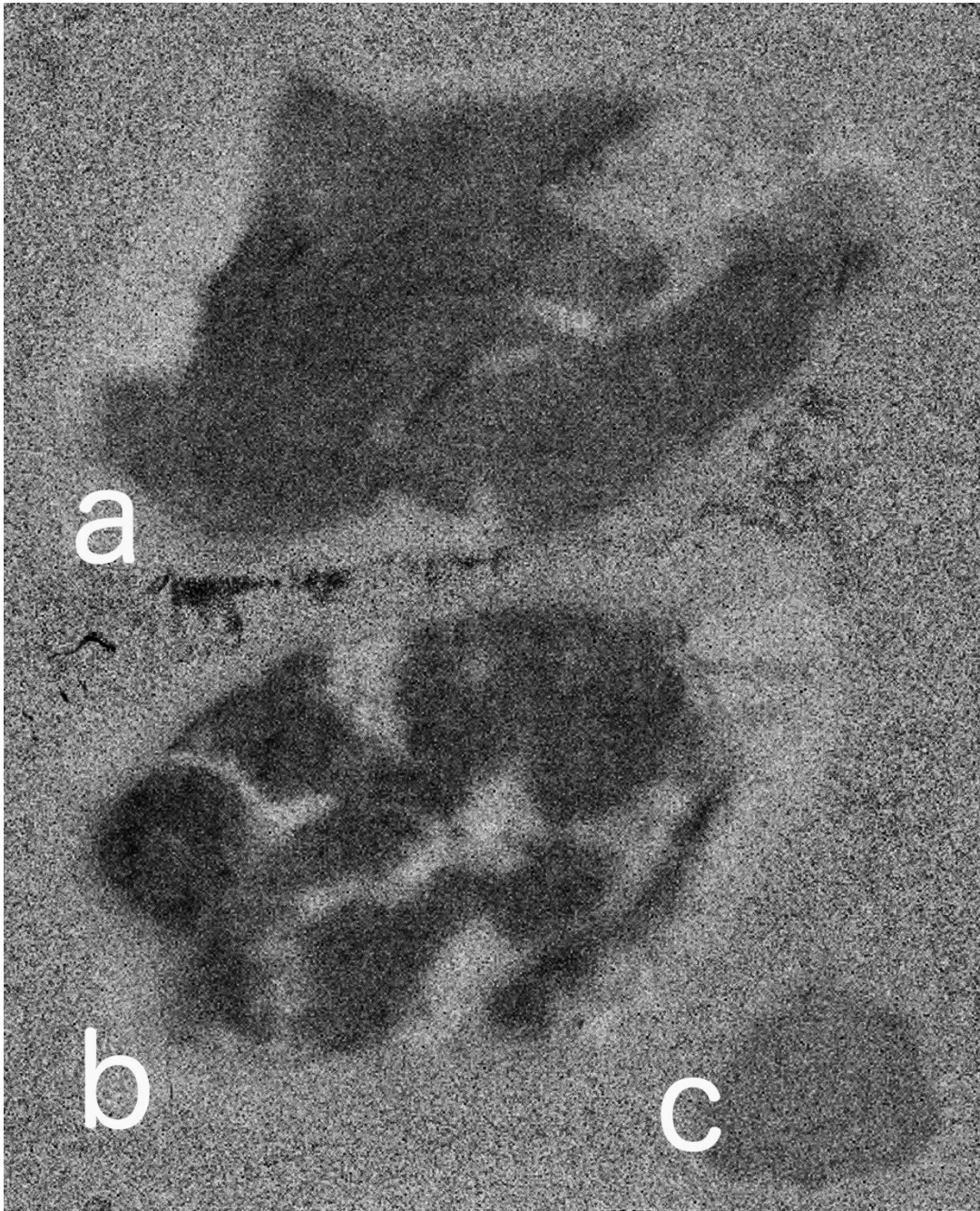


Fig. 1. Autoradiogram of control (a) and the sampled (b) skeletal muscle of pig and positive control (c; ginger) exposed to test materials for 31 days.

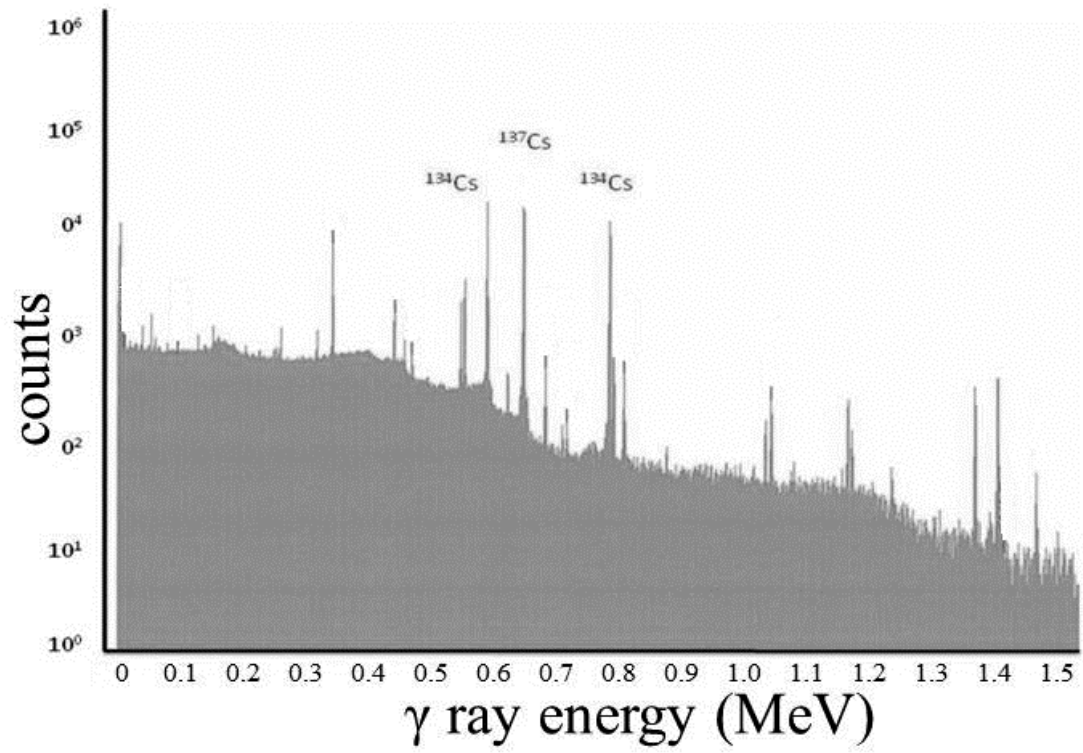


Fig. 2. γ -ray spectrum of the soil around the pigpen. ^{134}Cs and ^{137}Cs were detected.

Table 2. Radioactive concentration in a pig* which was exposed within 20 km of the Fukushima Daiichi nuclear power plant

	¹³⁴ Cs (0.605 MeV)				¹³⁷ Cs (0.662 MeV)				⁴⁰ K (1.50 MeV)			
	belly	ham	loin	heart	belly	ham	loin	heart	belly	ham	loin	heart
Calculated												
value with physical half life**	58.9	59.6	64.3	31.8	70.7	68.9	79.6	41.1	99.6	110.3	104.5	98.8
Estimated												
value with effective half life ***	157.7	159.6	172.2	85.2	182.8	178.1	205.8	106.3	****	****	****	****

(Bq/kg)

*Exposure period: 17 days: clean period: 41 days

**Physical half life: ¹³⁴Cs 2 years, ¹³⁷Cs 30 years, ⁴⁰K 1.248×10⁹ years

When the pig was slaughtered (10 May 2011)

***Effective half life of pigs were calculated by biological half life: ¹³⁴Cs 29 days, ¹³⁷Cs 30 days

When the pig was escaped to the clean area (29 March 2011)

****Natural contaminated ⁴⁰K can't be corrected by biological half life.

第 3 章 計画的避難区域で捕獲・回収した野生動物の内部被曝歴

1. 背景

第 1 章および第 2 章において福島第一原子力発電所事故による放射性同位元素汚染環境で飼育されていたブタの放射性 Cs の内部汚染が明らかとなった。このことから、汚染環境で生育する動物は、慢性的に放射性同位元素の内部被曝を受けていると推察された。しかし、単回の放射性同位元素の計測では、慢性的な内部汚染の経路および生涯被曝線量を知ることはできない。そこで、内部被曝歴を知る目的で、ARG とシンチグラムを用いて調査した。

2. 材料および方法

検討 1 計画的避難区域で回収したハクビシンの洞毛の ARG

2.1. 試料

福島第一原子力発電所事故発生から 7 ヶ月後（2011 年 10 月）に計画的避難区域（年間 20 mSv の被曝に達する可能性がある地域、福島県飯舘村）の路上で死亡していたハクビシン（雄，体長 80.0 cm，体重 4.0 kg）の洞毛を試料とした。

対照として、清浄地域である神奈川県横浜市の野毛山動物園で飼育されていたハクビシンの洞毛を用いた。

2.2. ARG 作成

被検ハクビシンおよび対照ハクビシンの死体から、洞毛を 3 本ずつ抜き取り、表面を清拭した。洞毛を樹脂製ラップで包埋後、IP (SR) に 34 日間露光した。読取りは、BAS-1800-II システム（富士フイルム、

東京，日本）を用いて，50 μm の分解能で行った。

また，ARG で画像化された洞毛の長さを測定し，実際の洞毛の長さと比較した。さらに，ARG からプロファイルカーブを作成し，体表面から 5 mm 単位で PSL/ mm^2 を集計した。

2.3. 放射性同位元素測定

被検ハクビシンおよび対照ハクビシンの洞毛を Ge 半導体検出器 (LB-GMX-30190-HJ; ORTEC, Advanced Measurement Technology Inc., Oak Ridge, TN, U.S.A.) で測定レンジを 0.03-2.0 MeV とし，40,000 秒間測定した。得られた γ 線スペクトルで放射性同位元素を同定した。

検討 2 計画的避難区域で捕獲された野生イノシシの鬣の ARG

2.1. 試料

福島第一原子力発電所事故発生から 21 ヶ月後（2012 年 12 月）に計画的避難区域で捕獲した野生イノシシ（雄，体長 100 cm，体重 100 kg）の鬣を試料とした。被検イノシシの鬣は，正常の形態として毛先が 3-4 本に分離していた。

2.2. ARG 作成

被検イノシシの鬣は，3 本を抜き取り，表面を清拭された。鬣を樹脂製ラップで包埋後，IP (BAS-III, 富士フイルム, 東京, 日本) に密着させて 23 日間露光した。読取りは，BAS-1800-II システムを用いて，200 μm の分解能で行った。さらに，被検イノシシの鬣が ARG で画像化された長さを測定し，実際の鬣の長さと比較した。

検討3 計画的避難区域で回収された野生ハクビシンの¹³⁷Csの シンチグラム

2.1. 動物

福島第一原子力発電所事故発生から7ヶ月後（2011年10月）に計画的避難区域の路上で死亡していたハクビシン（雄，体長80.0 cm，体重4.0 kg）を使用した。

2.2. シンチグラム作成

被検ハクビシンは，小型γカメラ（プロトタイプ，エスペックテストシステム株式会社，兵庫，日本）にピンホールコリメータ（鉛厚：2.0 cm，穴径：1.0 cm）を装着して3,600,000秒間撮像した。ピンホールコリメータは，小型γカメラと被検ハクビシンを結ぶ直線上で，小型γカメラから5.0 cm，被検ハクビシンから80.0 cmの場所に設置された。また，画像は，¹³⁷Csのエネルギーピークを選択して，エスペックテストシステム株式会社製画像構成システムを用いてシンチグラムを作成した。

2.3. 放射性同位元素測定

被検ハクビシンの頭部，心臓，肺，肝臓，消化器および大腿部の骨格筋を樹脂製容器に入れ，Ge半導体検出器（LB-GMX-30190-HJ）で測定レンジを0.03-2.0 MeVとし，40,000秒間測定した。得られたγ線スペクトルで¹³⁷Csを同定し，撮像開始日に物理学的半減期補正して¹³⁷Cs濃度を算出した。

3. 結果

検討1で得られたARGは、被検ハクビシンの洞毛で毛根から毛幹の一部までに一致して画像化されたが、対照ハクビシンの洞毛で画像化されなかった (Fig. 3)。また、被検ハクビシンのARGで画像化された洞毛の長さは、62.3, 57.3 および 65.1 mm で、実際の被検ハクビシンの洞毛の長さは、それぞれ 87.3, 93.7 および 97.5 mm であった (Table 3)。いずれの洞毛も、ARGで画像化された長さは、実際の長さよりも短く、全長が画像化されたものは無かった。さらに、ARGのPSL/mm²値は、いずれの洞毛も体表から30-35 mmの位置で最も高い値を示し、10-15 mm周期のプロファイルカーブを示した (Fig. 4)。

また、被検ハクビシンの洞毛の γ 線スペクトルで¹³⁴Csおよび¹³⁷Csが検出された (Fig. 5-a)。しかし、対照ハクビシンの洞毛の γ 線スペクトルに放射性同位元素を同定可能なレベルの γ 線が検出されなかった (Fig. 5-b)。

検討2で得られた被検イノシシの鬣のARGは、不規則な放射性同位元素の分布を示した (Fig. 6)。そして、被検イノシシの鬣は、毛根に近い毛幹がARGで画像化されなかった。さらに、毛球を脱落した鬣 (Fig. 6-a) は、毛根部が画像化されなかったが、毛球を含む鬣 (Fig. 6-b, 6-c) は、毛根部が画像化された。また、被検イノシシのARGで画像化された鬣の長さは、55.3, 78.2 および 51.1 mm で、実際の被検イノシシの鬣の長さは、それぞれ 116.2, 136.4 および 117.8 mm であった。いずれの鬣も、ARGで画像化された長さは、実際の長さよりも短く、全長が画像化されたものは無かった (Table 4)。

検討3で得られた被検ハクビシンのシンチグラムは、¹³⁷Csの分布を描出し、腹部で最も高い密度を呈した (Fig. 7)。また、被検ハクビシンの頭部、心臓、肺、肝臓、消化管および骨格筋の¹³⁷Cs濃度を

Table 5 に示す。

4. 考察

^{40}K を含むカリウムは、動物の体内で一定濃度に維持されている。また、ヒトの毛髪にカリウムが含まれることが報告されている (6)。これらのことから、カリウムは、ハクビシンの洞毛およびイノシシの鬣に一定濃度で含有されると推察された。そこで、ハクビシンの洞毛およびイノシシの鬣が含有するカリウムに含まれる ^{40}K が、IP を感光する可能性があった。しかしながら、被検ハクビシンの洞毛および対照ハクビシンの洞毛の γ 線スペクトルから、 ^{40}K の γ 線は検出されなかった。さらに、対照ハクビシンの洞毛、被検ハクビシンの毛幹の途中から毛先までおよび被検イノシシの鬣の体表面から毛幹の途中までの ARG が得られなかった。これらのことから、ハクビシンの洞毛およびイノシシの鬣に存在すると考えられる ^{40}K が少量のため、 ^{40}K から放出される γ 線を γ 線スペクトルで検出できず、 ^{40}K から放出される β 線が IP を十分に感光できなかったと考えられた。一方で、被検ハクビシンの洞毛の γ 線スペクトルで ^{134}Cs および ^{137}Cs が検出された。また、被検イノシシが、被検ハクビシンを回収した計画的避難区域で捕獲されたことから、 ^{134}Cs および ^{137}Cs の内部汚染を受けていたと推察された。検出された ^{134}Cs および ^{137}Cs は、 γ 線と β 線を放出する。このことから、今回の被検ハクビシンの洞毛および被検イノシシの鬣の ARG は、 ^{134}Cs の β 線 (0.658 MeV: 70.2%, 0.415 MeV: 2.5%, および 0.0888 MeV: 27.3%) および ^{137}Cs の β 線 (0.512 MeV: 94.6%, および 1.174 MeV: 5.4%) で得られたと考えられた。

重金属あるいは薬物で体内が暴露を受けた際に成長したヒトの毛髪

は、成長した部位にそれら成分を高濃度に含有することが知られている（2, 6, 27）。同様に、放射性 Cs で内部被曝した際に成長した洞毛は、成長した部位に放射性 Cs を被曝した濃度に依存して蓄積すると推察された。このことから、被検ハクビシンの洞毛および被検イノシシの鬣の ARG で画像化された部位は、放射性 Cs の内部被曝があった際に成長した部位と考えられた。

マウスの洞毛の成長速度は、洞毛が長くなるに従い速くなり、0.3-1.0 mm/day（18）と報告されている。また、ポッサムの洞毛は、0.2-0.5 mm/day（24）、ゴマフアザラシの洞毛は、0.33 mm/day（16）で成長すると報告されている。そこで、ハクビシンの洞毛が1日当たり0.3 mm の割合で成長したと計算すると、被検ハクビシンの洞毛が内部被曝したと考えられる福島第一原子力発電所事故当日（2011年3月12日）から被検ハクビシンを路上で回収した2011年10月上旬までの7ヶ月間に64mm成長したことになる。これは、ARGで画像化された長さ（約65mm）に相当する。このことから、被検ハクビシンの洞毛の成長速度として仮定した0.3 mm/dayは、マウス、ポッサムおよびゴマフアザラシの洞毛の成長速度と比較して、妥当な値と考えられた。また、0.3 mm/day の成長速度および PSL/mm² のピークの周期から、被検ハクビシンの内部被曝が30-50日周期で増加したと考えられた。放射性同位元素汚染地域で飼育されたブタの内部汚染が放射性同位元素の経口摂取による可能性が高い（34, 36, 41, 42）ことから、被検ハクビシンの内部被曝の変化は、汚染濃度の異なった餌を摂取したことで生じたと考えられた。これまでに、野生ハクビシンが0.3-0.7 km² のテリトリーに複数の巣を持つことが報告されている

(http://www.maff.go.jp/j/seisan/tyozyu/higai/h_manual/h20_03b/pdf/data)

0.pdf)。このことから、被検ハクビシンが、定期的に餌場を変え、汚染濃度の異なった餌を摂取することで、周期的に内部被曝を繰り返したと考えられた。さらに、PSL/mm²のピークは、毛根に近づくに従って高くなり、死亡の3-4ヶ月前（2011年6-7月）に最も高いPSL/mm²値を示した。これは、餌が春から夏にかけて放射性Cs濃度が高い種類に変わったことや被検ハクビシンの成長に伴って摂餌量が増加したことで、内部被曝が増加したためと考えられた。

また、モリイノシシ (*Hylochoerus meinertzhageni* Thomas) の毛の成長速度は、0.4 mm/day と報告されている (8)。そこで、被検イノシシの鬣が 0.4 mm/day で成長した場合、ARG で画像化された鬣の長さから、内部被曝したと考えられる期間が捕獲された 290-341 日前 (2012 年 1-2 月) から 146-167 日前 (2012 年 6-7 月) までと計算された。このことから、高濃度の内部被曝をおよそ半年毎に繰り返していると考えられた。これまでに、チェルノブイリ事故後の野生イノシシで放射性Cs内部被曝の季節変化が報告されている (10)。また、雑食性のイノシシは、季節で食性が変化することが報告されている (11)。2012 年 2 月の福島県内のミミズから放射性Csが、20,000 Bq/kg 検出されたことが報じられた

(http://www.nikkei.com/article/DGXNASDG06020_W2A200C1CR8000/)。

また、野生キノコの放射性Cs汚染 (Fig. 8) および野生ハクビシンの放射性Cs汚染が報告された (38, 39)。このことから、計画的避難区域で生息していた被検イノシシは、慢性的に放射性Csを経口摂取していた可能性がある。それにもかかわらず、被検イノシシの鬣の ARG で 2012 年 8-11 月に成長した部位を画像化できなかったことから、被検イノシシは、2012 年 1-7 月に放射性同位元素を多く含む餌を摂取し、2012

年 8-11 月に放射性同位元素をあまり含まない餌を摂取していたと考えられた。このことから、鬣の ARG で年間の被曝歴を知ることができると考えられた。

さらに、動物の内部被曝履歴を生きたまま野外でモニタリングすることを想定して、 ^{137}Cs のシンチグラムを作成した。 ^{137}Cs の測定は、 γ カメラの検出器サイズが $5.0 \times 5.0 \text{ cm}$ の小型 γ カメラを用いた。そして、ピンホールコリメータを装着して、ピンホールコリメータから被写体までの距離を 80.0 cm 、ピンホールコリメータから γ カメラまでの距離を 5.0 cm とし、体長 80.0 cm の被検ハクビシンを $1/16$ に縮小した(Fig. 9)。また、コリメータ空間分解能 (Fig. 10) が式-1から、 18 cm と計算された (12)。

$$R=(a+b)/b+d \quad \cdot \cdot \cdot \quad \text{式-1}$$

R : ピンホールコリメータ空間分解能

a : 被写体からピンホールまでの距離

b : 検出器からピンホールまでの距離

d : 開孔径

このことから、体長が 80.0 cm の被検ハクビシンを 4 分割 (頭部, 胸部, 腹部および大腿部) 程度に分離して観察可能と考えられた。また、シンチグラムは、腹部で高いデンシティを示した。さらに、 ^{137}Cs 濃度は、消化管 (29.7 kBq/kg) で高濃度を示した。消化管が腹部に位置することから、シンチグラムは、 ^{137}Cs の濃度を画像化できたと考えられた。

また、消化管内容物に含まれていた植物の種子の放射能濃度が高いことを ARG で確認している (Fig. 11)。このことから、消化管の高い ^{137}Cs 濃度の原因は、摂取された餌の ^{137}Cs 汚染と考えられた。

一方、被検ハクビシンのシンチグラム測定に 3,600,000 秒間を要した。生きたままの野生動物で ^{137}Cs のシンチグラムを得るためには、短時間で撮像できることが必須である。そのため、 γ カメラシステムの検出効率の改善が必要と考えられた。検出効率の改善は、検出器と被写体の距離を短縮することとピンホール径を拡大することが考えられる。放射線の検出効率は、 γ カメラと被写体の距離の 2 乗に反比例して改善される。また、ピンホール径を 1.0 cm から 2.0 cm に拡大すると、ミリメートル空間分解能が 18.0 cm から 19.0 cm に低下するが、検出効率は 4 倍に改善できると計算された。さらに、生きた野生動物を撮像時に不動化することは、困難である。そこで、動物の動きを補正する画像構成システム (40) が必要と考えられた。

小括

計画的避難区域で捕獲・回収した野生動物の慢性的な放射性同位元素の内部被曝の観察に、ARG とシンチグラムの応用を試みた。

洞毛や鬣の ARG は、内部被曝で毛の成長と共に毛に蓄積した放射性 Cs の分布を画像化した。また、画像化された毛の長さや毛の成長速度から、個体の内部被曝時期を算出できると考えられた。このことから、洞毛および鬣の ARG で、放射性同位元素汚染環境に生息する動物の内部被曝歴を観察することが可能と考えられた。また、ピンホールコリメータを装着した小型 γ カメラシステムを用いて、計画的避難区域で回収したハクビシンの ^{137}Cs のシンチグラムを得ることができた。得られたシンチグラムの輝度分布は、 ^{137}Cs の濃度分布に一致した。このことから、放射性同位元素の内部被曝歴をシンチグラムで観察できる可能性が示唆された。

图表

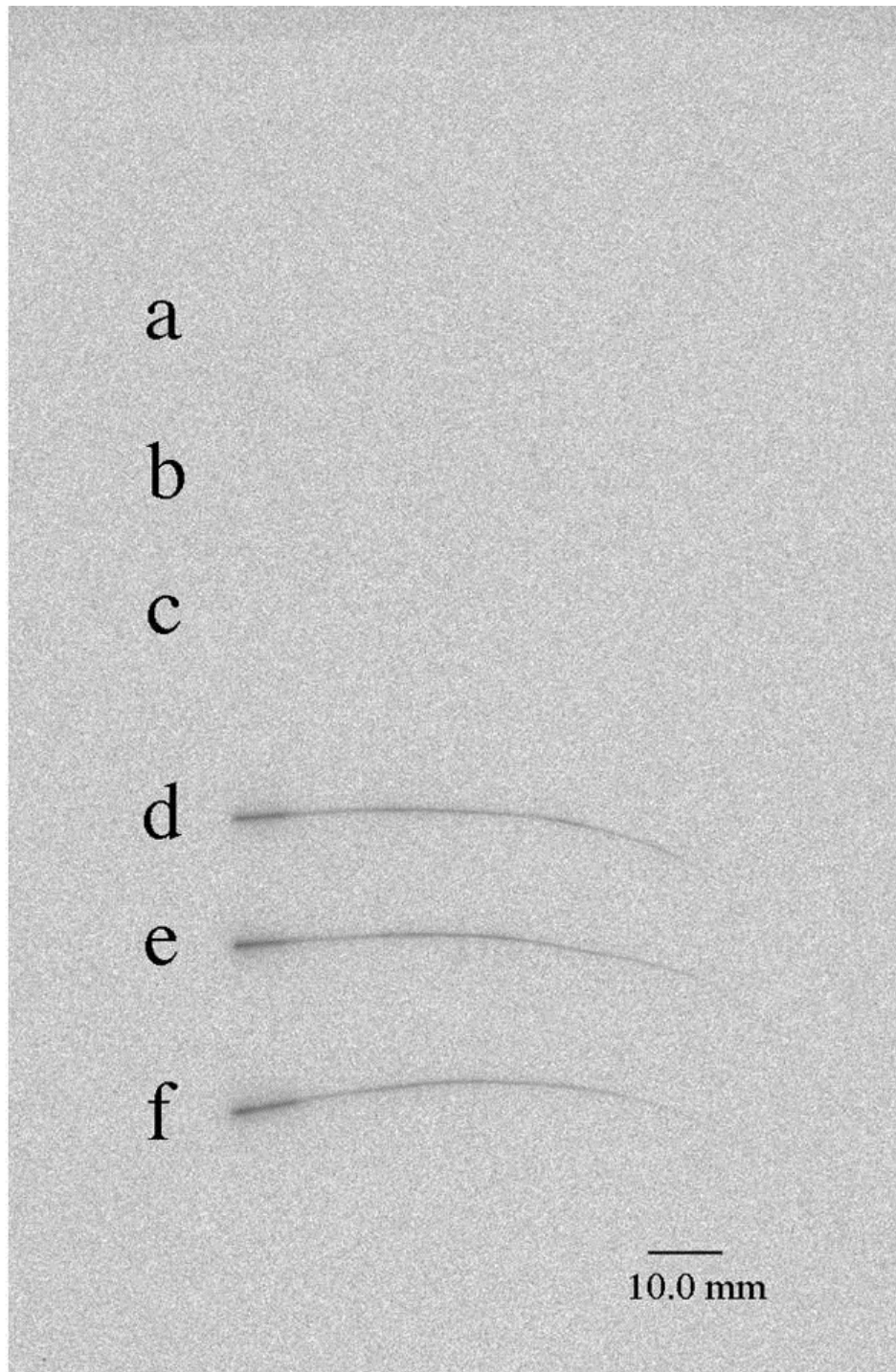


Fig. 3. Autoradiogram of the control (a, b, and c) and sampled (d, e, and f) vibrissae of a wild masked palm civet exposed to test materials for 34 days.

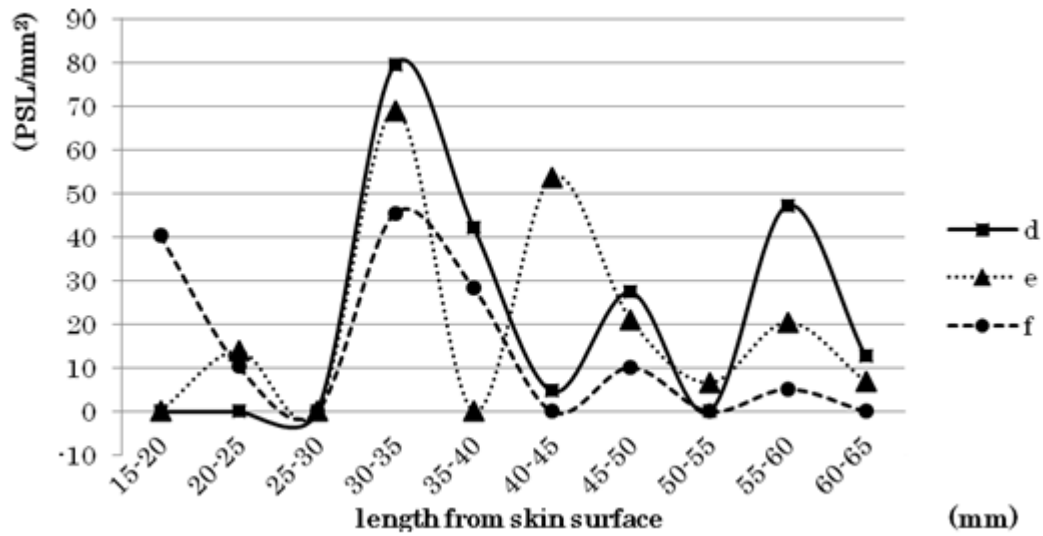


Fig. 4. Profile curves of PSL/mm² of autoradiogram. PSL/mm² was the highest portion of 30-35 mm from the skin surface and showed a pattern of high density at intervals of 10-15 mm. (d, e, and f: sampled vibrissae of the wild masked palm civet, see Fig.3 in page 32)

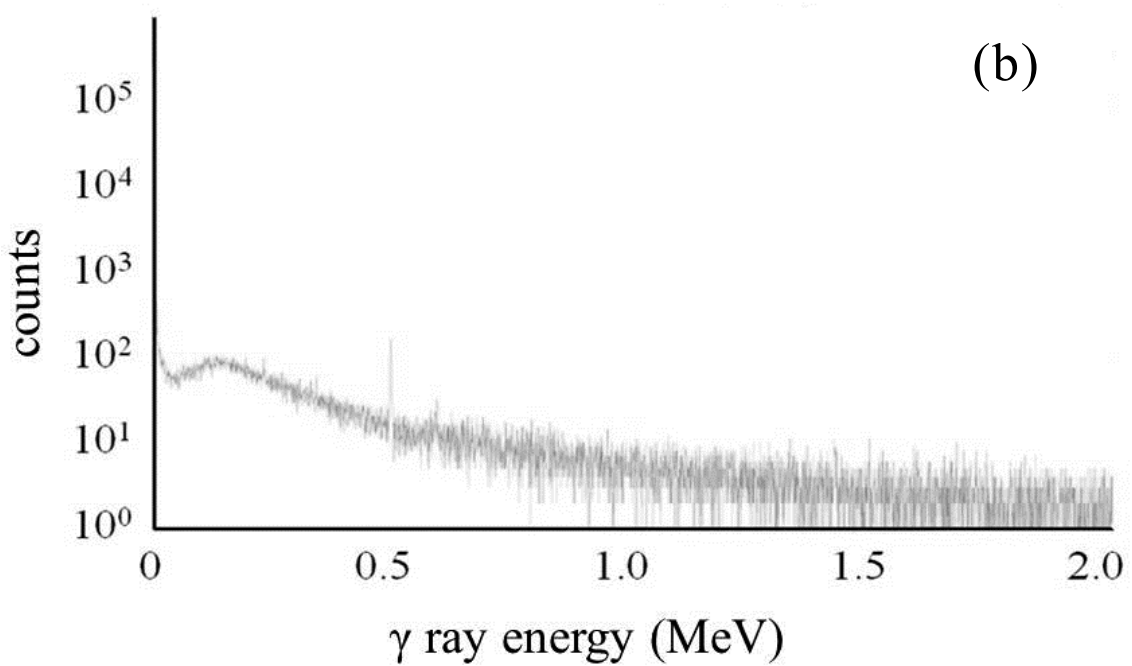
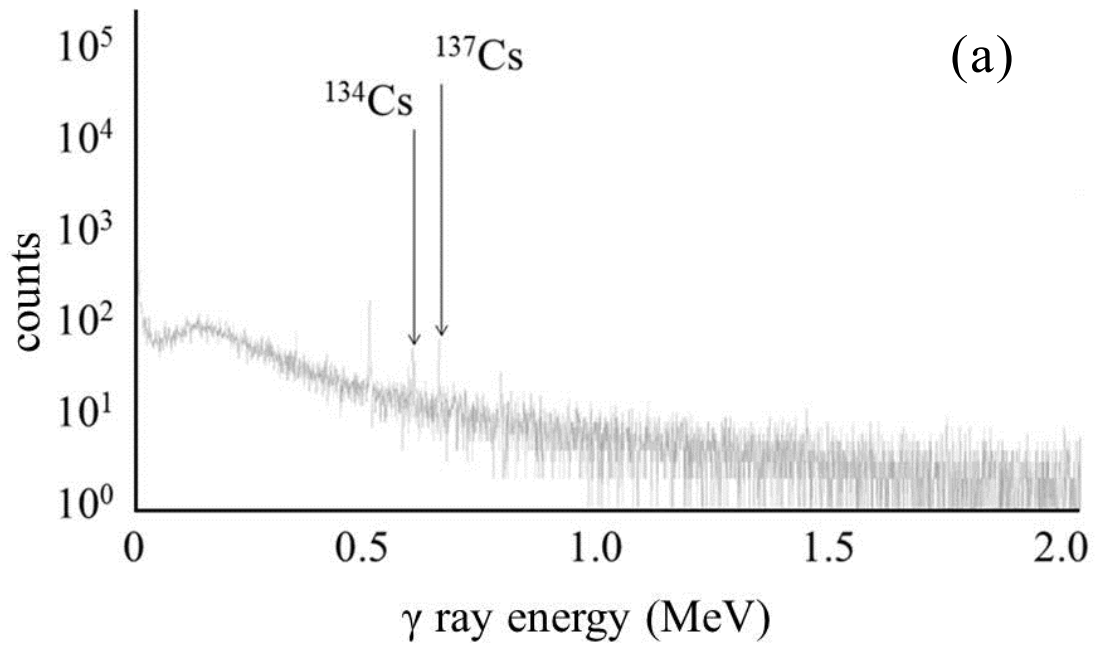


Fig. 5. γ -ray spectrum of the sampled vibrissae of the wild masked palm civet (a). ^{134}Cs and ^{137}Cs were detected. γ -ray spectrum of control vibrissae of a masked palm civet (b). Radionuclides were not detected.

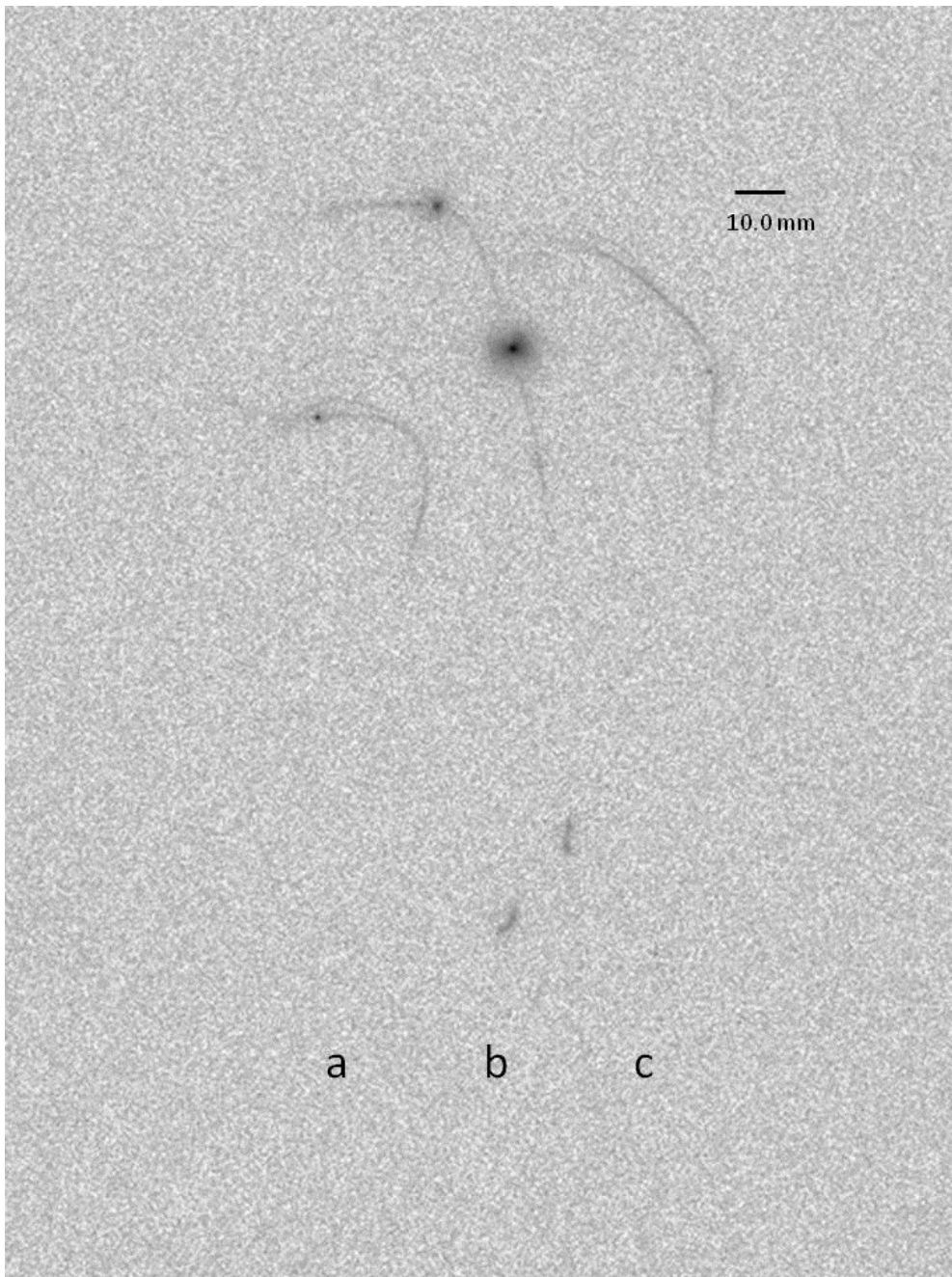


Fig. 6. Autoradiogram of the sampled (a, b, and c) mane of the wild boar exposed to test materials for 23 days. Autoradiogram was showed irregularly. Each mane was visualized from tip to center of hair shaft. And, hair bulbs (b, c) were visualized.

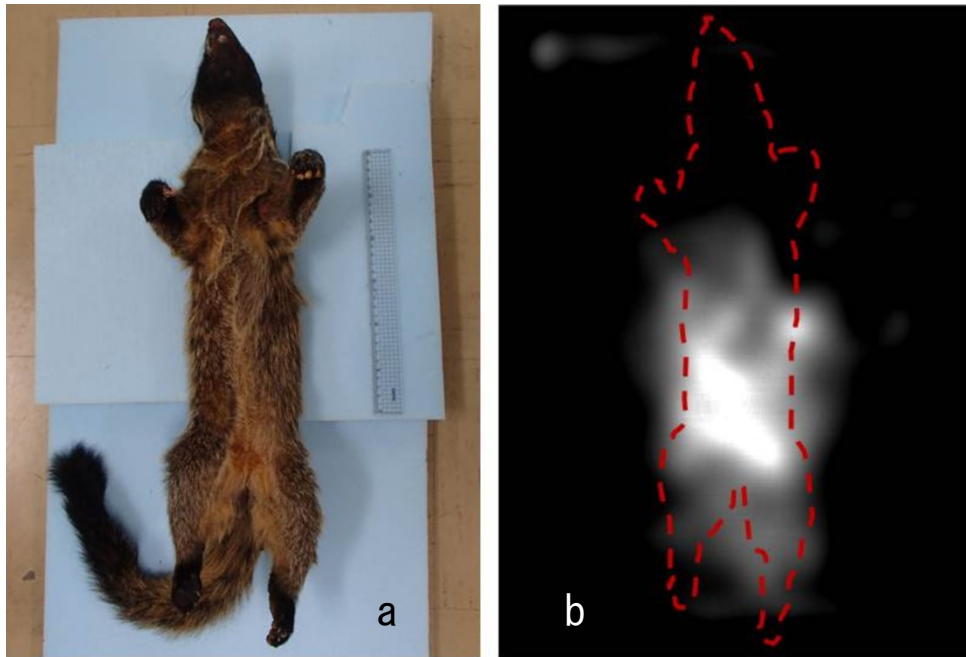


Fig. 7. Sampled wild masked palm civet (a) and scintigram of the wild masked palm civet (b). Scintigram showed chest, abdomen and legs of wild masked palm civet. The density of abdomen was high.

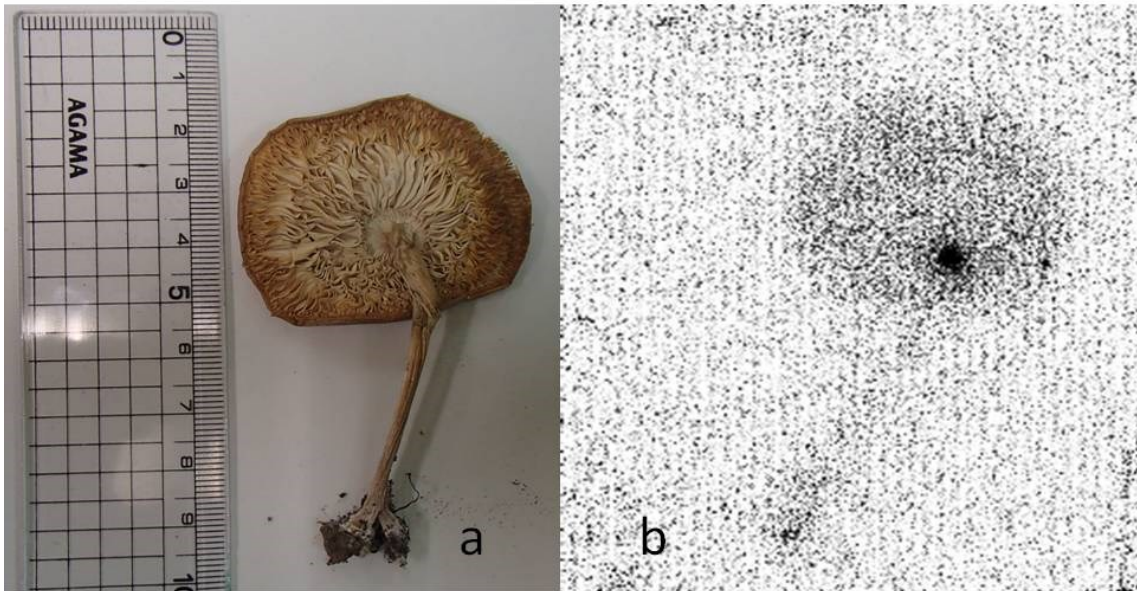


Fig. 8. Sampled wild *Pholiota lenta* (a) and autoradiogram of wild *Pholiota lenta* (b) exposed to test material for 20 days. Mushroom has been contaminated with ^{134}Cs and ^{137}Cs . Pileus and stipe were visualized by autoradiogram.

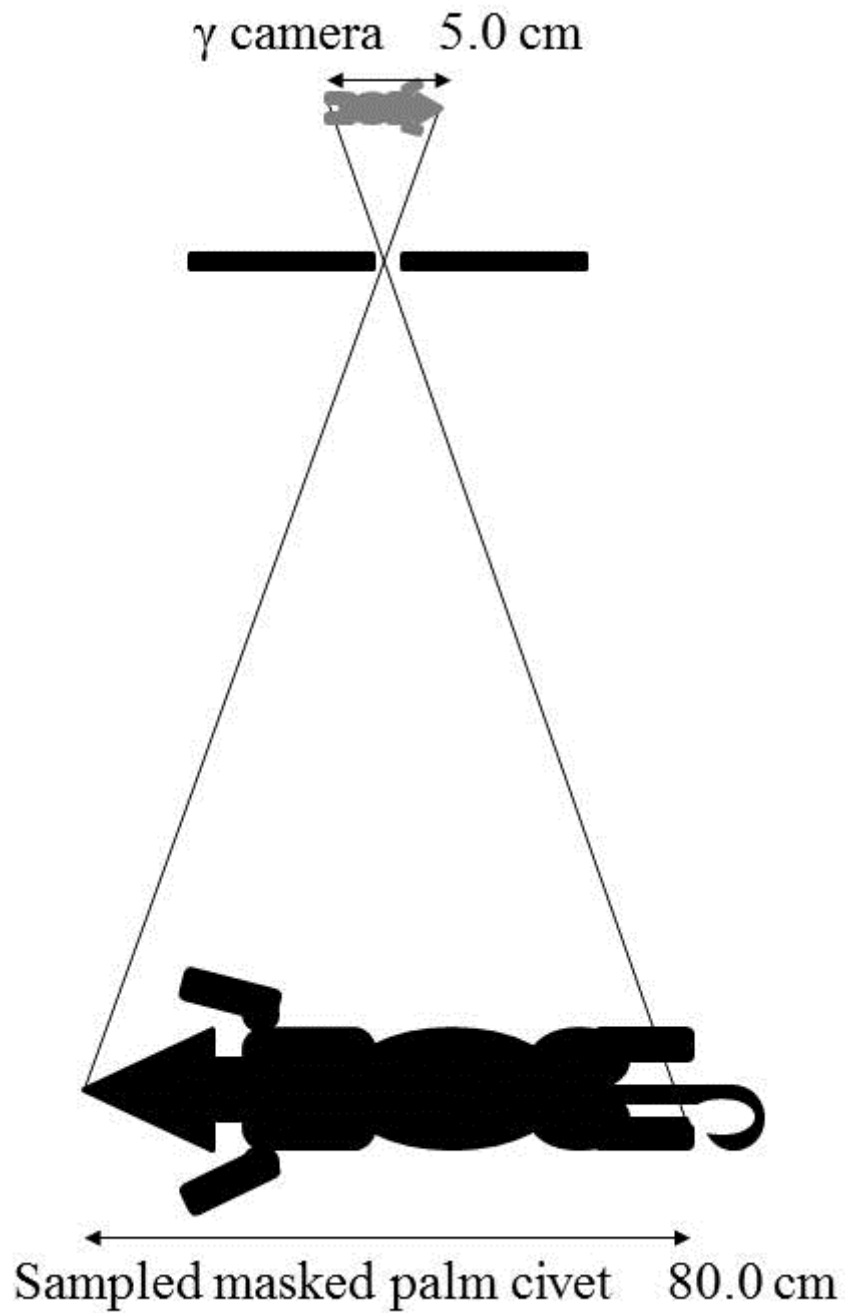


Fig. 9. Pattern diagram of magnification for imaging with pinhole collimator. The scintigram of the sampled masked palm civet was reduced to 1/16 on the γ camera.

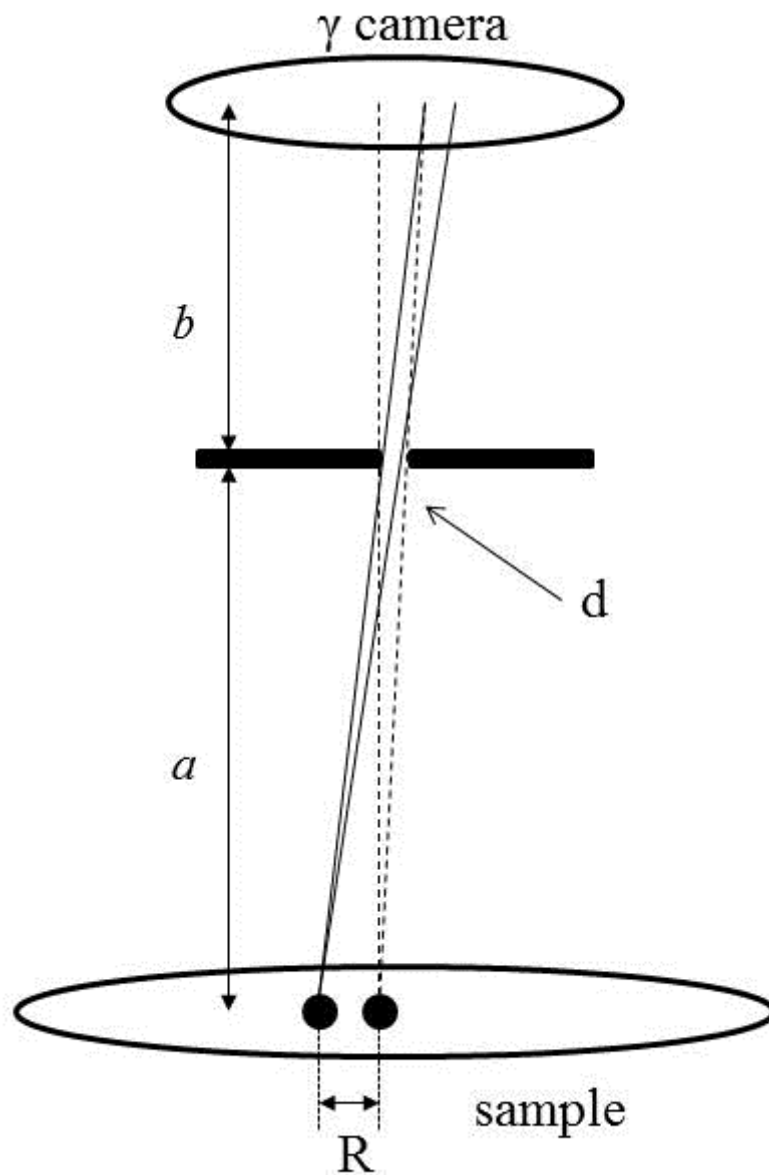


Fig. 10. Pattern diagram of the resolution of pinhole collimator.

a: distance from sample to pinhole collimator

b: distance from camera to pinhole collimator

d: diameter of pinhole

R: resolution of pinhole collimator

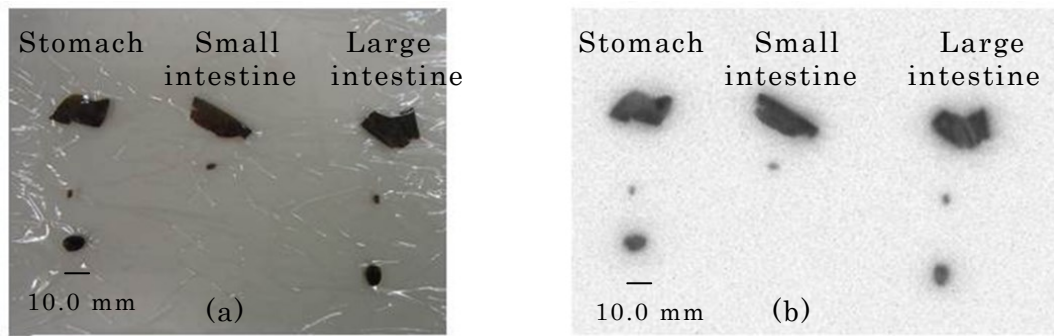


Fig. 11. Seeds were founded in stomach and intestine (a) and autoradiogram (b) of seeds exposed for 17 days. Every seed was visualized by autoradiogram.

Table 3. Actual and depicted on autoradiogram (ARG) hair shaft length of vibrissa of the masked palm civet.

	Actual hair shaft length (mm)	ARG-depicted hair shaft length (mm)
a (control)	92.6	Not depicted
b (control)	71.8	Not depicted
c (control)	69.4	Not depicted
d (sampled)	87.3	62.3
e (sampled)	93.7	57.3
f (sampled)	97.5	65.1

Table 4. Actual and depicted on autoradiogram (ARG) hair shaft length of mane of the wild boar.

	Actual hair shaft length (mm)	ARG-depicted hair shaft length (mm)
a (sampled)	116.2	55.3
b (sampled)	136.4	78.2
c (sampled)	117.8	51.1

Table 5. Radioactive concentration in the wild masked palm civet* which was exposed within the planned evacuation zone by the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident

Organs	¹³⁴ Cs (0.605 MeV)	¹³⁷ Cs (0.662 MeV)	⁴⁰ K (1.4 MeV)
whole head	3.7	7.8	< 0.1
Heart	5.4	11.6	< 0.1
Lung	8.4	18.8	0.1
Liver	8.0	18.0	0.1
Intestine	13.7	29.7	0.2
Muscle	8.0	16.1	0.1

(kBq/kg)

* Calculated value with physical half life** when the wild masked palm civet was started imaging by the gamma camera (5 Feb 2013)

**Physical half life: ¹³⁴Cs 2 years, ¹³⁷Cs 30 years, ⁴⁰K 1.248×10⁹ years

第4章 ベントナイトの安定同位体 Cs 吸収抑制の子ウシを用いた基礎的検討

1. 背景

第1～3章において放射性同位元素に汚染された環境で生育していた動物の放射性 Cs の内部汚染が示された。そして、汚染経路が経口である可能性が高いと考えられた。そこで、放射性同位元素汚染地域で飼育される家畜が経口摂取する放射性 Cs の吸収を抑制することで、放射性 Cs の内部汚染の抑制が可能と考えた。これまでに、1986年のチェルノブイリ原子力発電所放射性同位元素漏れ事故後の家畜に対する放射性 Cs の吸着剤として、プルシアンブルー、ゼオライトおよびカオリナイトといった Cs 吸着物質の経口投与が報告されている(4, 21)。そこで、カビ毒吸着飼料としてすでに市販されているベントナイト飼料に着目した(37)。

ベントナイトは、モンモリロナイトを主成分とする粘土鉱物で、モンモリロナイトの結晶構造の層間の陽イオンと Cs⁺ が置換することが知られている(35)。このことから、放射性同位元素汚染地域で飼育される家畜の内部汚染を抑制する方法として、飼料にベントナイトを配合して給餌し、放射性 Cs の吸収を抑制することが有効と考えた。しかしながら、非密封の放射性 Cs の取扱は、「放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法律」の規制を受け、放射線管理区域の中で行わなければならない。そこで、安定同位体の Cs およびベントナイトを子ウシに28日間経口投与し、ベントナイトの Cs の体内移行の抑制効果について基礎的な検討をした。

2. 材料および方法

2.1. 動物

ホルスタイン種の子ウシ 6 頭（雄 2 頭，フリーマーチン 4 頭，平均 38 日齢，平均体重 50.3 kg）を用いた。子ウシは，帯広市川西農業協同組合より購入した。

2.2. 試験物質

安定同位体 Cs には，cesium chloride (CsCl, 和光純薬工業株式会社，大阪) を用いた。

Cs 吸着物質には，カビ毒吸着飼料として市販されているベントナイト (AB20, バイエル薬品株式会社，大阪) を用いた。

2.3. 実験方法

子ウシは，1 頭ずつ個別に飼育し，1 週間馴化した。28 日間の実験期間中，水は自由飲水とし，CsCl (3.0 mg/kg/day, Cs として 2.4 mg/kg/day, ^{137}Cs として 768 GBq 相当) を溶解した人工乳 (ミルソフト，株式会社科学飼料研究所，東京) を朝夕の 2 回各 2ℓ ずつ哺乳した。試験群は，CsCl に加えベントナイト (0.5 w/v%) を懸濁した投与群 (n=3) と CsCl のみの対照群 (n=3) の 2 群とした。なお，CsCl の投与量は，予備検討で誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS, inductively coupled plasma mass spectrometry, ICP-MS 7500CS, アジレントテクノロジー社，東京) で，赤血球から検出可能な濃度を求め設定した。また，ベントナイトは，カビ毒吸着を目的とした標準的な投与量 (0.5 w/v%) を採用した。

実験開始 0, 1, 2, 3, 7, 14, 21 および 28 日の計 8 回，朝哺乳後に採血を行い，全血球算定は，白血球数，赤血球数，ヘモグロビン濃度，

ヘマトクリット，平均赤血球容積，平均赤血球ヘモグロビン量，平均赤血球ヘモグロビン濃度および血小板数，血清生化学検査は，血清総蛋白，アルブミン，アスパラギン酸アミノトランスフェラーゼ，尿素窒素，クレアチニン，カルシウム，無機リンおよびマグネシウムの測定を実施した。

投与最終日の朝哺乳および採血後，帯広畜産大学健体解剖室にて安楽殺（ペントバルビタール，ソムノペンチル R，共立製薬株式会社，東京，150 mg/kg，IV）を行い，骨格筋，心臓，肝臓，腎臓および直腸内糞便を採取した。採取した組織および採血 8 回分の血液の Cs 濃度を ICP-MS により測定した。その後，血液中 Cs 濃度およびヘマトクリット値から，血球中 Cs 濃度を算出した。計算値は，平均値±標準偏差で表し，n=3 であるため統計解析は行わなかった。

本実験プロトコルは，国立大学法人帯広畜産大学動物実験委員会に承認された（第 24-67）。

3. 結果

血球中 Cs 濃度の平均値は，実験開始 1，2，3，7 および 14 日において，対照群に比べ，投与群で低い値を示し，21 日以降は，ほぼ同じ値を示した（Fig. 12）。一方，骨格筋，心臓，肝臓，腎臓および糞便中の Cs 濃度平均値は，いずれも投与群が対照群よりも高い値を示した（Fig. 13）。

なお，実験期間中，一般状態の異常は観察されず，全血球算定および血清生化学的検査においても，投与群および対照群との間に顕著な値の差は認められなかった。

4. 考察

原子炉の核分裂で生成された放射性 Cs と安定同位体 Cs は、化学的には同じ元素であるため、放射線を放出しない安定同位体の CsCl 試薬を実験に使用した。血液、骨格筋、心臓、肝臓、腎臓および糞便中の Cs 濃度は ICP-MS で測定したが、いずれのサンプルからも測定が可能であった。今回の実験における骨格筋への Cs の移行係数は、 $F_r = 0.15-0.18 \text{ day/kg}$ で、放射性 Cs で報告 (9) されている範囲内であり ($F_r = 0.04-0.56 \text{ day/kg}$)、CsCl が放射性 Cs と同じ挙動を示したと考えられた。したがって、放射線管理区域外であっても、安定同位体 Cs を用いて実験を行うことで、得られた結果を放射性 Cs の体内移行の抑制研究に外挿できると推察された。

そして、血球中 Cs 濃度の平均値は、投与 14 日まで投与群で低値を、21 日以降はほぼ同じ値を示した。このことは、21 日以降、投与群と対照群は、いずれも平衡状態に達していたと考えられた。このことから、14 日以前で臓器を採取すれば、ベントナイトによる Cs の体内移行の抑制効果を示したと考えられた。糞便中 Cs 濃度の平均値は、投与群が対照群よりも高値を示し、ベントナイトが Cs を吸着し、糞中に効率よく排泄する可能性が示唆された。一方、骨格筋、心臓、肝臓および腎臓の Cs 濃度の平均値においても投与群が高値を示した。この原因は不明であり、今後動物数を増やして、さらなる検討が必要である。さらに、肥育ウシは粗飼料と配合飼料によって飼養される。今回は、哺乳子ウシを使用したため、消化管内の pH、消化管内のベントナイトと Cs の濃度および滞留時間の違いによってベントナイトと Cs との吸着効果が異なった可能性がある。そこで、今後、成牛で追加試験を行う予定である。

なお、子ウシにおけるベントナイトの安全性に関しては、投与に関連した異常症状、全血球算定および血清生化学検査に影響を認めなかった。カビ毒吸着飼料は、生体のミネラルを吸着するため、低カルシウム血症や低マグネシウム血症発症の可能性について報告があるが(34)、今回の実験に使用したベントナイトの投与量(0.5 w/v%)では、動物に有害な作用は発現しないと考えられた。

今回、血球中 Cs 濃度の平均値が実験開始 14 日まで投与群で低値を示したことから、ベントナイトによる Cs 体内移行の抑制効果の可能性が示唆された。今後、CsCl の用量を減量するか、ベントナイトの投与量を増量することで、ベントナイトの効果を明確化できると考えられた。なお、牛肉の放射性 Cs 濃度基準値(100 Bq/kg)を全て ^{137}Cs と仮定した場合、1 kg あたりの Cs としての質量は、わずか 0.03 ng 程度である。この値は、骨格筋の Cs 濃度の 1×10^9 分の 1 以下と計算される。ことから、汚染地域での家畜飼育に当たり、0.5 w/v%のベントナイトによる放射性 Cs の吸着効果は十分に期待できると考えられた。

小括

基礎的検討として、安定同位体 Cs を用いて Cs 吸着能を持つベントナイトの Cs の体内移行の抑制効果について、ベントナイト 0.5w/v%を人工乳に懸濁して投与した子ウシで検討した。その結果、血球中の Cs 濃度の平均値は投与後 14 日まで低値を示した。このことから、ベントナイトによる Cs の体内移行の抑制効果の可能性が示唆された。

図表

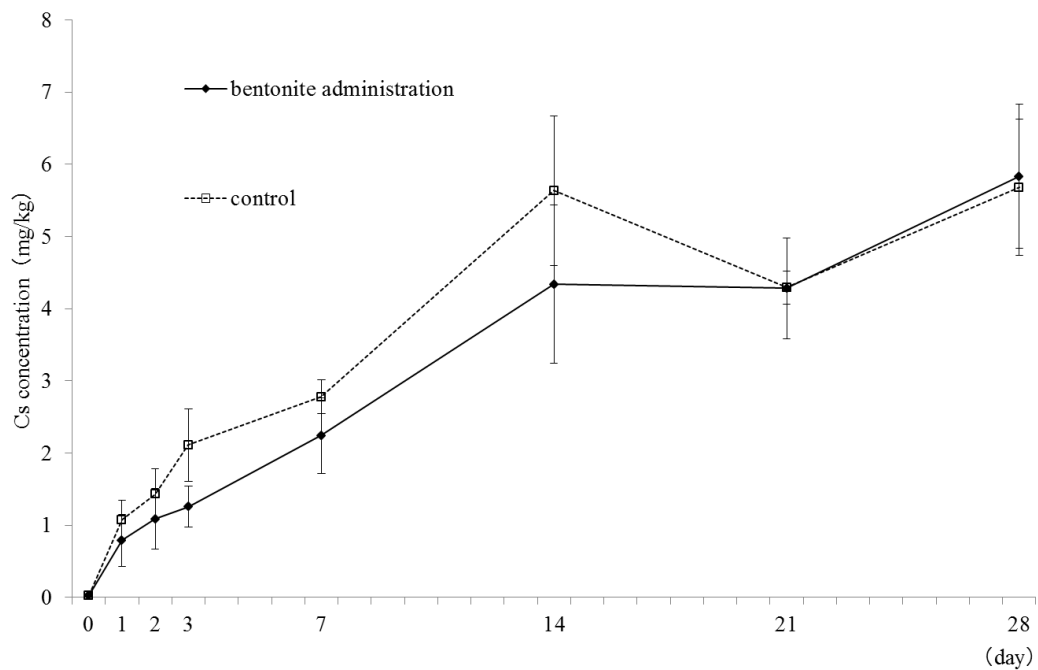


Fig. 12. Changes in time course of Cs concentration in blood cells of calves given bentonite (n=3) and feed only (control, n=3) for 28 days.

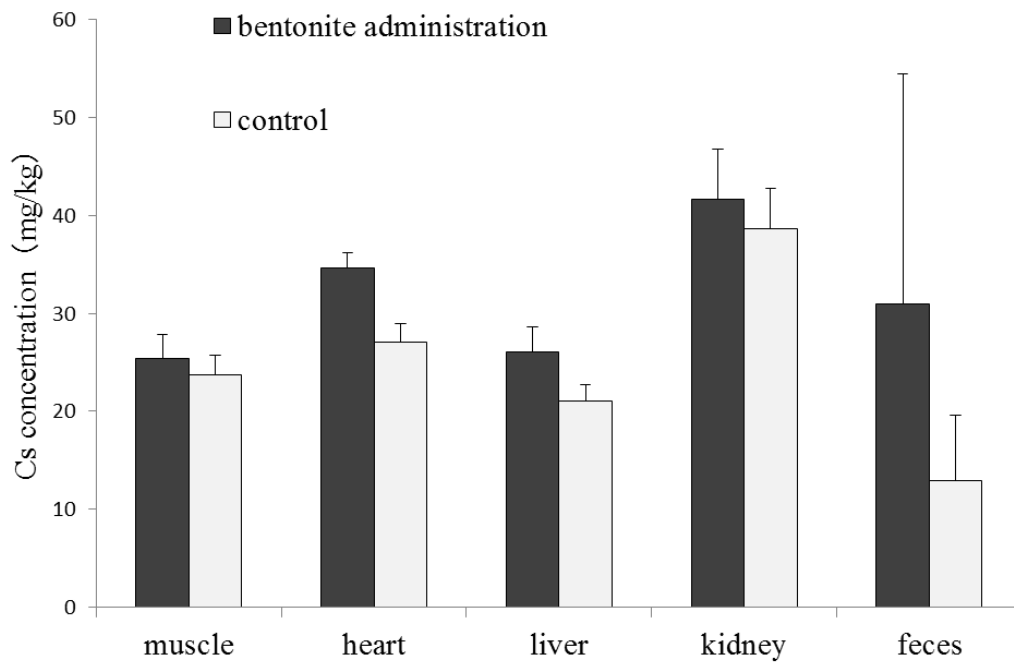


Fig. 13. Cs concentration in organs and feces of calves given bentonite (n=3) and feed only (control, n=3) for 28 days.

第5章 ベントナイトの放射性 Cs 吸収抑制についてのニワトリを用いた検証

1. 背景

第4章において、ベントナイトが安定 Cs の血球への移行を抑制したことから、放射性 Cs の吸収も抑制する可能性が示された。そこで、計画的避難区域で、ベントナイトをニワトリに経口投与し、ベントナイトの放射性 Cs の吸収の抑制効果について検証した。

2. 材料および方法

検討1 ベントナイトの混餌投与による放射性 Cs 吸収抑制についてのニワトリを用いた検証

2.1. 動物

604日齢の白色レグホン・ジュリア（雌）2羽をベントナイト投与個体および対照個体に分けて使用した。

2.2. 試験物質

Cs 吸着物質には、カビ毒吸着飼料として市販されているベントナイト（AB20）を用いた。

2.3. 実験方法

計画的避難区域に指定されている福島県飯舘村に鶏舎を設置し、ベントナイト投与個体および対照個体、それぞれを個別ケージ（縦 45×横 45×高さ 50 cm）の床に汚染腐植土を 6cm 散布し、28日間飼育した。散布した汚染腐植土の放射性 Cs 濃度は、 ^{134}Cs および ^{137}Cs が、それぞれ

れ 11,084.3 および 18,622.9 Bq/kg であった。対照個体には、ニワトリ用配合飼料（アップ 15.5, JA 全農北日本くみあい飼料株式会社, 宮城）120 g を, ベントナイト投与個体には, 配合飼料にベントナイトを 0.6 g（0.5%, カビ毒吸着を目的とした標準的な投与量）混餌投与した。なお, 飼育期間中, 汚染されていない水道水（検出限界以下）を自由飲水とした。さらに, 28 日間飼育後に動物を安楽殺し, 骨格筋（モモ）を採取した。また, 飼育期間中に産卵された卵を採取した。

放射性 Cs 濃度は, 各ニワトリの殻を除いた卵および骨格筋を試料とし, 樹脂製容器に入れ, Ge 半導体検出器（GMX-10180）で測定レンジを 0.03-1.5 MeV とし, 43,200 秒間測定した。得られた γ 線スペクトルで ^{134}Cs および ^{137}Cs を同定し, 物理学的半減期補正して放射性 Cs 濃度を算出した。産卵された各週で Student's の両側 t 検定を行い, $p < 0.05$ で有意差ありと判断した。また, 卵の放射性 Cs 濃度と飼育日数で近似式を求めた。

本実験プロトコルは, 国立大学法人帯広畜産大学動物実験委員会に承認された（第 24-141）。

検討 2 ベントナイトの飼料配合割合の違いによる放射性 Cs 吸収抑制についてのニワトリを用いた検証

2.1. 動物

バブコック B400（雌）をベントナイト 0.5% 投与群, ベントナイト 5.0% 投与群および対照群でそれぞれ 5 羽ずつ使用した。実験開始時の日齢は 700 日であった。

2.2. 試験物質

Cs 吸着物質には、カビ毒吸着飼料として市販されているベントナイト（AB20）を用いた。

2.3.実験方法

ベントナイト 0.5%投与群（n=5）、ベントナイト 5.0%投与群（n=5）および対照群（n=5）、それぞれを個別ケージ（縦 45×横 45×高さ 50 cm）で飼育し、床には汚染腐植土を 6 cm 散布した。なお、ニワトリが持続的に汚染腐植土を摂取できるように、毎日汚染腐植土を追加散布した。ニワトリは、計画的避難区域に指定されている福島県飯舘村に鶏舎を設置し、10 日間飼育された。対照群には、ニワトリ用配合飼料 120 g を、ベントナイト 0.5%投与群には、配合飼料にベントナイト 0.6 g(0.5%、カビ毒吸着を目的とした標準的な投与量)、ベントナイト 5.0%投与群には、配合飼料にベントナイト 6.0 g（標準的な投与量の 10 倍）を混餌投与した。また、放射性同位元素で汚染されていない水道水（検出限界以下）を自由飲水とした。そして、3 日間の馴化飼育後、4 日目以降 7 日間に産卵された卵を採取した。また、10 日間の飼育後に動物を安楽殺し、骨格筋（モモ）を採取した。

放射性 Cs 濃度は、個体別に殻を除いた卵および骨格筋を容器に納めて試料とし、Ge 半導体検出器（GMX-10180）で測定レンジを 0.03-1.5MeV とし、43,200 秒間測定した。得られた γ 線スペクトルで ^{134}Cs および ^{137}Cs を同定し、物理学的半減期補正して放射性 Cs 濃度を算出した。そして、卵および骨格筋の放射性 Cs 濃度について、各群で Mann-Whitney の両側 U 検定を行い、 $p < 0.05$ で有意差ありと判断した。

本実験プロトコルは、国立大学法人帯広畜産大学動物実験委員会に承認された（第 25-94）。

3. 結果

検討1では、実験期間（28日間）中、対照個体から21個、ベントナイト投与個体から17個の卵を採取した。各週の卵の放射性Cs濃度は、2週目に両個体とも低下して、4週目に対照個体（ 16.6 ± 2.3 Bq/kg, $n=6$ ）およびベントナイト投与個体（ 12.1 ± 1.0 Bq/kg, $n=6$ ）で有意差が認められた（Fig. 14）。また、28日間飼育後の骨格筋の放射性Cs濃度は、ベントナイト投与個体および対照個体で、それぞれ75.1および102.4 Bq/kgであった。

検討2では、実験期間（10日間）中、ベントナイト0.5%投与群から25個、ベントナイト5.0%投与群から16個および対照群から37個の卵を採取した。卵の放射性Cs濃度は、ベントナイト0.5%投与群で 4.1 ± 2.4 Bq/kg、ベントナイト5.0%投与群で 8.1 ± 4.6 Bq/kgおよび対照群で 3.5 ± 0.7 Bq/kgで、ベントナイト0.5%投与群の平均値が対照群の1.2倍およびベントナイト5.0%投与群の平均値が対照群の2.3倍を示したものの、有意差は認められなかった（Fig. 15）。また、10日間飼育後の骨格筋の放射性Cs濃度は、ベントナイト0.5%投与群（ 13.3 ± 3.8 Bq/kg）が対照群（ 19.4 ± 7.8 Bq/kg）よりも有意に低かったが、ベントナイト5.0%投与群（ 37.6 ± 26.2 Bq/kg）の平均値は、対照群の1.9倍の高値を示したものの、有意差は認められなかった（Fig. 16）。

4. 考察

鳥類は砂嚢に砂を溜める習性を有するため、敷料の汚染腐植土をついばむことで、放射性同位元素を経口的に取り込むことが予想された。

検討1で投与1週目の卵に放射性Csが検出されたことから、汚染腐植土から放射性Csが吸収され、速やかに卵に移行したと考えられた。ま

た、両個体とも2週目の卵の放射性Cs濃度が低下した。この原因として、2週目にキツネが鶏舎に侵入したストレスでニワトリの食欲が低下し、汚染腐植土の摂取量も低下したことで、放射性Csの吸収が減少したと考えられた。このことから、卵に移行する放射性Csの量は、日々の摂取量が関与すると考えられた。また、4週目の卵の放射性Cs濃度がベントナイト投与個体で有意に低かったことおよび4週目の骨格筋の放射性Cs濃度がベントナイト投与個体で対照個体よりも23%低い値を示した原因として、吸収された放射性Csが体内に蓄積したことおよびベントナイトが放射性Csの吸収を抑制し排泄を促進したことが推察された。なお、各個体で汚染腐植土の摂取量を計測しなかったため、正確な放射性Cs移行率は不明である。そこで、放射性同位元素濃度に換算して、汚染腐植土に含まれた放射性Csが卵に0.06%、骨格筋に0.3%程度移行したと計算された。移行割合が卵よりも骨格筋で高かった理由として、飼育期間中に摂取された放射性Csが骨格筋に蓄積したためと考えられた。ただし、卵の放射性Cs濃度の平均値が1週目で最も高かったことから、床に散布した汚染腐植土の上にニワトリの排泄物が堆積して汚染腐植土の摂取機会が減少したか、飲水時に溢した水が汚染腐植土の放射性Csを洗い流して放射性Cs濃度を徐々に低下させた可能性が除外できない。また、検討1では、各1羽であったため、個体差の影響を否定できない。そこで、動物数を増やし、頻繁に汚染腐植土の追加散布を行い、ベントナイトを増量して、ベントナイトの放射性Cs吸収抑制効果を検討2で検証した。ベントナイト0.5%投与群で骨格筋の放射性Cs濃度が有意に低下したが、ベントナイト5.0%投与群で卵および骨格筋の放射性Csの濃度が高値を示した。これまでに、ベントナイトが、餌に含まれるミネラルを吸着し、吸収抑制して、低カルシウム血症や低

マグネシウム血症発症する可能性について報告されている(34)。また、ミネラルの不足した動物が土を摂取して、土の中から不足したミネラルを補給することが報告されている(25)。これらのことから、ベントナイト5.0%投与群で卵および骨格筋の放射性Cs濃度が高値を示した原因として、ベントナイトが飼料中のミネラル(K^+ , Ca^{2+})と結合して吸収を抑制し、不足したミネラルを補給するために汚染腐植土の摂取量が増加し、放射性Csの摂取量も増加して放射性Cs濃度が上昇したと推察された。

以上、卵の放射性Cs濃度が4週目にベントナイト投与個体で有意に低かったことから、放射性同位元素汚染した環境で飼育される家畜にベントナイトの経口投与が、放射性Csの生体への吸収を抑制する可能性が示唆されたが、ベントナイト5.0%投与群で卵および骨格筋の放射性Cs濃度が上昇したことから、ベントナイトの放射性Cs吸収抑制には、ベントナイト投与量の至適濃度があることが考えられた。

なお、0.2 m²の範囲(約30,000 Bq/kgの汚染腐植土)の環境下で28日間飼育された各個体の卵およびベントナイト投与個体の骨格筋の放射性Cs濃度は2012年4月1日設定の食品・基準値(100 Bq/kg)を下回った。

小括

計画的避難区域でニワトリにベントナイトを混餌投与して殻を除いた卵と骨格筋の放射性 Cs 濃度を測定した。ベントナイトを 0.5%投与して 28 日間飼育されたニワトリは、4 週目に産卵した卵の放射性 Cs 濃度が有意に低い値を示した。また、28 日間飼育後の骨格筋の放射性 Cs 濃度も対照個体の 23%低い値を示した。そこで、ベントナイトの投与量を 0.5%および 5.0%として 10 日間飼育し、殻を除く卵と骨格筋の放射性 Cs 濃度を測定した。採卵期間中に産卵された卵の放射性 Cs 濃度の平均値は、有意差が無いものの、対照群に比較してベントナイト 0.5%投与群で 1.2 倍、ベントナイト 5.0%投与群で 2.3 倍を示した。また、10 日間飼育後の骨格筋の放射性 Cs 濃度は、ベントナイト 0.5%投与群が対照群に比較して有意に低い値を示した。一方、ベントナイト 5.0%投与群は、有意差が無いものの、平均値で 1.9 倍を示した。

これらのことから、ベントナイトは、放射性同位元素汚染地域で飼育される家畜の放射性 Cs の吸収を抑制する可能性が示された。しかし、ベントナイトの放射性 Cs 吸収の抑制効果は、用量依存性を認めなかった。このことから、放射性 Cs 吸着を目的としたベントナイトの飼料添加には、至適投与量があると推察された。

図表

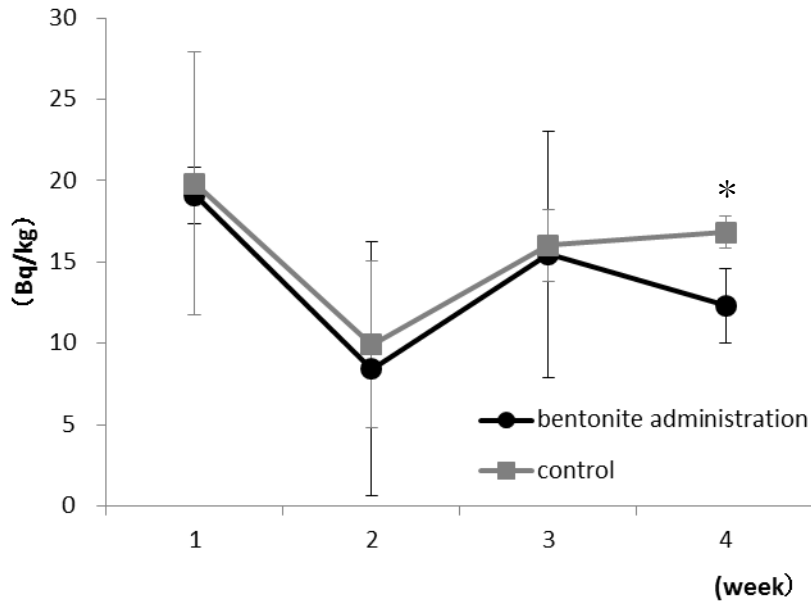


Fig. 14. Time courses of radioactive Cs concentration of eggs in hen given bentonite (n=6) or feed only (control, n=6) for 4 weeks. The radioactive Cs concentration in hen eggs were significantly different between bentonite administration and control at 4 weeks.

*: $p < 0.05$

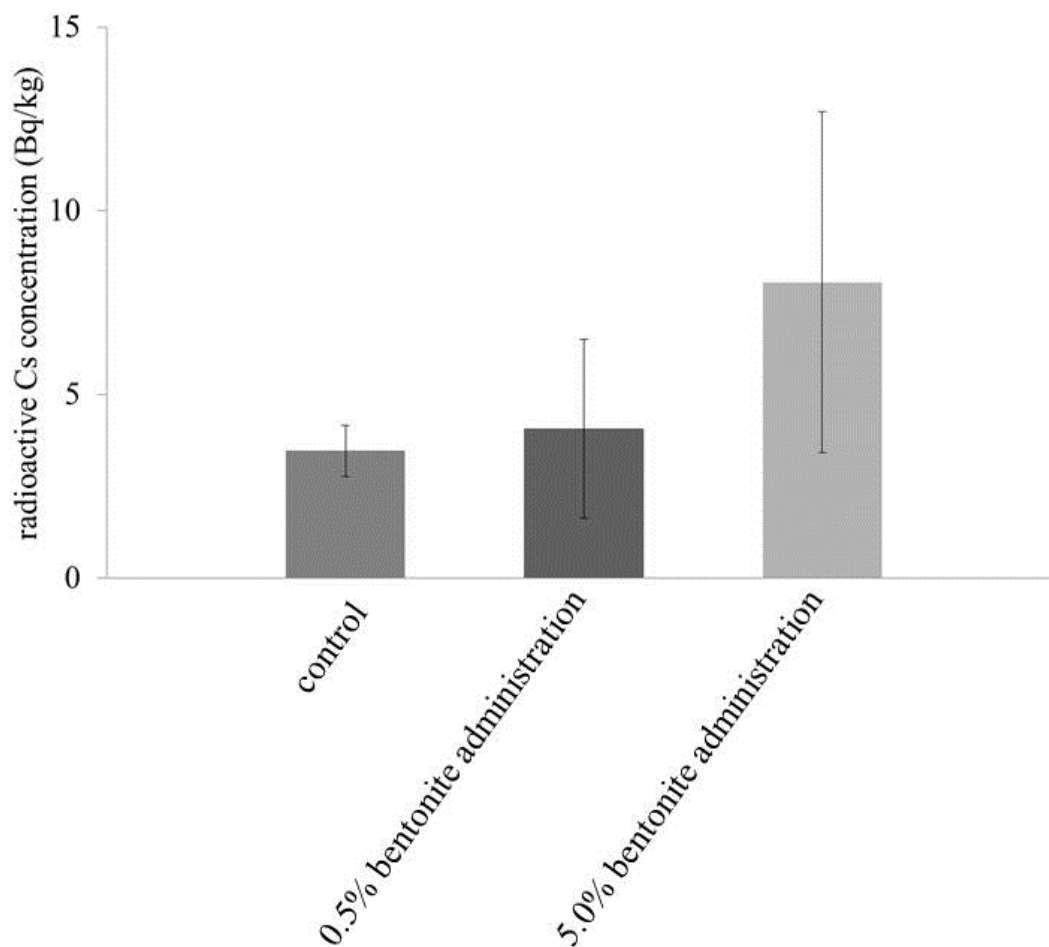


Fig. 15. Radioactive Cs concentration in hen eggs among 0.5% bentonite administration group (n=25), 5.0% bentonite administration group (n=16) and control group (n=37) for 7-days feeding. The average of radioactive concentration in 5.0% bentonite administration group hen eggs was the highest among the 3 groups. The average of radioactive Cs concentration in 0.5% bentonite administration group was lower than control group.

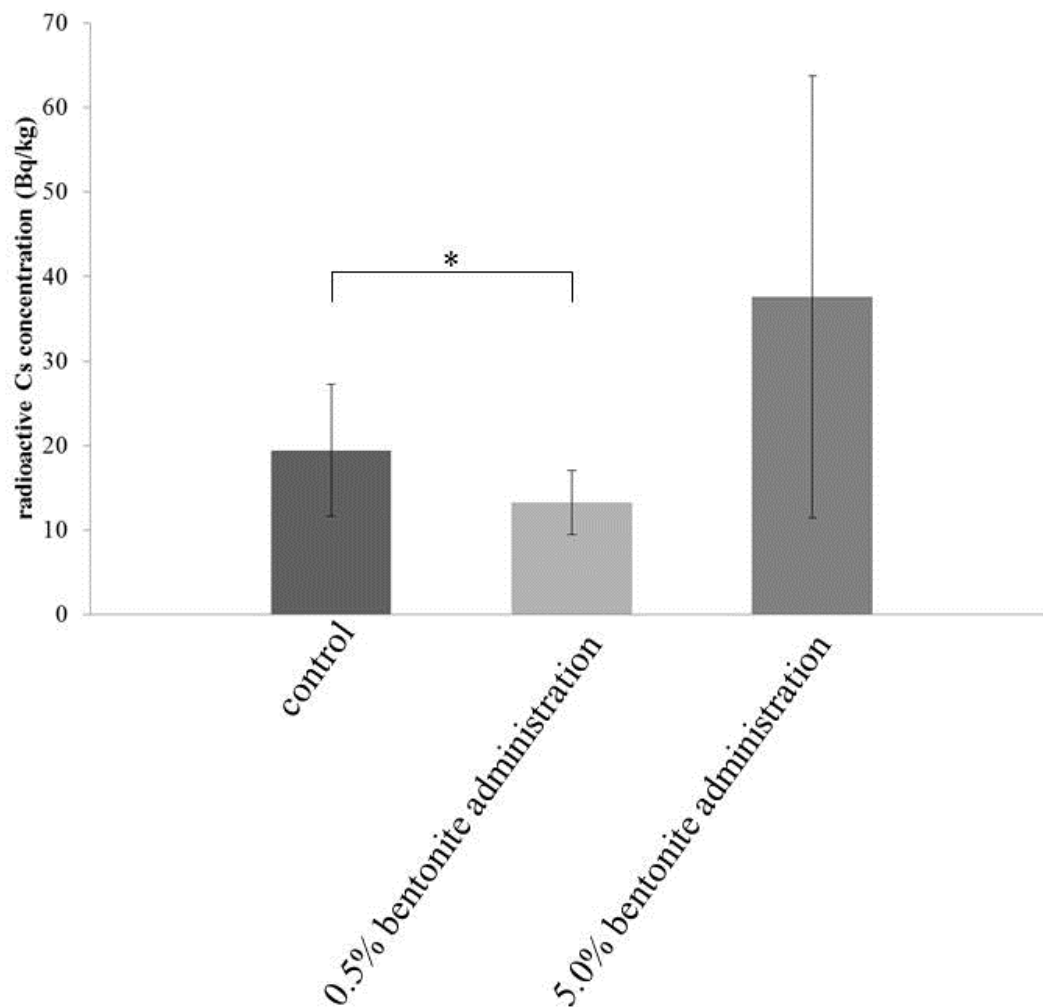


Fig. 16. Radioactive Cs concentration in hen muscles among 0.5% bentonite administration group (n=5), 5.0% bentonite administration group (n=5) and control group (n=5) after 10-days feeding. The radioactive Cs concentration of 0.5% bentonite administration group was significantly lower than control. The average of radioactive Cs concentration of 5.0% bentonite administration group was the highest among 3 groups.

*: $p < 0.05$

総括

2011年3月11日の東日本大震災に続発した津波で福島第一原子力発電所が被災し、放射性同位元素（RI）漏れ事故が発生した。漏洩したRIで汚染された農畜産物を摂取したヒトは、内部被曝による健康被害を起こす可能性があるため、農畜産物の放射性セシウム（Cs）汚染が深刻な問題となった。本研究では、RI汚染地域の動物の内部汚染を調査し、さらに、家畜の内部汚染を抑制する飼養法を検討した。

第1章では、家畜の内部汚染を把握するために、原子力発電所事故後（2011年4月10日）に福島第一原子力発電所から20 km圏内の養豚場で飼育されていたブタの血液および糞を採取し、ゲルマニウム（Ge）半導体検出器で放射能濃度を測定した。その結果、被検ブタの血餅から ^{134}Cs および ^{137}Cs 、糞から ^{131}I 、 ^{134}Cs および ^{137}Cs が検出された。このことから、原子力発電所20 km圏内で飼育されていたブタは、RIで内部汚染していたことが判明した。

第2章では、家畜の可食部筋肉の汚染を調べる目的で、福島第一原子力発電所から20 km圏内の養豚場で飼育されていたブタを調査した。被検ブタは、事故発生から17日後に清浄地域に移送され、清浄地域で41日間飼育された後に屠殺された。被検ブタの骨格筋および心臓の放射能濃度を、Ge半導体検出器を用いて測定したところ、骨格筋および心臓から ^{134}Cs および ^{137}Cs が検出された。また、被検ブタの骨格筋のオートラジオグラム（ARG）は、黒化度の高い画像を示した。さらに、ARGから求めたPSL/mm²値は、対照と比較して被検ブタで有意に高かった（ $p < 0.01$ ）。これらのことから、RI汚染地域で飼育されていたブタの可食部筋肉には、放射性Csが分布していたことが判明した。

第3章では、動物の体内被曝履歴を調べる目的で、計画的避難区域

で捕獲・回収した野生動物を調査した。計画的避難区域で回収したハクビシンの洞毛と捕獲したイノシシの鬣の ARG は異なるパターンを示したことから、内部被曝履歴の違いを画像化できる可能性が示唆された。さらに、小型 γ カメラを用いて、ハクビシンの ^{137}Cs シンチグラムを作成した。得られたシンチグラムは、Ge 半導体検出器で測定した ^{137}Cs の濃度分布と一致し、消化管内容物を含む腹部で最も高い密度を示した。これらのことから、内部被曝履歴を ARG およびシンチグラムで観察できる可能性が示唆された。

第 4 章では、家畜の内部汚染を抑制する飼養方法開発の基礎検討として、安定同位体 Cs を用いて、ベントナイトの Cs 吸収抑制効果について子ウシで検討した。試験群は、人工乳に安定同位体 Cs のみを添加した対照群 (n=3) および安定同位体 Cs に加えて 0.5%ベントナイトを添加した投与群 (n=3) とした。そして、28 日間飼育した子ウシの血液の Cs 濃度を誘導結合プラズマ質量分析法で測定したところ、14 日目まで投与群は対照群よりも低値を示した。このことから、ベントナイトは放射性 Cs の吸収抑制に利用できることが期待された。

第 5 章では、RI 汚染地域で飼育される家畜の放射性 Cs 吸収抑制について、ニワトリを用いて検証した。ニワトリは、対照個体およびベントナイトを 0.5%飼料に添加した投与個体とし、計画的避難区域で 28 日間飼育し、両個体の骨格筋および卵の放射性 Cs 濃度を Ge 半導体検出器で測定した。その結果、骨格筋の放射性 Cs 濃度は、投与個体が対照個体よりも 23%低値であった。さらに、4 週目に産卵された卵の放射性 Cs 濃度は、投与個体で有意に低かった ($p < 0.05$)。次に、試験群を対照群 (n=5)、0.5%ベントナイト投与群 (n=5) および 5.0%ベントナイト投与群 (n=5) とし、10 日間飼育した。各群の骨格筋および卵

の放射性 Cs 濃度を測定したところ、0.5%ベントナイト投与群の骨格筋の放射性 Cs 濃度が対照群に比較して有意に低下した ($p < 0.05$)。しかし、5.0%ベントナイト投与群の骨格筋および卵の放射性 Cs 濃度は、有意差は認められなかったものの、それぞれ対照群よりも高値を示した。このことから、放射性 Cs 吸収抑制を目的としたベントナイトの飼料添加量には、至適濃度が存在すると考えられた。以上、ベントナイトは、放射性 Cs の吸収を抑制する可能性が示唆された。今後 Cs 吸着物質を添加する飼養方法を大型家畜に応用することで、福島県の畜産再開が期待できると考えられた。

本研究で、RI 汚染地域の家畜および野生動物が放射性 Cs で内部汚染していたことを明らかにした。また、放射性 Cs の吸収をベントナイトで抑制できる可能性が示唆された。畜産物の RI 汚染に関して得られた知見は、食の安心・安全確保および福島県の畜産復興に活用できると考えられた。

謝辞

本稿を終えるにあたり，本論文のご高閲およびご指導を賜りました帯広畜産大学山田一孝教授に謹んで感謝の意を表します。

本論文作成に対し，ご助言，ご指導頂きました岩手大学古濱和久教授，帯広畜産大学佐々木直樹准教授，東京農工大学下田実教授ならびに岐阜大学海野年弘教授にお礼申し上げます。また，ARG作成で技術支援いただいた愛知工業大学森千鶴夫教授，対照ハクビシンの洞毛を提供いただいた帯広畜産大学佐々木基樹准教授にお礼申し上げます。

さらに， γ 線測定でご協力いただいた富士フイルム RI ファーマ株式会社ならびに富士フイルム RI ファーマ株式会社澤野海太様，シンチグラム作成でご協力いただいたエスペックテストシステム株式会社ならびにエスペックテストシステム株式会社増野浩幸様ならびに福島県飯舘村で畜産復興を願うご協力いただいた菅野宗夫様と関係者の皆様に謹んで感謝いたします。

参考文献

- 1) Abend, M., Pfeiffer R. M., Ruf, C., Hatch, M., Bogdanova, T. I., Tronko, M. D., Hartmann, J., Meineke, V., Mabuchi K. and Brenner, A. V. (2013). Iodine-131 dose-dependent gene expression: alterations in both normal and tumor thyroid tissues of post-Chernobyl thyroid cancers. *Br. J. Cancer.* 109, 2286-2294.
- 2) Adams, B. J., Holloway, E. C., George, F. and Quig, D. (2006). Analyses of toxic metals and essential minerals in the hair of Arizona children with autism and associated conditions, and their mothers. *Biol. Trace Elem. Res.* 238, 193-209.
- 3) Baverstock, K., Egloff, B., Pinchera, A., Ruchti, C. and Williams, D. (1992). Thyroid cancer after Chernobyl. *Nature.* 359, 21-22.
- 4) Birgitta, Å., Sevald, F. and Gustaf, Å. (1990). Zeolite and bentonite as caesium binders in reindeer feed. *Rangifer.* 3, 73-82.
- 5) Bleuer, JP., Averkin, YI. and Abelin, T. (1997). Chernobyl-related thyroid cancer: what evidence for role of short-lived iodines? *Environ. Health Perspect.* 105, 1483-1486.
- 6) Campbell, D. J. (1985). Hair analysis: a diagnostic tool for measuring mineral status in Humans. *J. Orthomol. Psychiatry.* 14, 276-280.
- 7) Campion, D. S. (1974). Resting membrane potential and ionic distribution in fast- and slow-twitch mammalian muscle. *J. Clin. Invest.* 54, 514-518.
- 8) Cerling, T. E. and Viehl, K. (2004) Seasonal diet changes of the forest hog (*Hylochoerus meinertzhageni* Thomas) based on the carbon isotopic composition of hair. *African J. of Ecol.* 42, 88-92.

- 9) Coughtrey, P. J. (1990). Radiation protection radioactivity transfer to animal products. *In: Report EUR 12608 EN*, pp. 34-41. Commission of the European Communities. Brussels, Belgium.
- 10) Dvořák, P., Snášel, P. and Beňová K. (2010). Transfer of Radiocesium into wild boar meat. *Acta. Vet. Brno.* 79, S85-S91.
- 11) Fournie-Chambrillon, Ch., Maillard, D. and Fournier P. (1995). Diet of the wild boar (*Sus scrofa L.*) inhabiting the Montpellier garrigue. *IBEX J. Mt. Ecol.* 3, 174-179.
- 12) 藤井博史, 梅田 泉, 小島良紀 (2008). ライフサイエンスのためのアイソトープ測定機器 (第五シリーズ) “ライフサイエンスにおけるイメージング”Ⅷ. SPECT 技術を用いた小動物イメージング. *Radioisotopes.* 57, 219-232.
- 13) 福本 学 (2012). 福島第一原子力発電所事故に伴う被災家畜の臓器別放射性セシウム濃度. *Isotope News.* 696, 10-12.
- 14) Gonzalez, L. A., Li. H., Mitch, M., Tolk, N. and Duggan, M.D. (2002). Energy response of an imaging plate exposed to standard beta sources. *J. Appl. Radiat. Isot.* 57, 875-882.
- 15) Hashimoto, K., Tanoi, K., Sakurai, K., Iimoto, T., Nogawa, N., Higaki, S., Kosaka, N., Takahashi, T., Enomoto, Y., Onoyama, I., Li, J. Y., Manabe, N. and Nakanishi, T. (2011). The radioactivity measurement of milk from the cow supplied with the meadow grass grown in Ibaraki-prefecture, after the nuclear power plant accident. *Radioisotopes.* 60, 335-338.
- 16) Hiron, C. A., Schell, M. D. and Aubin, J. S. D. (2001). Growth rates vibrissae of harbor seals (*Phoca vitulina*) and Steller sea lions. *Canadian*

- J. Zool.* 79, 1053-1061.
- 17) Hood, S. L. and Comar, C. L. (1975). Metablism of cesium-137 in rats and farm animals. *Arch. Biochem. Biophys.* 45, 432-433.
- 18) Ibrahim, L. and Wright, A. E. (1975). The growth of rats and mice vibrissae under normal and some abnormal conditions. *J. Embryol. Exp. Morphol.* 33, 831-844.
- 19) Jandl, J. and Sladovnik, K. (1993). Transfer of radiocesium into rabbit meat and its excretion. *Vet. Med. (Praha)*. 38, 427-432.
- 20) Kazakov, V., Demidchik, EP. and Astakhova, LN. (1992). Thyroid cancer after Chernobyl. *Nature*. 359, 21-22.
- 21) Leitgeb, R. and Ratheiser, N. (1990). Use of different substances as decontaminators of ^{137}Cs and ^{134}Cs in bulls, cows and calves. *Environ. Contam. Follow. Major. Nucl. Accied.* 2, 234-236.
- 22) Lechner, W., Brunner, P., Bergant, A., Pastner, E. and Müller, D. (1997). [10 years after Chernobyl—radioactivity of mother's milk—measurements from Tirol, Tibet and Nepal]. *Wien. Klin. Wochenschr.* 109, 884-886.
- 23) Ling, G. N. (1977). K^+ localization in muscle cells by autoradiography, and identification of K^+ adsorbing sites in living muscle cells with uranium binding sites in electron micrographs of fixed cell preparations. *Physiol. Chem. Phys.* 9, 319-327.
- 24) Lyne, A. G., Downes, A. M. and Chase, H. B. (1974). Growth of vibrissae in the marsupial *Trichosurus vulpecula*. *Aust. J. Zool.* 22, 117-129.
- 25) Matsubayashi, H., Lagan, P., Majalap, N., Tangah, J., Sukor, J. R. A.

- and Kitayama, K. (2007). Importance of natural licks for the mammals in Bornean inland tropical rain forests. *Ecological Research*. 22, 742-748.
- 26) McCarthy, M. (1997). Nuclear bomb test fallout may cause many US cancers. *Lancet*. 350, 415.
- 27) Miki, A., Katagi, M. and Tsuchihashi, H. (2003). Recent improvements in forensic hair analysis for illicit drugs. *J. Health Sci.* 49, 325-332.
- 28) Morimura, K., Romanenko, A., Min, W., Salim, EI., Kinoshita, A., Wanibuchi, H., Vozianov, A. and Fukushima, S. (2004). Possible distinct molecular carcinogenic pathways for bladder cancer in Ukraine, before and after the Chernobyl disaster. *Oncology Reports*. 11, 881-886.
- 29) Mraz, R. F., Jhonson. M.A. and Patrick, H. (1957). Metabolism of cesium and potassium in swine as indicated by cesium-134 and potassium-42. *J. Nutr.* 63, 541-548.
- 30) Nesterenko, A. V., Nesterenko, V. B. and Yablokov, A. V. (2009). 12. Chernobyl's radioactive contamination of food and people. *Ann. N. Y. Acad. Sci.* 1181, 289-302.
- 31) Romanenko, A., Kakehayashi, A., Morimura, K., Wanibuchi, H., Wei, M., Vozianov, A., and Fukushima, S. (2009). Urinary bladder carcinogenesis induced by chronic exposure to persistent low-dose ionizing radiation after Chernobyl accident. *Carcinogenesis*. 30, 1821-1831.
- 32) Sansom, B. F. (1966). The metabolism of caesium-137 in dairy cows. *J. Agric. Sci.* 66, 389-393.
- 33) Sansom, B. F. (1989). An assessment of the risk to the health of grazing

- animals from the radioactive contamination of pastures. *Br. Vet. J.* 145, 206-211.
- 34) Schell, T. C., Lindemann, M. D., Kornegay, E. T. and Blodgett, D. J. (1993). Effects of feeding aflatoxin-contaminated diets with and without clay to weanling and growing pigs on performance, liver function, and mineral metabolism. *J. Anim. Sci.* 71, 1209-1218.
- 35) Staunton, S. and Roubaud, M. (1997). Absorption of ^{137}Cs on montmorillonite and illite: effect of charge compensating cation, ionic strength, concentration of Cs, K and fulvic acid. *Clays and Clay Minerals.* 45, 251-260.
- 36) Yamada, K., Yamaguchi, T., Sawano, K., Kishimoto, M. and Furuhashi, K. (2012). Radioactive contamination of a pig raised at a farm within 20km of the Fukushima Daiichi nuclear power plant. *Radioisotopes.* 61, 129-132.
- 37) 山田一孝, 山口敏朗, 陳忠正, 稲沢直生, 石井三都夫, 佐々木基樹, 木田克弥, 岸本海織, 古濱和久 (2013). 安定同位体セシウムを用いた子牛のセシウム体内移行抑制効果に関する予備的検討. *動物臨床医学.* 22, 31-34.
- 38) 山田一孝, 山口敏朗 (2013). 食品に自然に含まれる放射性同位元素と放射性物質汚染について. *北獣会誌.* 57, 162-164.
- 39) Yamaguchi, T., Chen, C., Sasaki, M., Furuhashi, K. and Yamada, K. (2013). History of internal radiation exposure in a wild masked palm civet (*Paguma Larvata*) at Fukushima assessed by autoradiography of vibrissae. *Bull. Vet. Inst. Pulawy.* 57, 433-435
- 40) Yamaguchi, T., Endo, Y., Nambo, Y., Sato, F., Sasaki, N. and Yamada, K.

- (2013). Evaluation of motion correction processing in equine bone scintigraphy by scheffé's method of paired comparisons. *J. Vet. Med. Sci.* 75, 369-371
- 41) Yamaguchi, T., Sawano, K., Furuhashi, K., Mori, C. and Yamada, K. (2013). An autoradiogram of skeletal muscle from a pig raised on a farm within 20 km of the Fukushima Daiichi nuclear power plant. *J. Vet. Med. Sci.* 75, 93-94.
- 42) Yamaguchi, T., Sawano, K., Kishimoto, M., Furuhashi, K., Mori, C. and Yamada, K. (2012). Early-stage bioassay for monitoring radioactive contamination in living livestock. *J. Vet. Med. Sci.* 74, 1675-1676.

Abstract

Study on Radioactive Contamination in Livestock Products by Nuclear Power Plant Accident

The earthquake and subsequent tsunami on March 11, 2011 resulted in an accident of radioactive material release from the Fukushima Daiichi nuclear power plant. After that, the farm products were contaminated by radioactive materials, and human health would also be affected by an increasing concern, radioactive contamination became a serious problem throughout the nation. In the present study, the radioactive internal contamination of animals in radioactive contaminated areas examined with the breeding method of livestock to inhibit them.

In chapter 1, feces and blood from pigs and soil were sampled at a farm within 20 km of the Fukushima Daiichi nuclear power plant after the accident (April 10, 2011). These samples were measured using a Germanium (Ge) semiconductor detector to examine radioactive contamination. The results show radioactive cesiums (^{134}Cs and ^{137}Cs) were detected in blood clots; ^{131}I , ^{134}Cs , and ^{137}Cs were detected in feces; ^{131}I , ^{134}Cs , ^{136}Cs , ^{137}Cs , and $^{129\text{m}}\text{Te}$ were detected in the soil. These findings suggest that the affected pigs may take in radioactive materials from the breeding environment contaminated.

In chapter 2, a pig that was raised at a farm within 20 km of the Fukushima Daiichi nuclear power plant on the day of the accident, which was moved to a clean area 17 days after the accident, was slaughtered and sampled at 41 days late. Then, radioactivity of the skeletal muscles and

heart were measured using the Ge semiconductor detector. The ^{134}Cs , ^{137}Cs , and ^{40}K were detected in both tissues of the affected pig, but only ^{40}K was detected in those of a control pig. By autoradiograms (ARG), the muscle from the affected pig showed a heterogeneous and sporadically dense imaging pattern whereas that from a control pig showed a relatively homogenous exposure. Photo luminescence densities (PSL/mm²) on the ARG, which represented the radioactivity in the affected and control muscle samples, was statistically significant between them ($p < 0.01$). The result demonstrates that ^{134}Cs and ^{137}Cs were distributed in the skeletal muscle of the affected pig raised on a radioactive contaminated area.

In chapter 3, the internal radioactive contamination history was studied with wild animals which were captured and/or collected in the planned evacuation zone. The vibrissae of a wild masked palm civet (*Paguma larvata*) were collected from the carcass on the road in the planned evacuation zone, and the mane of a wild boar (*Sus scrofa*) which was captured in the planned evacuation zone. They were visualized by ARG. Furthermore, a ^{137}Cs scintigram of the affected wild masked palm civet was visualized using a small size gamma camera with a pinhole collimator system. The scintigram showed the highest density in the abdomen related ^{137}Cs concentration and distribution in affected wild masked palm civet. These findings suggest that the history of internal radiation exposure can be detected from ARG and a scintigram.

In chapter 4, it was studied the inhibitory effect of the absorbent clay bentonite, which bound to Cs, was examined using 2 groups of 3 calves each in a preliminary 28 days study. Three calves given 0.5% bentonite with the

stable Cs in the powdered milk solution was used as the test group, and 3 other calves receiving only stable Cs in the powdered milk solution was utilized as the control group. At termination, Cs concentration in sampled blood from calves was measured using inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS). The Cs concentration at blood clots in the test group was lower than that in the control group until day 14. This finding suggests that bentonite has the inhibitory action on the radioactive Cs absorption.

In chapter 5, the inhibitory effect of bentonite on radioactive Cs absorption was examined using two hens raised in radioactive contaminated area, in a preliminary, 28 day study. One hen was given 0.5% bentonite in feed and another hen given only feed served as the control. The radioactive Cs concentration in the skeletal muscles and eggs were measured using the Ge semiconductor detector to examine. The radioactive Cs concentration in the hen given 0.5% bentonite was 23% lower than that in the control hen. Moreover, the radioactive Cs concentration in eggs laid during week 4 was significantly inhibited ($p < 0.05$). In subsequent the main study, hens raised in the same condition as the preliminary study for 10 days were divided into 3 groups of 5 each: 0.5% bentonite in feed, 5.0% bentonite in the feed and only feed (control). The radioactive Cs concentrations in the skeletal muscles and eggs were measured. The radioactive Cs concentration in the skeletal muscle of hens given 0.5% bentonite was significantly less than that of control hens. However, the average of the radioactive Cs concentrations of skeletal muscles and eggs in hen given 5.0% bentonite tended to be 1.9 times and 2.3 times higher than that of control hens,

respectively, it was not significantly higher. These findings suggest that the dose of 5.0% bentonite has an appropriate level to inhibit radioactive Cs absorption for hens.

In conclusion, internal radioactive Cs contamination was noted in radioactive contaminated Fukushima area. The addition of bentonite to the feed was considered a ready to use tool to inhibit the radioactive Cs absorption in livestock. This research was thought to play in crucial role on food safety and security, and revival of animal husbandry from now on.